

Simulation numérique du couplage électrique, thermique et mécanique lors du frittage « flash » de matériaux céramiques et métalliques

F. MECHIGHEL^{1,2*}, G. ANTOU¹, B. PATEYRON¹, A. MAÎTRE¹, M. EL GANAOU¹

¹Laboratoire Sciences des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface, SPCTS UMR CNRS 6638, ENSCI, 47-73 avenue Albert Thomas, 87065 Limoges Cedex, France

²Département de Génie Mécanique, Université de Annaba, 23000 Annaba, Algérie

* (auteur correspondant : f_mechighel@yahoo.fr)

Résumé - Le procédé de frittage « flash » ou SPS (Spark Plasma Sintering) est utilisé comme procédé de consolidation de matériaux céramiques ou métalliques. Une simulation numérique des couplages électrique, thermique et mécanique lors du traitement « SPS » a été menée. Les équations caractéristiques de la conservation de l'énergie, du potentiel électrique et les équations d'équilibre, pour le comportement mécanique, sont résolues simultanément et des couplages forts, en terme de température, sur les coefficients de conductivité thermique et de résistivité électrique sont pris en compte. Les exemples d'application concernent des échantillons céramiques (alumine) ou métalliques (cuivre).

Nomenclature

T	Température, K	<i>Symboles grecs</i>	
D	matrice d'élasticité	σ_e	conductivité électrique, S/m
cp	chaleur spécifique, $J kg^{-1} K^{-1}$	ρ_e	résistivité électrique, $Ohm m$
k	conductivité thermique, $J/m K s$	T	Température, K
$\{\sigma\}$	tenseur des contraintes, N/m^2	\vec{F}	l'effort volumique appliqué, N
T_{ref}	température de l'échantillon à l'instant $t=0$		

1. Introduction

Le procédé de frittage appelé SPS (Spark Plasma Sintering) présente de nombreux avantages par rapport aux méthodes conventionnelles de frittage (*i.e.* Hot Pressing (HP) ou Hot Isostatic Pressing (HIP)). Cette nouvelle technologie qui s'appuie sur un mode de chauffage original par effet Joule permet d'abaisser la température de début de frittage en favorisant la cinétique des processus de diffusion qui participent à la densification [1]. Le temps imparti au frittage et, par voie de conséquence, disponible pour le grossissement de grains étant plus faible, le contrôle des microstructures devient plus facile. De plus, cette technique est prometteuse car elle permet de réaliser des frittés d'architectures complexes (matériaux à gradients de composition et/ou de porosité, multimatériaux...) [2,3]. Le frittage SPS est utilisé pour la densification des principales classes de matériaux incluant les céramiques, les métaux et les composites [4,5].

Le procédé de frittage SPS repose sur l'application d'un courant électrique continu (DC), pulsé (durée d'un pulse de courant \approx quelques ms) et d'une charge uniaxiale. L'application d'un courant électrique de forte intensité favorise l'activation de certains processus de transport de matière qui concourent à la densification du fritté (*e.g.* diffusion en surface, diffusion aux joints de grains, évaporation-condensation) [6,7]. De la même manière, les

contraintes générées par la charge uniaxiale externe (notamment la contrainte hydrostatique de compression) jouent un rôle essentiel dans le processus de densification lors de frittage.

L'objectif principal de ce travail est d'étudier le rôle des paramètres clés du procédé de frittage SPS (intensité du courant, contrainte appliquée...) sur la distribution de la thermique et des contraintes mécaniques dans le système. Une simulation numérique des couplages thermiques, électriques et mécaniques lors du processus de frittage type SPS sera plus particulièrement menée. Les résultats obtenus pourront servir à optimiser la géométrie des moules utilisés pour la mise en forme de ces matériaux par le procédé de frittage « flash ».

2. Considérations générales et équations du modèle

Le dispositif de frittage est représenté schématiquement par la figure 1 [8]. Les électrodes d'alimentation en courant électrique sont maintenues à une température constante de 300K. La matrice, les pistons et les contre-pistons sont traditionnellement en graphite. Les échantillons considérés dans cette étude appartiennent respectivement à la classe des céramiques (ex. : alumine) et des métaux (ex. : cuivre). Les caractéristiques physiques très différentes de ces deux matériaux (conductivités thermique et électrique), reportées dans le tableau 1, ont motivé leur choix dans le cadre d'une étude des couplages thermiques, électriques et mécaniques.

