

# Evolution de la température lors du processus du frittage « flash »

Farid MECHIGHEL<sup>1,2\*</sup>, Alexandre MAÎTRE<sup>1</sup>, Bernard PATEYRON<sup>1</sup>, Mohammed EL GANAOU<sup>1</sup>, Mahfoud KADJA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire Sciences des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface, SPCTS UMR CNRS 6638, ENSCI, 185 avenue Albert Thomas, 87065 Limoges Cedex, France

<sup>2</sup>Département de Génie Mécanique, (Laboratoire LMI), Université de Annaba, 23000 Annaba, Algérie  
\*(auteur correspondant : [farid.mechighel@etu.unilim.fr](mailto:farid.mechighel@etu.unilim.fr))

**Résumé** - Le procédé de frittage « flash » ou SPS (Spark Plasma Sintering) est utilisé pour consolider des matériaux. Son intérêt est de permettre une microstructure fine et homogène au contraire des techniques traditionnelles qui nécessitent toujours des traitements thermiques supplémentaires pour affiner la microstructure. De plus, cette technique est rapide et peu coûteuse comparée à d'autres techniques de métallurgie des poudres comme la compression isostatique à chaud (HIP). Une simulation numérique des couplages électrique et thermique lors du traitement « SPS » a été menée.

## Nomenclature

$c_p$	chaleur spécifique, $J kg^{-1} K^{-1}$	<i>Symboles grec</i>	
$\mathbf{D}$	matrice d'élasticité	$\alpha$	coefficient de dilatation thermique, $K^{-1}$
$\mathbf{E}$	champ électrique, $V m^{-1}$	$\phi$	potentiel électrique, $V$
$\mathbf{F}$	force volumique appliquée, $N m^{-3}$	$\rho$	masse volumique, $kg m^{-3}$
$\mathbf{J}$	densité du courant électrique, $A m^{-2}$	$\rho_e$	résistivité électrique, $\Omega m$
$\mathbf{J}_e$	densité de courant externe généré, $A m^{-2}$	$\{\sigma\}$	tenseur des contraintes, $N m^{-2}$
$k$	conductivité thermique, $W m^{-1} K^{-1}$	$\sigma_e$	conductivité électrique, $S m^{-1}$
$Q$	source de chaleur, $W m^{-3}$	$\{\mathcal{E}\}$	tenseur des déformations, $m$
$t$	temps, $s$	$\{\mathcal{E}^{therm}\}$	tenseur des déformations thermique, $m$
$T$	température, $K$		
$T_{ref}$	température à l'instant $t=0$		

## 1. Introduction

Le frittage peut être décrit comme le passage d'un compact pulvérulent à un matériau cohérent sous l'action de la chaleur. Au cours de cette transformation, la forme du fritté est conservée alors que son volume diminue (phénomène de retrait). La consolidation du « compact » s'effectue par diffusion de la matière qui contribue à la formation de liaisons entre les grains. Le frittage naturel [1] effectué sans contrainte mécanique (chauffage sous air ou sous atmosphère contrôlée) se distingue du frittage sous charge effectué en appliquant une pression extérieure simultanément au chauffage. Ce qui est particulièrement utilisé pour les matériaux difficiles à fritter. C'est le frittage sous charge où la densification des poudres compactes est achevée par le pressage isostatique à chaud (HIPing : Hot Isostatic Pressing), c'est-à-dire que la poudre est à la fois chauffée et compactée [1].

Ce procédé de frittage ainsi que les techniques conventionnelles de la métallurgie des poudres sont lents et coûteux d'où l'intérêt du frittage « flash » (SPS) qui permet d'obtenir une microstructure fine et homogène. De plus, ce procédé [2] permet la consolidation des poudres métalliques et céramiques à haute température et dans un temps très court [3]. Cette nouvelle technique s'appuie sur l'application d'une charge uni-axiale et d'un courant électrique pulsé

[1,4]. L'application d'un courant électrique pulsé de forte intensité génère un chauffage par effet Joule qui abaisse la température de début de frittage en favorisant la cinétique des processus de diffusion qui participent à la densification du fritté (ex. diffusion aux joints de grains) [4,5].

