

Étude de l'influence des défauts d'isotropie dans les composites biphasés renforcés par des particules interconnectées

Nabil FERGUEN^{1*}, Willy LECLERC¹, Christine PÉLEGRIS¹, Emmanuel BELLENGER¹, Mohamed GUESSASMA¹, Yannick LORGOUILLOUX², Stéphane HOCQUET³, Olivier RIGO⁴, Christian COURTOIS², Véronique LARDOT³

¹LTI EA-3899 Université de Picardie Jules Verne, IUT de l'Aisne, 48 rue d'Ostende, 02100 Saint-Quentin, France

²LMCPA, UVHC, F-59600 Maubeuge

³INISMA-BCRC, B-7000 Mons

⁴SIRRIS, B-4102 Seraing

*(auteur correspondant : nabil.ferguen@u-picardie.fr)

Résumé - Le présent article décrit une approche numérique pour la génération et l'étude de composites renforcés en particules sphériques interconnectées. L'étude est réalisée dans le cadre du projet PRISTIMAT² dont la finalité est de concevoir un matériau à gradient au flux de chaleur orienté. Nous nous intéressons ici au problème de conduction thermique d'un matériau sans gradient constitué d'une matrice en alumine renforcée par un réseau de particules d'aluminium interconnectées. Il s'agit, plus en particulier, d'étudier la qualité des empilements générés par le modèle proposé et de mieux comprendre l'influence de défauts d'isotropie sur la conductivité thermique effective.

Nomenclature

F_n	force normale, N	R_c	rayon de contact, m
K_{eff}	conductivité thermique effective, W/m.K	T	température, K
K_n	rigidité de contact, N/m	U_n	interpénétration, m
\dot{Q}	flux de chaleur total, W	ϕ	compacité du réseau

1. Introduction

Les matériaux à gradient de fonction (functionally graded materials, en anglais) est une classe particulière des matériaux composites qui présente un intérêt majeur dans le développement de nouveaux matériaux fonctionnels. Le potentiel d'utilisation de ces matériaux est important et couvre une très large gamme d'applications en ingénierie comme l'aéronautique, l'automobile ou la conversion d'énergie. Les matériaux à gradient présentent des caractéristiques structurales qui les différencient des matériaux classiques ; la microstructure est obtenue grâce à une variation spatiale de la distribution de la phase imprégnée dans la matrice ce qui confère au composite un gradient des propriétés. La variation graduelle des constituants du composite induit des variations continues d'une surface à une autre [1]. Divers travaux [2, 3, 4] soulignent l'intérêt de ces matériaux pour gérer les contraintes thermomécaniques. L'objectif final du projet PRISTIMAT² est de démontrer et utiliser le potentiel de composites biphasés, composés d'une matrice en alumine imprégnée par des particules d'aluminium (Al), pour la gestion des flux thermiques dans les blocs moteurs. Ces matériaux sont donc constitués d'une phase céramique assurant le caractère d'isolation et d'une phase métallique dont le rôle est d'assurer la diffusion thermique. Ce dernier point n'est vérifié que pour un réseau interconnecté de particules dont le contact, plus ou moins interpénétré, permet le transfert thermique d'inclusion à inclusion.

Une approche numérique [5] a été récemment développée pour évaluer la conductivité thermique effective (CTE) d'un tel type de composite. La méthode numérique utilise conjointement la méthode des éléments discrets (MED), pour générer la microstructure du composite, et la méthode des éléments finis (MEF), pour calculer les propriétés effectives. Dans le présent article, l'objectif consiste tout d'abord à étudier la qualité des empilements générés par le modèle proposé selon la granulométrie considérée. Il s'agit, alors, d'estimer et investiguer la compacité du réseau ainsi que la distribution des orientations des contacts entre particules. Une seconde partie cible l'influence des défauts mis en exergue sur la CTE.

2. Procédé d'élaboration des composites biphasés alumine/aluminium

Les composites alumine/Al sont obtenus par infiltration d'aluminium dans des préformes poreuses d'alumine. L'étape qui conditionne les propriétés finales du composite est l'élaboration de la céramique poreuse, le réseau d'interconnexion des pores étant généré et contrôlé par l'élimination thermique des particules de PMMA (polyméthacrylate de méthyle).