Nous supposons par la suite que :

- les résistances de contact sont négligeables parce que leur rôle est considéré comme secondaire pour des études similaires dans la littérature [7,9] ;
- les forces de frottement aux interfaces échantillon/matrice et échantillon/piston sont négligeables ;
- les échantillons étudiés sont supposés entièrement denses (densité relative au moins égale à 99%). Cette hypothèse revient à négliger le rôle de la porosité sur la conduction thermique et électrique dans les frittés.

	<i>Alumine</i>	<i>Cuivre</i>	<i>Graphite</i>
k [J/m.K.s]	$aT/(b+T)+cT/(d+T)+eT$	$420,66+0,07T$	$65+0,017T$
c_p [J/kg.K]	$(a_1+T)/(b_1+c_1T)$	$355,3+0,1T$	$310,5+1,7T$
ρ_e [Ωm]	10^8	$(5,5+0,038T)10^9$	$(26-0,03T+2 \cdot 10^{-5}T^2-6,410^{-9}T^3+7,8 \cdot 10^{-13}T^4)10^{-6}$

Tableau 1 : Caractéristiques physiques des matériaux utilisés d'après [8].

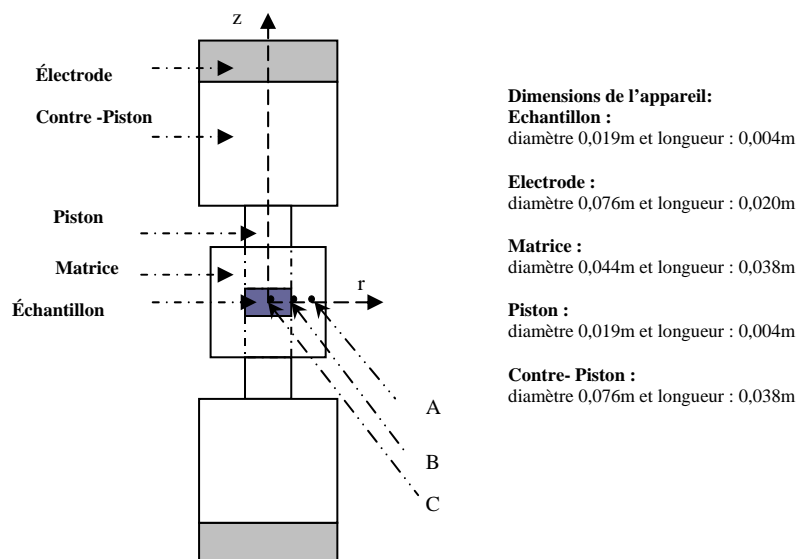


Figure 1 : Schéma de principe de fonctionnement du dispositif de frittage SPS.

Les équations de conservation couplées représentent la conservation de l'énergie (transfert de chaleur par conduction), la conservation du potentiel électrique et l'équation d'équilibre pour le comportement mécanique. Elles sont écrites en coordonnées cylindriques (r, θ, z).

Nous supposons que le matériau est élastique et que son comportement mécanique est quasi-statique. De plus, le potentiel électrique est décrit comme une quantité quasi-statique tandis que le transfert thermique est donné comme transitoire. Les conductivités thermique et électrique seront définies comme des variables de la température (voir Tableau 1). Les matériaux traités dans le cadre de cette étude sont considérés comme isotropes. Le procédé de frittage s'effectuant sous vide, les pertes de chaleur par convection à travers les gaz sont négligées. La perte de chaleur par radiation des surfaces latérales est prise en compte en considérant une émissivité de 1 pour le graphite et une température ambiante de 300 K.