Le procédé SPS permet d'obtenir des frittés nanostructurés dont les performances mécaniques électroniques ou optiques sont intéressantes [6]. De plus, des architectures complexes de matériaux (gradients de composition et de porosité, multi- matériaux,...) peuvent être réalisés. Le frittage SPS est utilisé pour la densification des principales classes de matériaux, céramiques, métaux et composites inclus [7].

Plusieurs études expérimentales et numériques sur des poudres compactes frittées par la technique SPS. Récemment des codes de calcul commerciaux ont été utilisés pour ces simulations. Zavaliangos et al. [8] qui s'intéressent, particulièrement, au problème de résistances de contact, utilisent le code « Abaqus » et effectuent un couplage thermique-électrique pour l'analyse du processus SPS. Wang et al. [9] utilisent une simulation numérique par éléments finis du couplage thermique- électrique- mécanique.

L'objectif principal de ce travail est d'étudier le rôle d'un paramètre clé du procédé de frittage SPS (intensité du courant) sur la distribution de la température dans le système au cours du processus SPS.

	Alumine	Cuivre	Graphite
$k$	$aT/(b+T)+cT/(d+T)+eT$	$420,66+0,07T$	$65+0,017T$
$c_p$	$(a_1+T)/(b_1+c_1T)$	$355,3+0,1T$	$310,5+1,7T$
$\rho_e$	$10^8$	$(5,5+0,038T)10^9$	$(26-0,03T+2\cdot 10^{-5}T^2-6,410^{-9}T^3+7,810^{-13}T^4)10^{-6}$

Tableau 1 : Caractéristiques physiques des matériaux utilisés d'après [9].

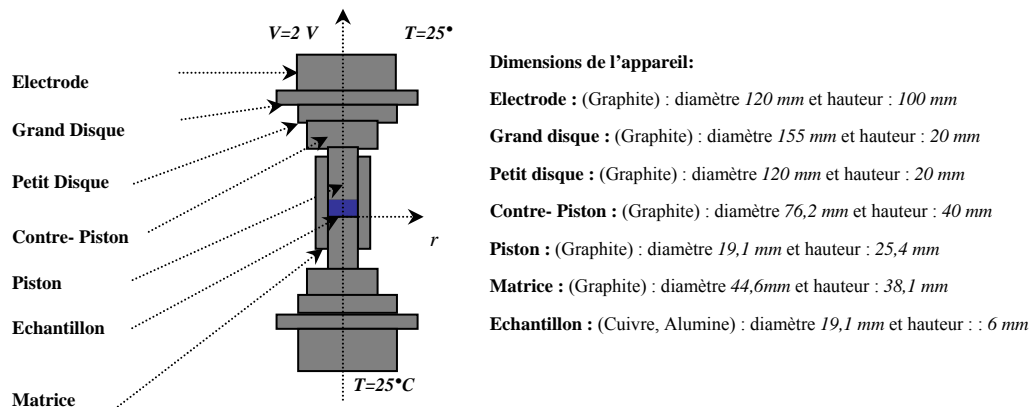


Figure 1 : Schéma de principe de fonctionnement du dispositif de frittage SPS [8].

## 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 298 K. La matrice, les pistons, les disques, les électrodes et les contre-pistons, illustrées sur la figure 1, sont en graphite. Les échantillons considérés dans cette étude appartiennent respectivement à la classe des céramiques (ex. : alumine) et à celle des métaux (ex. : cuivre). Les caractéristiques physiques très différentes de ces matériaux (conductivités thermique et électrique), reportées dans le tableau 1, motivent leur choix dans le cadre de cette étude des couplages thermiques, électriques et mécaniques.

Nous supposons par la suite que : les résistances de contact sont négligeables ; les forces de frottement aux interfaces échantillon/matrice et échantillon/piston sont négligeables ; les échantillons étudiés sont densifiés à plus de 90% ; l'influence de la porosité sur la conduction thermique et électrique, ainsi sur le module de Young sont négligeables.