2.1. Élaboration des préformes alumine à porosité contrôlée

Le procédé d'élaboration de la céramique est résumé sur la Figure 1 et s'effectue en deux étapes principales :

2.1.1. Élaboration d'un édifice de particules organiques par moulage

L'édifice est réalisé à partir d'un empilement de particules PMMA de granulométrie contrôlée. L'interconnexion entre les particules est obtenue grâce à un traitement de chimifmage au moyen d'un solvant permettant de créer des ponts entre les particules aux points de contacts. La maîtrise de la température, la durée du traitement et le retrait de l'édifice polymérique lors de la phase de compression, contrôlent le diamètre des ponts entre les particules polymériques, et par conséquent les interconnexions qui s'établissent entre les pores de l'alumine (Figure 1 a). Une suspension aqueuse à 75% en Al_2O_3 est ensuite coulée dans les édifices correspondants à des particules en PMMA de granulométrie 700-800 μm (Figure 1 b). Pour les granulométries inférieures : 400-500 et 200-300 μm , la barbotine est à 65 %.

2.1.2. Traitement thermique et frittage de la préforme en alumine

Le déliantage est réalisé à 200 °C pendant 30 heures. Un cycle de frittage à 1670 °C pendant une heure permet de consolider la structure. Le contrôle du calibre des particules organiques et de la taille des contacts entre ces particules au moment du moulage permet de maîtriser parfaitement la taille des pores sphériques (de 100 à 700 μm) et des interconnexions entre ces pores (de 0,1 à 0,4 fois le diamètre des pores). Ce procédé permet également d'élaborer des structures poreuses à gradient de taille des pores, ou à gradient de taille des interconnexions entre les pores.

2.2. Infiltration des préformes par un alliage d'aluminium

L'infiltration est réalisée par une machine classique de fonderie à modèle perdue sous vide. Les préformes sont imprégnées par un alliage à base d'aluminium avec l'ajout du magnésium pour améliorer la mouillabilité de l'aluminium.

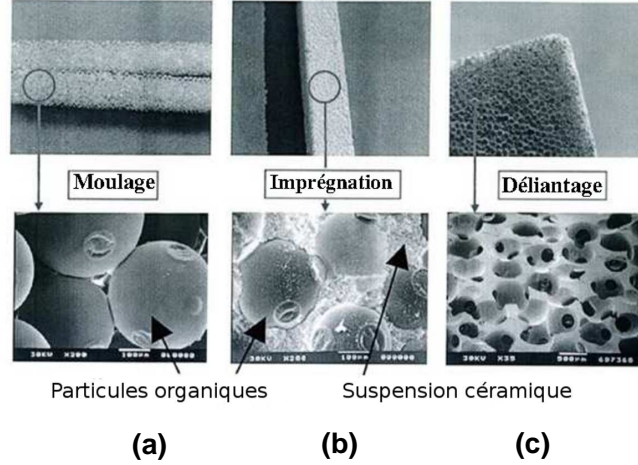


Figure 1 Procédé d'élaboration de la préforme alumine macroporeuse : a) empilement de particules en PMMA b) imprégnation par une barbotine d'alumine, c) obtention de la préforme macroporeuse après traitement thermique

3. Modélisation Numérique

Un modèle numérique a été développé permettant de simuler les différentes étapes d'élaboration du composite [5]. L'approche utilise conjointement la MED pour générer l'architecture du composite, composé de particules interconnectées, et la MEF, afin d'estimer la CTE.

3.1. Génération de l'architecture du composite

L'architecture du composite est générée par la MED. Il s'agit de reproduire le processus d'élaboration de l'empilement granulaire par sédimentation. Dans ce but, nous utilisons le logiciel PFC3D. Celui-ci permet de recréer le caractère aléatoire de la génération des particules ainsi que les cycles de compression. Les étapes de conception de l'empilement sont les suivantes. Tout d'abord, les particules sont générées aléatoirement dans une boîte rectangulaire. Un premier empilement est alors obtenu par sédimentation, du fait de la seule action de la pesanteur. Afin d'améliorer la compacité du réseau obtenu, le système est soumis à une vibration, puis à une charge de compression appliquée selon l'axe verticale z . Cette ultime étape est finalement répétée afin d'obtenir des particules interconnectées (Figure 2). Dans le présent travail, le contact entre les particules est régi par une loi de contact élastique linéaire basée sur l'interpénétration interparticulaire (Figure 3). Ainsi, les interpénétrations sont liées aux déplacements relatifs des particules sous l'effet de la force normale F_n (Equation 1),

$$F_n = K_n U_n \quad (1)$$

où F_n , K_n , et U_n représentent respectivement la force de contact normale (N), la rigidité de contact (N/m) et l'interpénétration (m).

