



HAL
open science

Composites aluminium/fibres de carbone pour l'électronique de puissance

Grégory Lalet

► **To cite this version:**

Grégory Lalet. Composites aluminium/fibres de carbone pour l'électronique de puissance. Matériaux. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2010. Français. NNT: 2010BOR14058. tel-00538480

HAL Id: tel-00538480

<https://theses.hal.science/tel-00538480>

Submitted on 22 Nov 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0
International License



UNIVERSITÉ DE
BORDEAUX

N° d'ordre : 4058

THÈSE
PRÉSENTÉE À
L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1
ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES CHIMIQUES
Par Grégory LALET
POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR
SPÉCIALITÉ : Science des matériaux

**COMPOSITES ALUMINIUM/FIBRES DE CARBONE POUR L'ÉLECTRONIQUE
DE PUISSANCE**

Thèse dirigée par MM. Jean-François SILVAIN, Jean-Marc HEINTZ et Akira
KAWASAKI

Soutenance prévue le : vendredi 24 Septembre 2010 à 10h

Devant la commission d'examen formée de MM. :

Sylvain DUBOIS	Professeur, PhyMat	<i>Rapporteur</i>
Karl JOULAIN	Professeur, LET	<i>Rapporteur</i>
Jean-François SILVAIN	Directeur de recherche, ICMCB	<i>Directeur de thèse</i>
Jean-Marc HEINTZ	Professeur, ENSCBP	<i>Directeur de thèse</i>
Akira KAWASAKI	Professeur, Tohoku University	<i>Directeur de thèse</i>
Didier ALBRECHT	Ingénieur, DGA	<i>Examinateur</i>
Yann LEPETITCORPS	Professeur, LCTS	<i>Examinateur</i>
Mario MAGLIONE	Directeur de recherche, ICMCB	<i>Examinateur</i>
Sylvain JOUANOLLE	Ingénieur, DGA	<i>Invité</i>

I	Elaboration et caractérisation de composites à matrice aluminium renforcée par des fibres de carbone	7
	Introduction	9
0.1	Présentation des modules de puissance	9
0.1.1	Description d'un module de puissance	9
0.1.2	Les matériaux constituant d'un module	10
0.1.3	Dégradations des constituants d'un module	15
0.1.4	Conclusion	19
0.2	Composite aluminium/fibres de carbone : présentation des constituants . .	20
0.2.1	L'aluminium	20
0.2.2	Les fibres de carbone	22
0.3	Conclusion	24
1	Modélisation	25
1.1	Introduction à la méthode des éléments finis	25
1.2	Modélisation de l'influence de la nature du drain thermique sur un montage électronique	27
1.2.1	Modélisation des matériaux	27
1.2.2	Propriétés de Al30Cplan	28
1.2.3	Propriétés de Al30Cextrude	29
1.3	Conditions des simulations	30
1.3.1	Conditions thermiques	30
1.3.2	Condition mécaniques	31
1.3.3	Résolution du calcul	31
1.4	Analyse des résultats des modélisations bidimensionnelles (2D)	31
1.4.1	Température maximale du montage	32
1.4.2	Contraintes de cisaillement sxy dans le drain et la brasure 1	33
1.4.3	Contraintes de cisaillement sxy dans le DBC	35
1.4.4	Contraintes de cisaillement sxy dans la brasure 2 et la puce	36
1.4.5	Conclusion	37
1.5	Analyse des résultats des modélisations tridimensionnelles (3D)	37