Nous supposons que le matériau élastique et l'équilibre mécanique quasi-statique. Le potentiel électrique est également quasi-statique tandis que le transfert thermique est supposé transitoire. Les conductivités thermique et électrique sont définies comme des fonctions de la température (voir Tableau 1). Les matériaux traités dans le cadre de cette étude sont considérés isotropes et l'échantillon considéré comme élasto-plastique. Le procédé de frittage s'effectue sous vide et les pertes de chaleur par convection à travers les gaz sont négligées. La perte de chaleur par rayonnement des surfaces latérales vers le milieu ambiant, à température de 298 K, est prise en compte en supposant une émissivité du graphite de 0,9.

Le transfert de chaleur par conduction en régime transitoire pour un modèle axisymétrique [10]) est décrit par l'équation :

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

Dans un milieu conducteur (matériau), l'équation de conservation de la charge électrique ou bien équation de continuité [10] s'écrit :

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

où  $\mathbf{J} = \sigma_e \mathbf{E} + \mathbf{J}_e$ . Si  $\mathbf{E} = -\nabla \phi$ , alors l'équation (2) peut s'écrire :

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

Comme il est supposé que le comportement mécanique du milieu est quasi-statique. L'équation qui traduit le comportement mécanique d'un matériau à l'équilibre s'écrit :

$$-\nabla \cdot \{\sigma\} = \mathbf{F} \quad (4)$$

Le comportement mécanique du matériau est supposé élastique, alors :  $\{\sigma\} = \mathbf{D} \{\varepsilon\}$ .

Du fait du couplage thermique, le tenseur déplacement dû à la dilatation thermique s'écrit :  $\{\varepsilon^{therm}\} = \{\alpha(T - T_{ref}) \quad \alpha(T - T_{ref}) \quad \alpha(T - T_{ref}) \quad 0\}^T$ . Par conséquent :  $\{\sigma\} = \mathbf{D} \{\varepsilon - \varepsilon^{therm}\}$

### 3. Résultats et discussions

Les équations (1) à (4) sont résolues numériquement avec l'apport du code de calculs commercial « COMSOL 3.5 ». Nous appliquons cette démarche numérique à l'étude du frittage « flash » de deux matériaux : (l'alumine et le cuivre) sous deux intensités électriques appliquées (1000 A et 500 A). La charge uni-axiale appliquée au système est fixée à 50 MPa.

#### 3.1 Distribution de densité de courant électrique

La figure 2 (a et b) montre le champ de la densité du courant électrique, en régime établi ( $t = 1000 \text{ sec}$ ), dans l'ensemble pistons/matrice/échantillon pour le cas d'échantillons, respectivement, en alumine et en cuivre. Une différence est marquée dans la distribution du courant, dans les deux échantillons.

Les résultats obtenus pour l'échantillon en cuivre (Fig. 2a), montrent que le courant est de direction axiale (axe- z) dans l'ensemble pistons/matrice/échantillon, l'échantillon est chauffé

par effet Joule. Dans le cas de l'échantillon d'alumine, il n'y a pas de chauffage par effet Joule, c'est-à-dire que le chauffage initial de l'échantillon n'est pas fait du courant.

Dans les deux cas, les densités de courant les plus élevées sont situées à l'extérieur des pistons. L'échantillon et la matrice constituent deux branches parallèles d'un circuit électrique. Dans les régions près de l'interface piston/matrice, à l'interface de chaque contact, le courant a une densité forte possède une composante normale et une composante radiale continues à l'interface (elles ne sont pas représentées). Le chemin du courant électrique est fonction du rapport de la résistance de la conductivité électrique de la matrice et de celle de l'échantillon. Ainsi pour l'échantillon de cuivre le courant se partage entre matrice et échantillon (Fig. 2b). Dans l'échantillon en alumine, le courant passe totalement dans la matrice (Fig. 2a).