Les particules sont supposées déformables permettant ainsi la formation des interconnexions aux points de contacts. Le rayon de contact noté R_c permet de calculer les surfaces de contact de l'ensemble de l'empilement. Celui-ci est défini comme suit :

$$R_c = \sin(\theta_a) R_a ; \quad \theta_a = \arccos \left[\frac{D_{ab}^2 + R_a^2 - R_b^2}{2 D_{ab} R_a} \right] \quad (2)$$

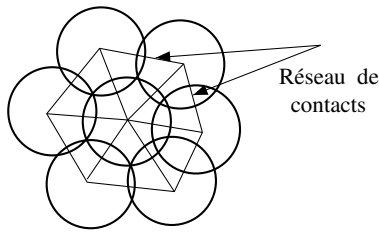


Figure 2 Réseau de contact entre les particules

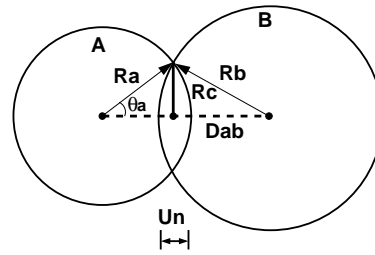


Figure 3 Rayon d'interconnexion entre deux particules A et B (schéma en 2D)

$$U_n = (R_a + R_b) - D_{ab} \quad (3)$$

3.2. Génération du modèle de composite et du maillage

Une fois l'empilement granulaire obtenu, les coordonnées géométriques des particules sont récupérées et injectées dans le logiciel SolidWorks. Le réseau de particules et son empreinte, la matrice, sont générés puis assemblés afin d'obtenir le modèle de composite biphasé. Le motif final est cubique et peut être vu comme un volume élémentaire représentatif (VER) du milieu hétérogène lorsque celui-ci contient suffisamment d'informations statistiques sur le réseau de particules. Ainsi, une étape préliminaire consiste à estimer les dimensions adéquates du VER ; un tel travail a été effectué via la méthodologie de Kanit et al. [6] dans un article précédent [5]. Il en a résulté qu'un nombre de 300 particules sphériques est suffisant pour concevoir un motif représentatif du milieu hétérogène. Ceci étant fait, les maillages sont finalement générés à l'aide d'éléments finis tétraédriques d'ordre 2 pour un niveau de raffinement permettant l'estimation précise de la CTE.

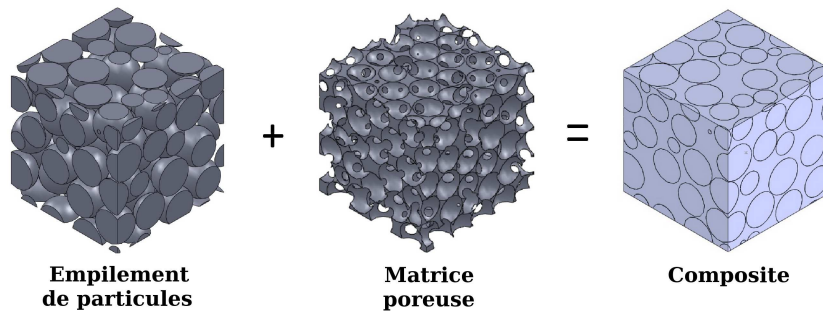


Figure 4 Assemblage du modèle de composite

3.3. Calcul des conductivités thermiques effectives

La CTE est estimée par la MEF. Dans un premier temps, des propriétés thermiques sont affectées à chacune des phases (Tableau 1).