TABLE DES MATIÈRES

1.5.1	Vérification des résultats des calculs bidimensionnels par comparaison avec les valeurs relevées sur les plans de symétrie du modèle tridimensionnel	38
1.5.2	Analyse des résultats des modélisations tridimensionnelles (3D)	43
1.6	Conclusion	50
2	Frittage sous charge uniaxiale de composites aluminium/fibres de carbone	53
2.1	Introduction	53
2.2	Protocole expérimental	54
2.2.1	Obtention des poudres composites	54
2.2.2	Méthodes et paramètres de frittage	59
2.2.3	Diffusivité thermique : résultats théoriques	59
2.3	Influence de divers paramètres expérimentaux sur la diffusivité thermique des matériaux	60
2.3.1	Influence de la coupe des fibres	60
2.3.2	Influence de la durée de frittage	64
2.3.3	Influence de la température de frittage	66
2.3.4	Influence du pourcentage de renfort	69
2.3.5	Influence du type de frittage : frittage par induction et frittage flash	70
2.3.6	Diffusivité thermique de composites aluminium/fibres de carbone issus d'un protocole optimisé	73
2.3.7	Conclusion	74
2.4	Cycles thermiques et mesures du coefficient d'expansion thermique	74
2.4.1	Composites cuivre/fibres de carbone	75
2.4.2	Composites aluminium/fibres de carbone « hautes qualités » (XN100)	76
2.4.3	Composites aluminium/fibres de carbone « basses qualités » (CN80C)	79
2.4.4	Conclusion	84
2.5	Conclusion	86
3	Extrusion	89
3.1	Généralités	89
3.1.1	Extrusion directe	90
3.1.2	Extrusion inverse	91
3.1.3	L'extrusion angulaire à section constante	92
3.2	Extrusion de composites Al F3731-20% <i>vol</i> CN80C	93
3.2.1	Filière 1, 35 mm × 7 mm → 35 mm × 5 mm	95
3.2.2	Filière 2, 35 mm × 7 mm → 35 mm × 3 mm	96
3.2.3	Filière 3, 35 mm × 7 mm → 7 mm × 7 mm	97
3.2.4	Filière 4, 35 mm × 7 mm → 7 mm × 3 mm	98
3.2.5	Influence du rapport d'extrusion, orientation des renforts et propriétés thermomécaniques	99
3.3	Conclusion	101
	Conclusion	103

II Annexes	105
Méthodes de caractérisations	107
.1 Mesure de la densité relative à l'aide de la méthode d'ARCHIMÈDE	107
.2 Mesure de la diffusivité thermique	108
.3 Mesure du coefficient de dilatation thermique	109
.4 Caractérisation de fibres de carbone par microspectrométrie Raman	109
Table des figures	116
III Références bibliographique	117

Première partie

Elaboration et caractérisation de
composites à matrice aluminium
renforcée par des fibres de carbone

L'électronique de puissance est un domaine particulier de l'électronique qui s'attache à la conversion de puissance. Par exemple les modules de puissance s'intègrent dans des systèmes de gestion de l'énergie, dans le contrôle de moteurs ou d'alternateurs. Ainsi les réseaux de production/distribution électrique et les transports d'une manière générale (allant de l'automobile à l'aérospatiale ou l'aéronautique) sont les principaux domaines d'application.

Les technologies employées ont fortement évolué depuis l'invention du tube thermoionique, en 1906 par L. De Forest [1, 2], plus tard supplanté par les technologies à semi-conducteurs et les réels prémices de l'électronique de puissance dans les années 50. Cette évolution implique des performances toujours plus élevées et apportées par une miniaturisation toujours plus poussée des composants c'est-à-dire un nombre de composants par unité de surface sans cesse plus important [3]. En contrepartie les contraintes thermomécaniques au sein des modules de puissance sont devenues la principale cause de défaillance de l'électronique de puissance moderne (55 %), suivi des vibrations, de l'humidité et de la poussière responsables respectivement de 20 %, 19 % et 6 % des défaillances [4–8].

Après la présentation d'architectures représentatives de modules de puissance et des matériaux qui les constituent, différents modes de dégradations seront passés en revue. Enfin des solutions relatives à une partie spécifique de la problématique – quel matériau employer en tant que semelle ou drain thermique ? – seront développées.

0.1 Présentation des modules de puissance

0.1.1 Description d'un module de puissance

L'élaboration des modules de puissance est articulée autour de(s) l'élément(s) actif(s) du module, c'est-à-dire la(es) puce(s) électronique(s). Lorsque cette dernière est en fonctionnement, elle est responsable de cycles thermiques détériorant l'assemblage et auxquels s'ajoute la contribution des contraintes thermiques environnementales (cyclage passif) [7, 9–15]. Afin de protéger au mieux l'élément actif, les modules doivent donc être élaborés de manière à limiter le plus possible les contraintes de ces deux contributions. De plus le montage doit assurer l'isolation électrique entre les différentes parties du mon-