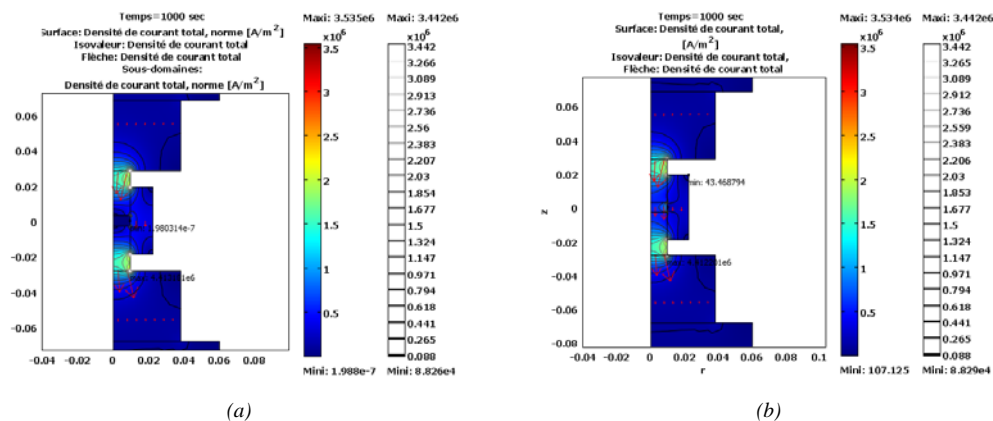


Figure 2 : Distribution, en régime établi, de densité de courant électrique dans l'ensemble pistons/matrice/échantillon pour l'alumine (a) et le cuivre (b)

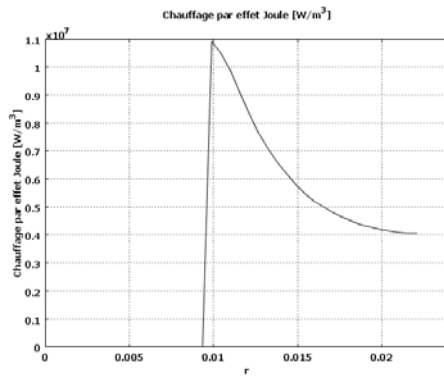
### 3.2 Distribution de la chaleur générée par effet Joule

La figure 3 (a et b) montre la chaleur générée le long de l'axe radial d'échantillon/matrice, (pour les deux échantillons). Notons que la moyenne de la chaleur sur l'axe de la matrice est environ de 20 fois plus élevée que pour l'échantillon de cuivre. En effet l'échantillon est fortement conducteur (cuivre) et la génération de la chaleur par effet Joule est très faible. Dans les deux cas la chaleur est générée dans les pistons et la matrice en graphite.

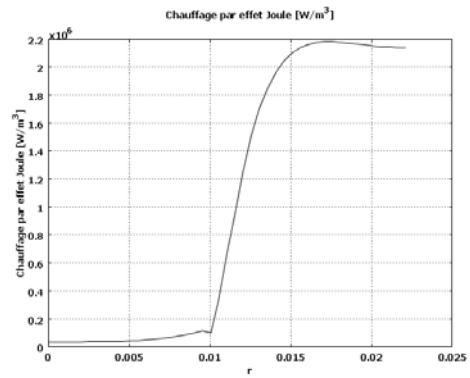
### 3.3 Evolution de la température dans l'ensemble pistons/échantillon/matrice

L'étude de la distribution de la température durant le processus SPS (dans l'échantillon et dans la matrice) est importante, car elle influence l'homogénéité de l'échantillon.