Dans un second temps, un gradient de température ΔT ($^{\circ}K$) est appliqué entre deux faces opposées du modèle numérique alors que les surfaces restantes sont supposées adiabatiques. Le flux de chaleur total \dot{Q} (W) est alors estimé numériquement puis mis en relation avec la CTE K_{eff} ($W/m \cdot K$) à l'aide de la loi de Fourier,

$$K_{eff} = \dot{Q} \frac{L}{A \Delta T} \quad (4)$$

	Chaleur spécifique	Conductivité thermique	Masse volumique
	[kJ.kg ⁻¹]	[W/m.K]	[kg.m ⁻³]
Al ₂ O ₃	850	23.4	3960
Alliage Al	875, 2	116	2780

Tableau 1 *Propriétés thermiques des phases*

où L et A sont respectivement, l'épaisseur du matériau (m) et l'aire de la section du matériau (m^2).

4. Résultats numériques

4.1. Compacité

La Figure 5 décrit l'état du réseau en fonction de la fraction volumique de particules. En-dessous du seuil de percolation, à savoir $\phi = 0,289$ [7], les inclusions sont peu connectées et le contact entre particules est rare ; entre 0,289 et 0,634, les contacts sont nombreux et mènent à la constitution de réseaux de percolation jusqu'à obtention d'un empilement compact de sphères entre $\phi=0,523$ (réseau cubique) et $\phi_{max} = 0,634$ (compacité maximale d'un réseau de sphères aléatoires non-interpénétrées de diamètre fixé [8]). Au-delà de ϕ_{max} , la compacité du réseau interpénétré généré par la MED croit en même temps que le rayon d'interconnexion R_c (ici adimensionné par rapport au rayon moyen des particules) augmente du fait de la compression. Un comparatif peut alors être réalisé avec un modèle de dynamique moléculaire à compacité maximale [9] dont l'interconnexion est générée par grossissement des particules. Différentes granulométries ($R = 200-300\mu m$, $R = 400-500\mu m$ et $R = 600-700\mu m$, avec R le rayon de la particule) sont considérées. Nous remarquons que les particules les plus fines mènent à une compacité inférieure au modèle de dynamique moléculaire, et même inférieure à ϕ_{max} avant compression. En revanche, les empilements générés pour les deux autres granulométries ont une compacité similaire voire supérieure, lorsque le rayon d'interconnexion est important, au réseau obtenu par dynamique moléculaire. L'empilement est donc d'une qualité satisfaisante pour des granulométries de $400-500\mu m$ et $600-700\mu m$ mais pas pour une granulométrie de $200-300\mu m$.

4.2. Isotropie

D'un point de vue géométrique, l'isotropie du milieu est vérifiée lorsque les paramètres morphologiques décrivant la microstructure, à savoir la position spatiale et les angles de contacts, sont distribués aléatoirement. Dans le cadre de la génération d'empilements par sédimentation, il est bien connu que les parois engendrent une anisotropie. Afin d'éviter ce phénomène, une méthodologie consiste à générer un empilement constitué d'un nombre important de particules puis d'effectuer un prélèvement cubique au centre du réseau de particules. Dans le présent travail, une étude préliminaire nous a mené à considérer des empilements initiaux de 1500 particules pour lesquels un prélèvement de 300 particules est considéré. Un exemple de distribution des angles de contact obtenu pour une granulométrie de $600-700\mu m$ dans le plan XY est illustré sur la Figure 6. Nous remarquons que l'arbre des orientations n'exhibe aucune direction privilégiée. Cela est aussi vrai pour les plans YZ et ZX. Un comparatif est réalisé avec deux configurations d'empilement pour lesquels des directions privilégiées apparaissent, à savoir les modèles cubique et cubique centré que nous nommerons ici carré et triangulaire eu regard de