Les équations de conservation des champs thermique et du potentiel électrique s'écrivent :

$$\rho c_p \partial T / \partial t + \nabla \cdot (-k \nabla T) = q_e \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \vec{J} = 0 \quad (2)$$

où $\vec{J} = \sigma_e \vec{E}$ est la densité du courant électrique et \vec{E} le champ électrique ;

$q_e = \vec{J} \cdot \vec{E} = JE$ la source de chaleur (par effet Joule) par unité de temps et par unité de volume.

Si $\vec{E} = -\nabla \phi$, (ϕ est le potentiel électrique), alors l'équation (2) peut s'écrire :

$$\nabla \cdot \vec{J} = \nabla \cdot (\sigma_e \vec{E}) = \nabla \cdot (-\sigma_e \nabla \phi) = 0 \quad (3)$$

Par ailleurs, l'équation qui traduit le comportement mécanique élastique du matériau à l'équilibre prend la forme suivante : $-\nabla \cdot \{\sigma\} = \vec{F}$

Si le comportement mécanique du matériau est supposé élastique, on peut écrire que : $\{\sigma\} = D\{\varepsilon\}$.

Du fait du couplage thermique, le tenseur déplacement dû à la dilatation thermique, pour le cas axisymétrique, s'écrit : $\{\varepsilon^{th}\} = \{\varepsilon_r^{th}, \varepsilon_\theta^{th}, \varepsilon_z^{th}, \varepsilon_{rz}^{th}\}^T$; avec: $\varepsilon_r^{th} = \varepsilon_\theta^{th} = \varepsilon_z^{th} = \alpha(T - T_{ref})$ sont les composantes normales du tenseur dû à la dilatation thermique; tandis que: $\varepsilon_{rz}^{th} = 0$ est sa composante de cisaillement.

Par conséquent : $\{\sigma\} = \{\varepsilon - \varepsilon^{th}\}$

3. Résultats et discussions

Les équations (1) à (3) sont résolues numériquement avec l'apport du code de calculs commercial « COMSOL 3.3 ». Nous appliquons cette démarche numérique à l'étude du frittage « flash » de deux matériaux : le premier est une céramique (alumine : isolant électrique et thermique) et le second est un métal (cuivre : conducteur thermique et électrique) sous deux intensités électriques appliquées (1000 A et 500 A). La charge uniaxiale appliquée au système sera fixée à 8,72 MPa.

3.1. Distribution du champ thermique

Sur les figures 2a et b, sont représentés les champs de température, en régime établi, dans la région échantillon/matrice pour les deux échantillons (cuivre et alumine). Ces figures montrent que l'échantillon de cuivre est chauffé directement par effet Joule, tandis que pour

l'échantillon d'alumine, c'est la matrice qui est préalablement chauffée puis l'échantillon, ceci est illustré par les distributions de densités de courant électrique (figure 2), le courant ne traverse pas l'alumine car il est isolant électrique. Ceci revient à supposer que l'échauffement de l'échantillon de cuivre est obtenu principalement par conduction thermique entre la matrice et le fritté. Les températures maximales atteintes sont respectivement de 936 K pour l'alumine et 925 K pour le cuivre soit un écart d'une dizaine de degrés. Le peu d'effet de la conductivité thermique de l'échantillon sur la distribution de la température s'explique par la faible perturbation du volume échantillon (Fig. 2). Dans l'hypothèse où la géométrie de la matrice pourrait affecter la distribution de température [13], cette différence n'excède pas 11 K pour un courant de 1000 A. Cependant, une diminution de température plus importante est observée dans la matrice (Fig. 3). Des effets plus sensibles, qui sont liés à une différence de conductivité thermique entre la matrice et l'échantillon, sont relevés pour les déplacements et les contraintes.

3.2. Champs des déplacements mécaniques et champs des contraintes

Les déplacements mécaniques dans le système, pour un courant appliqué de 1000 A, sont représentés sur la figure 4. La figure 4a présente les déplacements dans le plan radial dans le cas de l'alumine. Dans la région piston/matrice/échantillon, le déplacement radial augmente assez uniformément avec l'augmentation du rayon, et le déplacement le plus élevé est obtenu près de la surface de la matrice. Ces déplacements radiaux sont dus aux effets combinés de la dilatation thermique et de la rigidité (coefficient de Poisson).