Sur la figure 4 (a et b), sont représentés les champs de température, en régime établi, dans la zone pistons/échantillon/matrice pour les deux échantillons (alumine et cuivre). Ces figures montrent, que l'échantillon de cuivre est chauffé directement par effet Joule, tandis que l'échantillon d'alumine, c'est la matrice qui chauffe l'échantillon. La température est maximale à la surface des pistons en raison du chauffage par effet Joule. Les températures maximales atteintes sont respectivement de 842 K et de 818 K pour l'alumine et pour le cuivre, soit un écart d'une dizaine de degrés. Ce faible effet de la conductivité thermique de l'échantillon sur la distribution de la température confirme que la conductivité électrique de l'échantillon n'affecte pas de manière significative le champ thermique comme il est rapporté dans plusieurs travaux [8,9].

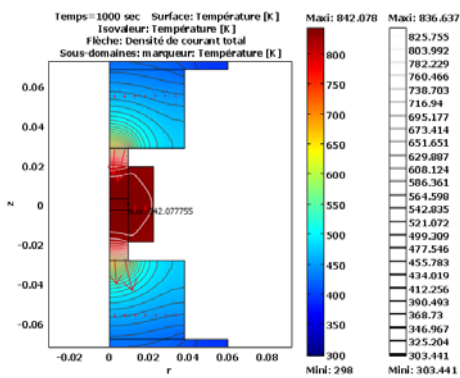


(a)

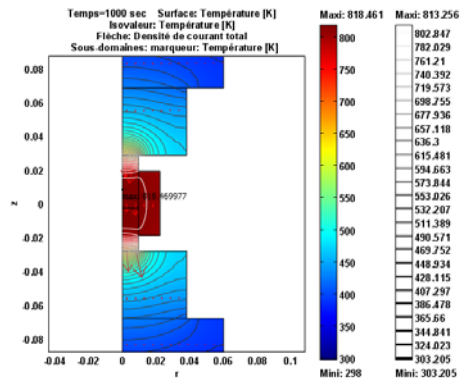


(b)

Figure 3 : Distribution en régime établi de la chaleur générées par effet Joule le long de l'axe radial échantillon/matrice pour l'alumine (a) et le cuivre (b)

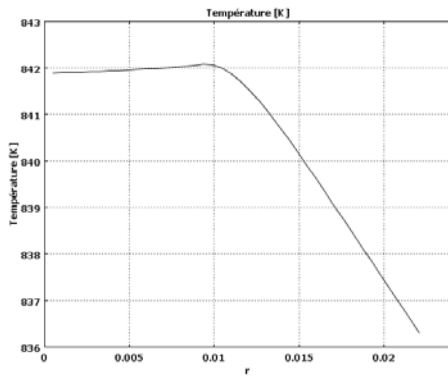


(a) alumine

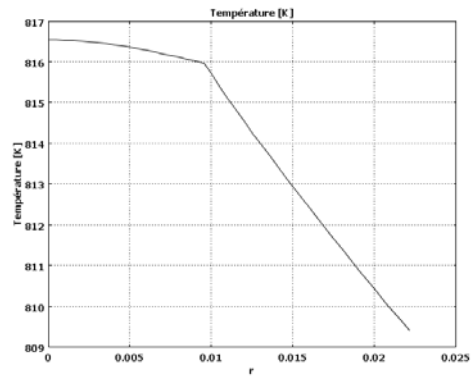


(b) cuivre

Figure 4 : Distribution en régime établi de la température (isothermes) dans la région échantillon/matrice (1000 A) pour l'alumine (a) et le cuivre (b)



(a) alumine



(b) cuivre

Figure 5 : Distribution de température le long de l'axe radial (1000 A)

Pour illustrer l'évolution radiale de la température le long de l'axe radial du système, en régime établi, la figure 5 (a et b) montre qu'une différence peu significative existe. En effet, avec le refroidissement de la matrice par rayonnement, qui est significative à des températures élevées, un gradient radial se développe. La présence de grands gradients de la température dans la matrice, au cours des essais de SPS, a été récemment rapportée [8,9]. Sur la figure 6 (a et b), on observe une différence de la distribution radiale de la température entre les échantillons cuivre et alumine.

La présence de ces gradients radiaux de température dans les échantillons de SPS conduit à une inhomogénéité dans la composition chimique ou la microstructure du fritté (notons que ce gradient ne dépasse pas, ici, les 2 degrés le long de chaque échantillon).