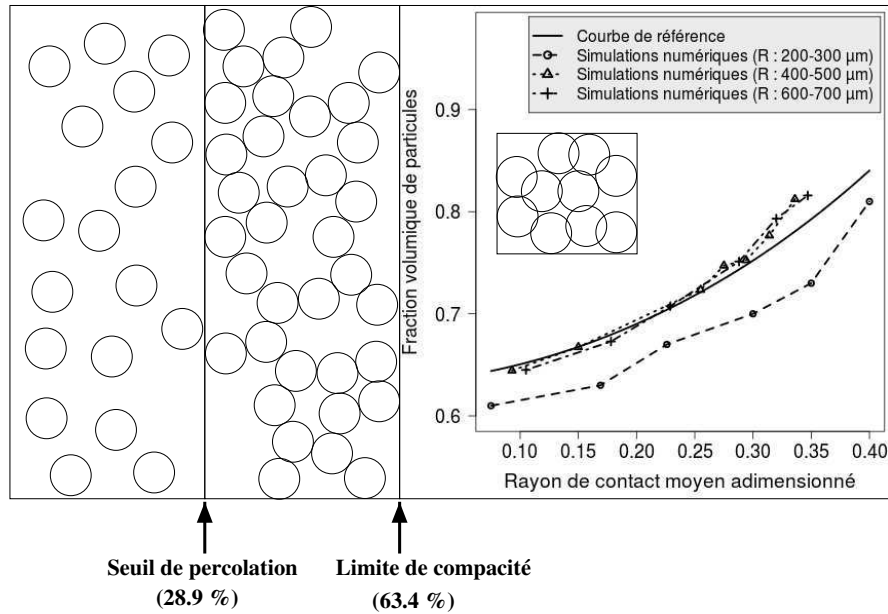


Figure 5 Etat du réseau de particules en fonction de la compacité

leurs angles de contact.

La distribution spatiale est étudiée à travers l'outil de covariance qui est un outil bien connu des statisticiens. Le paramètre décrit la probabilité que deux points séparés d'une distance donnée appartiennent à un même milieu. Lorsque la distance est nulle, nous devons retrouver la fraction volumique de particules car les deux points sont confondus. Pour une distance tendant vers l'infini, la covariance tend vers le carré de la fraction volumique si les hétérogénéités sont distribuées aléatoirement. Les Figures 7 et 8 illustrent la covariance évaluée, pour des distances allant de 0 à 60 % de la largeur du VER, et pour des configurations aléatoire et carré, de rayon de contact adimensionné respectivement 0,1 et 0,4. Nous remarquons que dans le cas aléatoire, les courbes correspondant aux covariances mesurées selon les trois directions principales de l'espace, convergent rapidement vers la fraction volumique au carré. Des petites oscillations sont visibles autour de l'asymptote horizontale mais aucun défaut structurel n'est détecté. Dans le cas de la configuration carrée, la convergence n'est pas assurée et un comportement oscillant caractéristique d'une structure périodique est obtenu. La configuration triangulaire mène à des résultats similaires à ce dernier cas. Il résulte de cette étude que les empilements aléatoires générés par l'approche proposée par Ferguen et al. [5] respectent les critères d'isotropie géométrique.

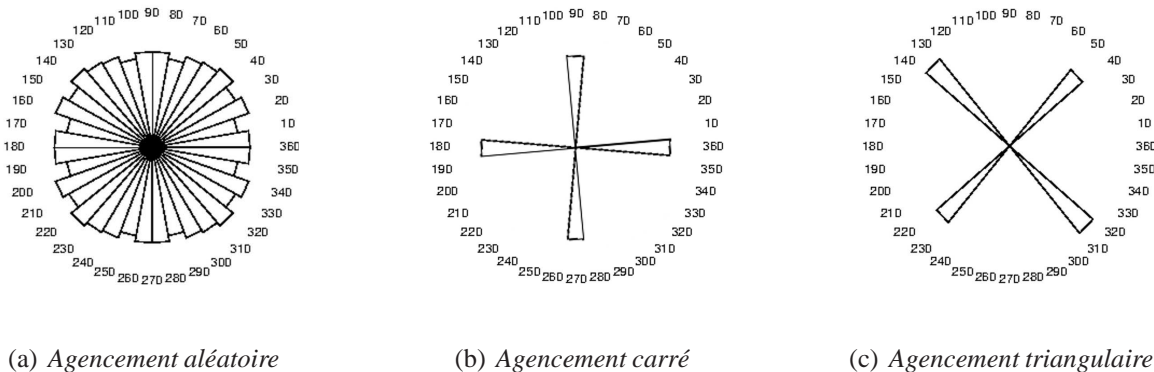


Figure 6 Orientation des angles de contact (plan XY) pour différentes configurations de l'empilement