Sur la figure 4b sont représentés les déplacements radiaux dans le cas de l'échantillon de cuivre. La comparaison, entre les figures 4a et 4b révèle la présence de courbes d'isovaleurs de déplacements radiaux différentes pour les échantillons d'alumine et de cuivre. Contrairement, au cas de l'alumine (Fig. 4a), le déplacement radial dans l'échantillon en cuivre (4b) n'augmente pas uniformément avec la position radiale. En effet, la région de l'échantillon en cuivre en contact avec la paroi de la matrice se déforme plus vite que celle où le piston est en contact avec la paroi de la matrice (graphite sur graphite). En effet, le coefficient de dilatation thermique du cuivre, plus élevé que celui de l'alumine, favorise sa déformation le long de la paroi du moule en graphite. Ces différences de déplacements entre l'alumine et le cuivre se manifestent dans les distributions des contraintes mécaniques.

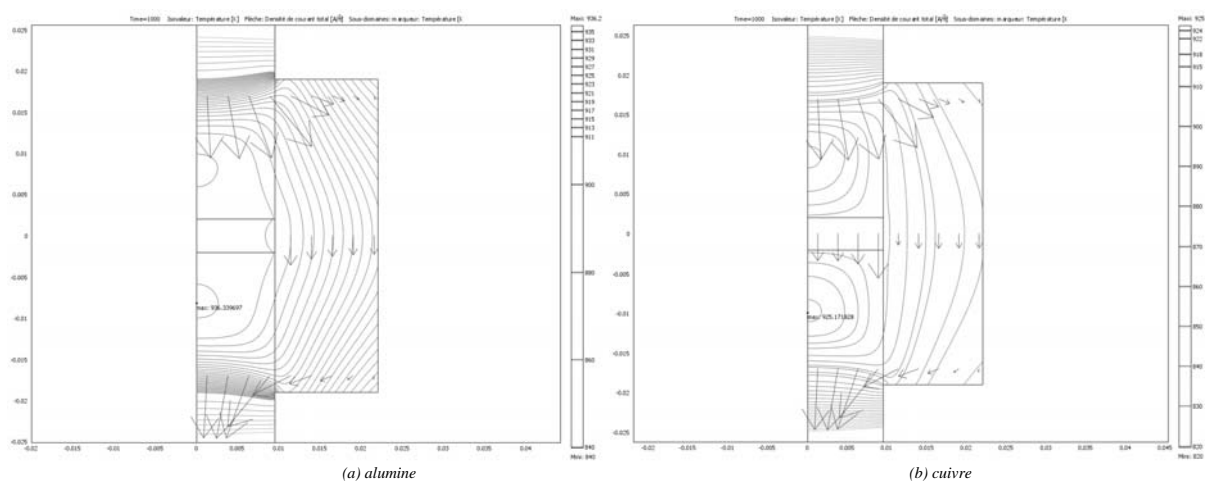
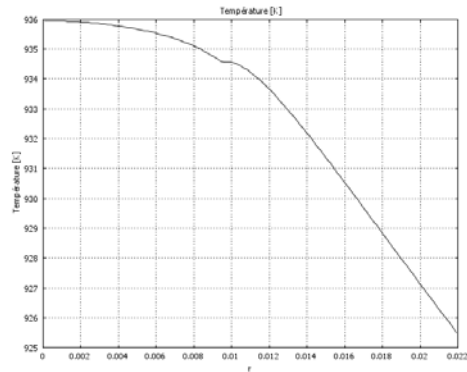
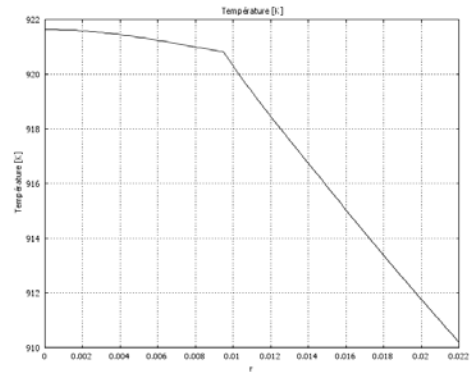


Figure 2 : Distribution de la température (isothermes) et de densité du courant total dans la région échantillon- matrice (1000 A) pour les deux nuances de matériaux.