Le refroidissement par rayonnement est la cause principale du gradient de la température entre l'échantillon et la surface externe de la matrice. Des gradients radiaux de température d'autant plus grands que les courants appliqués sont plus élevés peuvent être obtenus [9].

Pour montrer le rôle primordial du courant électrique dans la génération de gradients thermiques radiaux, nous avons fait le calcul pour les intensités de courant de 500A et de 700A dont les résultats sont représentés sur la figure 6 (a et b).

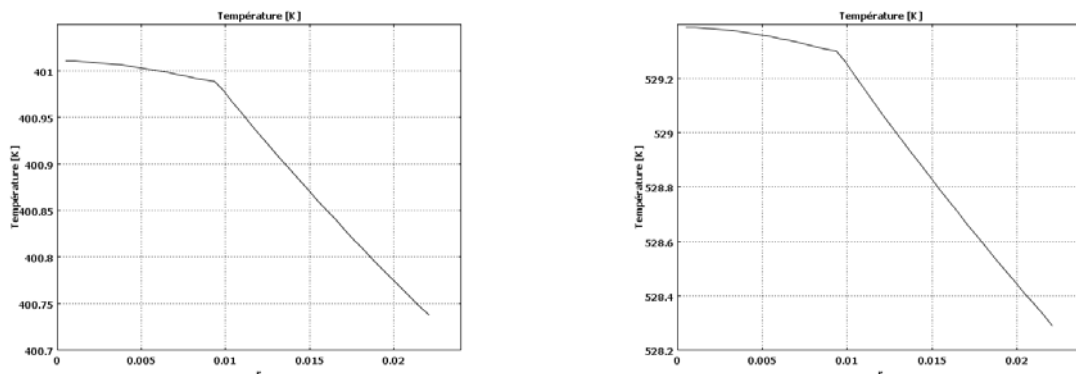


Figure 6 : Effet du courant appliqué sur les gradients radiaux le long de l'axe radial matrice/échantillon de cuivre (pour les courants de 500A et 700A, respectivement)

#### 4. Conclusion

Une étude numérique a été menée pour caractériser la distribution de la température dans le système pistons/matrice/échantillon lors du procédé de frittage SPS. Les plus grandes températures sont obtenues dans les pistons dus au chauffage généré à cet endroit, tandis que les températures minimales sont obtenues sur la surface de la matrice. Le courant appliqué influe significativement le champ thermique dans le système pistons/matrice/échantillon.

L'étude permet de conclure que le champ thermique dépend peu de la conductivité de l'échantillon et que le gradient de température sur l'axe de l'échantillon est très faible <2%.

#### Références

- [1] M.N. Rahamann, Sintering of ceramics, LRC Press Taylor & Francis Group, New York, 2008
- [2] J.R. Groza, A. Zavaliangos, Mat. Sci. Eng. A287 (2000) 171–177
- [3] L. Gao, Z.J. Shen, H. Miyamoto, M. Nygren, J. Am. Ceram. Soc. 82 (1999) 1061–1063
- [4] Z.A. Munir, U. Anselmi-Tamburini, J. Mater. Sci. 41 (2006) 763–777
- [5] J.E. Garay, U. Anselmi-Tamburini, Z.A. Munir, Acta Materialia, 51 (2003) 4487–4495
- [6] B. McWilliams, A. Zavaliangos, K.C. Cho, R.J. Dowding, JOM Nano-structured Materials (2006) 67–71
- [7] Y. Luo, S. Li, W. Pan, L. Li, Materials Letters, 58 (2003) 150–153
- [8] A. Zavaliangos, J. Zhang M. Krammer, J.R. Groza, Mater. Sci. Eng. A 379 (2004) 218–228
- [9] X. Wang, S.R. Casolco, G. Xu, J.E. Garay, Acta Materialia 55 (2007) 3611–3622
- [10] COMSOL Multiphysics Modeling Guide, COMSOL 3.5 (2008)