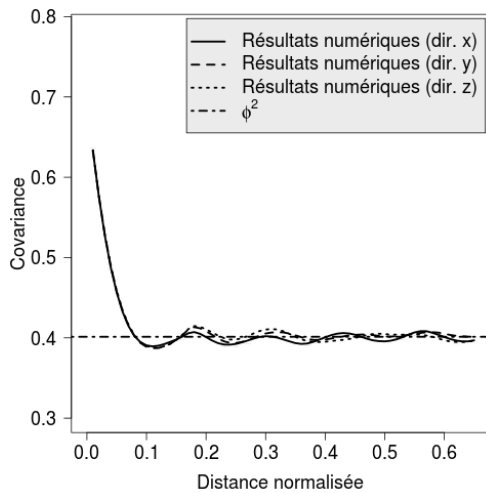


Figure 7 Courbes de covariance (modèle à agencement aléatoire)

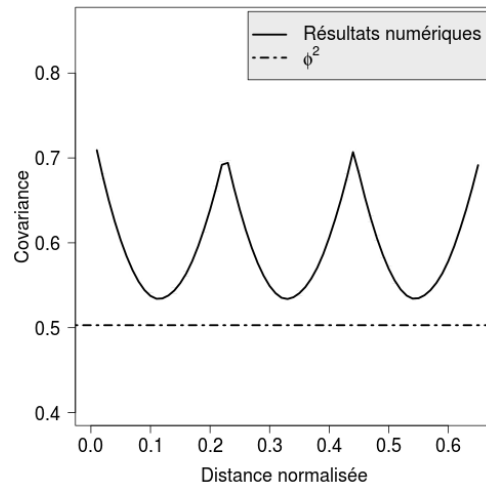


Figure 8 Courbe de covariance (modèle à agencement carré)

D'un point de vue comportemental, l'isotropie du milieu est respectée lorsque les propriétés effectives sont indépendantes de la direction considérée. Ainsi, une simulation réalisée pour chaque direction de l'espace, x, y et z, doit mener à des résultats identiques aux erreurs numériques près. La Figure 9 illustre les prédictions de CTE, K_x , K_y et K_z réalisées pour les trois configurations étudiées précédemment, avec une compacité fixée proche de 0,68 pour laquelle le modèle aléatoire présente une légère interconnexion ($R_c = 0,1$). Nous observons que l'isotropie matérielle est vérifiée pour chaque arrangement. Les écart relatifs mesurés sont faibles, avec un maximum de respectivement 1,68 %, 0,470 % et 0,321 %. Les empilements aléatoires respectent donc également les critères d'isotropie matérielle.

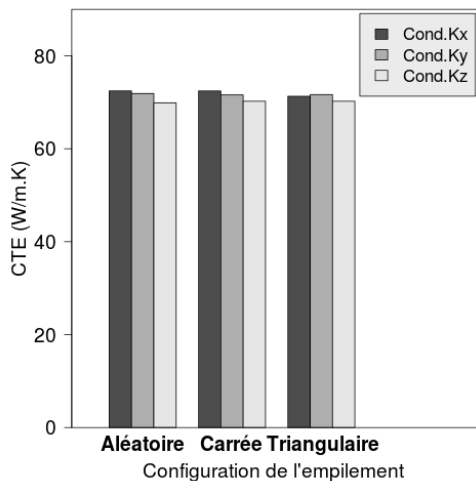


Figure 9 Prédictions des CTE, K_x , K_y et K_z selon les directions x, y et z

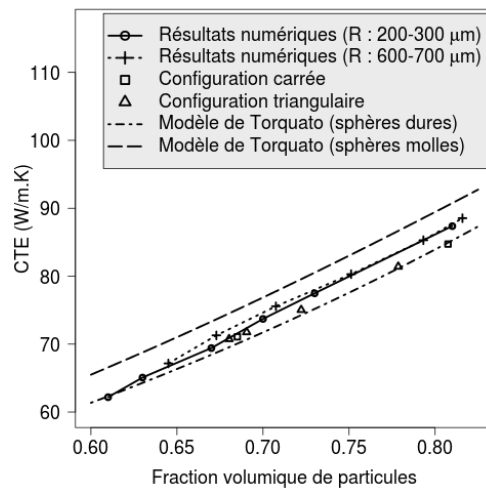


Figure 10 Influence de la fraction volumique de particules sur la CTE

4.3. CTE

La Figure 10 décrit l'influence de la compacité sur la CTE du composite. Deux granulométries sont considérées, à savoir 600-700 μm (courbe en pointillés), et 200-300 μm (courbe continue) pour laquelle l'empilement était de moindre qualité. Un comparatif est également réalisé avec les configurations triangulaire (symboles triangulaires) et carrée (symboles carrés) pour les-