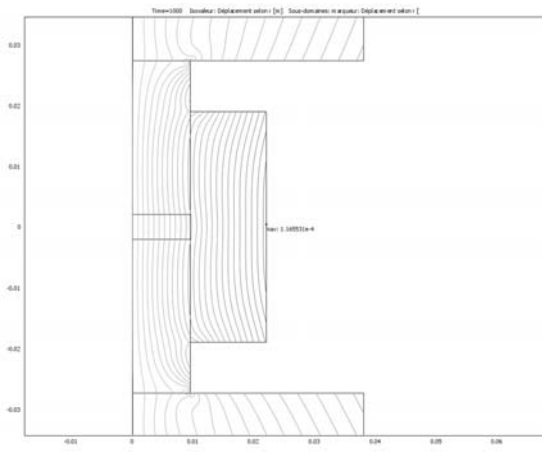


(a) alumine

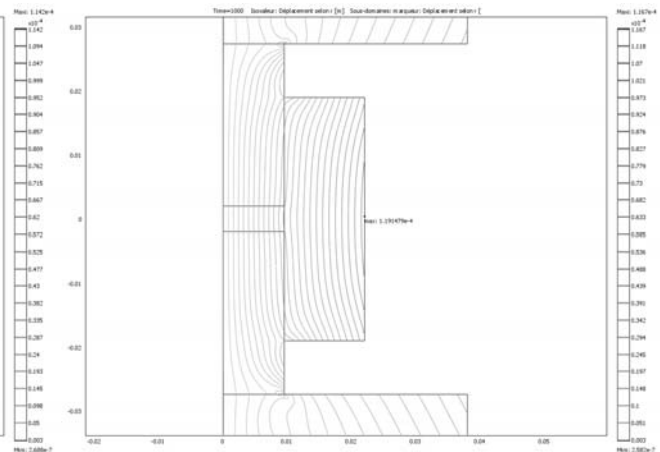


(b) cuivre

Figure 3 : Distribution de température le long de l'axe radial (intensité de courant 1000 A)

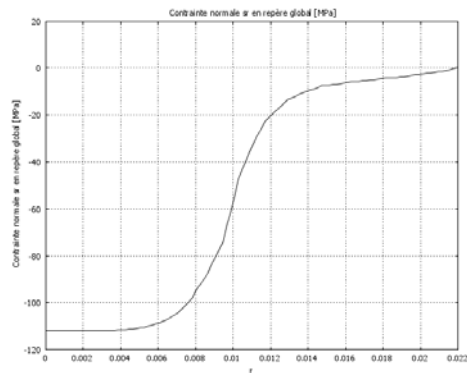


(a) alumine

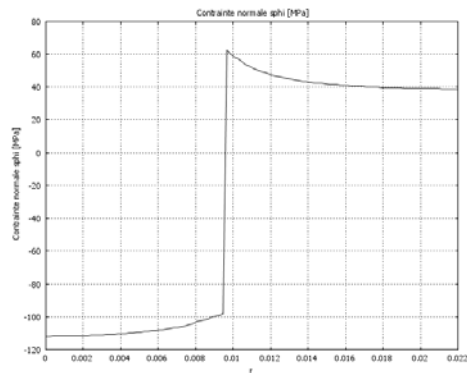


(b) cuivre

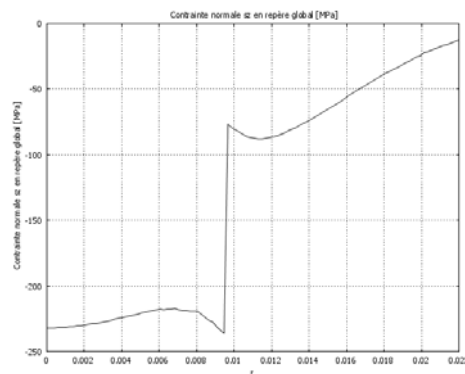
Figure 4 : Déplacements radiaux dans la région piston- matrice- échantillon, (1000 A)



(a)



(b)



(c)

Figure 5 : Contraintes radiale, angulaire et axiale verticale, respectivement, dans le cuivre et dans la matrice le long de l'axe radial (1000 A)

Sur la figure 5 sont représentées dans le plan radial les contraintes radiales, angulaires, et axiales, pour un échantillon de cuivre. De grandes différences en termes de contraintes entre les échantillons en alumine et en cuivre sont observées. Dans l'échantillon en cuivre la contrainte radiale est distribuée de façon inhomogène. Elle correspond à un effort de compression notamment dans la zone de contact matrice/échantillon (figure 5a). A l'inverse, dans le cas de l'alumine, cette contrainte est plutôt caractéristique d'un effort de traction dans l'échantillon (ces contraintes ne sont pas représentées ici). Les mêmes constatations sont observées pour les contraintes angulaires (fig. 5b). Dans le cas de la contrainte axiale, elle est non uniforme dans le cuivre (fig. 5c). La nature des contraintes (compression ou traction) est due essentiellement au coefficient de dilatation thermique (aussi bien qu'au module de Young) de l'échantillon. La matrice en graphite de coefficient de dilatation thermique beaucoup plus faible que celui du cuivre met en compression l'échantillon de cuivre pendant la montée en température (voir Fig. 5a-c). A l'inverse, dans les mêmes conditions, l'alumine dont le module de Young reste très élevé par rapport à celui du graphite et dont le coefficient de dilatation thermique est légèrement plus faible que celui de la matrice, est soumise à des contraintes de traction.

4. Conclusion

L'étude permet de conclure que le champ thermique dépend peu de la conductivité de l'échantillon et que le gradient de température le long de l'échantillon est très faible <2%. Les champs de déplacements et de contraintes sont fonction de la nature de l'échantillon (de son coefficient de dilatation thermique) et les gradients de contraintes dans l'échantillon sont plus importants que les gradients de températures.

Enfin, au regard des présents résultats, il apparaît que les contraintes thermiques et mécaniques sont plus intenses au niveau de la paroi mais aussi au niveau des surfaces de contact piston/contre-piston. Ceci permet en particulier d'expliquer le fluage préférentiel des pistons au voisinage de ces zones [1,9].

Références

- [1] F. Goutier, G. Trolliard, S. Valette, A. Maître and C. Estournes, Role of impurities on the spark plasma sintering of ZrC_x-ZrB_2 composites, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 28 [3] (2008) 671-678.
- [2] Munir ZA, Anselmi-Tamburini U, Ohyanagi M. *J Mater Sci* (2006); 41-763.
- [3] Shen Z, Zhao Z, Peng H, Nygren M. *Nature* (2002); 417-266.
- [4] Anselmi-Tamburini U, Garay JE, Munir ZA, Tacca A, Maglia F, Spinolo G, et al. *J Mater Res* (2004); 19(11):3255.
- [5] Anselmi-Tamburini U, Garay JE, Munir ZA. *Scr Mater* (2006); 54-823.
- [6] Anselmi-Tamburini U, Garay JE, Munir ZA. *Mater Sci Eng A* (2005); 407-24.
- [7] Garay JE, Anselmi-Tamburini U, Munir ZA. *Acta Mater* (2003); 51-4487.
- [8] X. Wang, S.R. Casolco, G. Xu, J.E. Garay, *Acta Mater* (2007); 3611-3622.
- [9] Anselmi-Tamburini U, Gennari S, Garay JE, Munir ZA. *Mater Sci Eng 2005; A 394:132*.
- [10] Yucheng W, Zhengui F. *Mater Sci Eng 2002;B 90:34*.
- [11] Zavaliangos A, Zhang J, Krammer M, Groza JR. *Mater Sci Eng* (2004); A 379-218.
- [12] Chen W, Anselmi-Tamburini U, Garay JE, Groza JR, Munir ZA. *Mater Sci Eng* (2005); 394-139.
- [13] Vanmeensel K, Laptsev A, Hennicke J, Vleugels J, Van der Biest O. *Acta Mater* (2005); 53-4379.