quelles l'isotropie géométrique n'est pas respectée. L'ensemble de ces résultats numériques est comparé au modèle analytique d'ordre 3 de Torquato [10]. Deux configurations sont considérées, le cas des sphères molles pour lequel les sphères peuvent aléatoirement s'interpénétrer (courbe avec traits), et le cas des sphères dures (courbe en alternance de pointillés et de traits) pour lequel l'interconnexion n'est pas autorisée. Nous pouvons observer que les deux modèles de granulométrie mènent à des résultats similaires bien que, à compacité fixée, l'interconnexion soit plus importante dans le cas de la granulométrie 200-300 μm . A compacité proche de ϕ_{max} , les résultats numériques sont proches du modèle de Torquato pour les sphères dures. Ce résultat est attendu car l'interpénétration est nulle ou du moins assez faible pour une telle compacité. Plus la fraction volumique de particules augmente, et plus l'interpénétration autorisée augmente et la CTE tend vers la prédiction donnée par le modèle à sphères molles. L'ensemble de ces simulations sont donc en conformité avec le modèle analytique. Les configurations triangulaire et carré mènent à des résultats légèrement moindres par rapport à ceux obtenus pour les empilements aléatoires. Nous pouvons supposer que les défauts d'isotropie affectent peu la CTE mesurée si la distribution des angles de contact présente une symétrie et une invariance par rotation de $\pi/2$.

5. Conclusions

L'étude réalisée dans ce papier a montré que les empilements générés aléatoirement selon l'approche de Ferguen et al. vérifient bien les critères de compacité et d'isotropie géométrique. Les résultats montrent également que, dans certaines configurations d'empilements, les défauts d'isotropie ont peu d'influence sur la CTE.

Références

- [1] A. Ochner, G. E. Murch, and M. de Lemos. Cellular and Porous Materials : thermal properties simulations and prediction, Willey-VCH (2008).
- [2] L. Jr. Mishnaevsky, K. Derrien, D. Baptiste. Effect of microstructure of particle reinforced composites on the damage evolution : probabilistic and numerical analysis. *Composites Science and Technology*, 64 (2004), 1805-1818.
- [3] A.A. Shizardi, Y. Zhu, H.K.D.H. Bhadeshia. Joining ceramics to metals using metallic foam. *Materials Science and Engineering A*, 496 (2008), 501-506.
- [4] H.P. Xiong, A. Kawasaki, Y. S. Hang, R. Watanabe. Experimental study on heat insulation performance of functionally graded metal/ceramic coatings and their fracture behavior at high temperature, *Surface & Coatings Technology*, 197 (2005), 203-214.
- [5] N. Ferguen, C. Cogné, E. Bellenger, M. Guessasma, C. Pélegris. A numerical model for predicting effective thermal conductivities of Alumina/Al composites. *Journal of Composite Materials*, 47 (2013), 3311-3321.
- [6] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, D. Jeulin. Determination of the size of the representative volume element for random composites : statistical and numerical approach. *International Journal of Solids and Structures*, 40(13-14) (2003), 3647-3679.
- [7] M.D. Rintoul, S. Torquato. Precise determination of the critical threshold and exponents in a three-dimensional continuum percolation model. *Journal of Physics A*, 30 (1997), 585-592.
- [8] C. Song, P. Wang, H.A. Makse. A phase diagram for jammed matter. *Nature*, 453 (2008), 629-632.
- [9] B. Lubachevsky, F. Stillinger. Geometric properties of random disk packings. *Journal of Statistical Physics*, 60 (1990), 561-583.
- [10] J.D. Beasley, S. Torquato. Bounds on the conductivity of a suspension of random impenetrable spheres. *Journal of Applied Physics*, 60(10) (1986), 3576-3581.

Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier l'Union Européenne pour son soutien financier dans le cadre du projet INTERREG IV France-Wallonie-Vlaanderen PRISTIMAT².