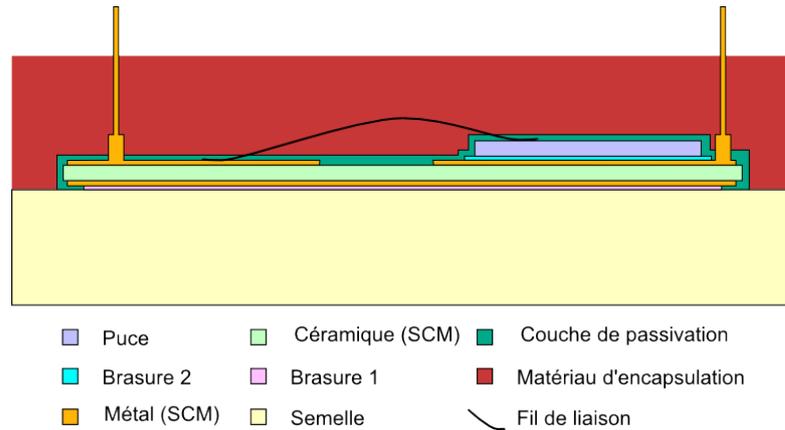


FIGURE 1 – Schéma d'un module de puissance.

tage. La figure 1 représente un schéma simplifié d'un module de puissance [5, 6]. Sont représentés de bas en haut :

- la semelle qui permet d'assurer le refroidissement de la structure mais aussi de limiter les déformations induites par les contraintes thermomécaniques ;
- la brasure 1 qui permet d'assurer une liaison à la fois thermique et mécanique entre la semelle et le substrat céramique métallisé ;
- le substrat céramique métallisé (SCM) qui est composé d' :
 - une céramique assurant l'isolation électrique du système,
 - une couche supérieure métallique où sont gravées les pistes du module (circuit imprimé) et d'où partent les connecteurs externes,
 - une couche inférieure du même métal apportant de la symétrie et permettant ainsi de diminuer les contraintes thermomécaniques dans le SCM ;
- la brasure 2 qui lie la puce au SCM et assure ainsi la conduction thermique et électrique entre ces parties du système.
- la puce qui est l'élément actif du système, elle est liée d'une part au substrat par l'intermédiaire de la brasure 2 et d'autre part au reste du montage par un fil de liaison ;
- un fil de liaison qui permet la communication entre la puce et le reste du module ;
- une couche de passivation (isolant électrique) qui sert à protéger la puce d'un claquage électrique ;
- un matériau d'encapsulation protégeant le dispositif des chocs et de l'environnement extérieur.

0.1.2 Les matériaux constituant d'un module

Couche de passivation et encapsulation

La couche de passivation est constituée d'un diélectrique dont l'épaisseur est de l'ordre d'une dizaine de micromètres. Le rôle de cette couche est d'apporter une isolation électrique suffisamment importante pour éviter la formation d'arc électrique dans le module. Cette couche peut être suffisante dans le cas de module de faible ou moyenne tension mais elle devra obligatoirement être renforcée par un matériau d'encapsulation dans le cas de forte différence de potentiel ($> 1000 V$) au sein du module.

Le but de l'encapsulation ne s'arrête pas à un renfort des propriétés diélectriques du montage. Il s'agit aussi d'isoler le module de l'environnement extérieur et tout particulièrement de l'air et de l'humidité afin d'éviter la dégradation du système [5]. Les matériaux utilisés sont très divers allant du solide au liquide en passant par le gel. En fonction des spécificités du module et de son environnement il pourra être choisi des polymères (par exemple : polyimide, polyamide-imide ou encore des résines époxydes ou silicone), des verres borosilicates, des composites polymères renforcés par des charges céramiques, des gels silicones, des huiles fluorées ou encore des mélanges benzile/toluène [15–18]. D'une manière générale les matériaux les plus rigides seront utilisés préférentiellement pour la couche de passivation tandis que les plus flexibles seront utilisés pour encapsuler le module car un matériau mou permet de réduire les contraintes en s'adaptant facilement aux déformations de l'assemblage.

Le fil de liaison

Des fils de liaisons assurent la communication interne entre les différentes parties du module de puissance. La liaison fil/substrat est généralement établie par une soudure par ultrason [5, 19–21]. Les fils sont généralement en alliage d'aluminium auquel sont ajoutés quelques parties par million d'éléments durcissant (silicium ou magnésium) ou de protection (du nickel apporte une protection face à la corrosion) [5, 22]. Cependant, le recours à des fils d'or est de plus en plus courant grâce à la très grande stabilité chimique de ce matériau, mais ceci reste une solution onéreuse [20, 23]. Du fait de la miniaturisation croissante des montages, des courants de plus en plus importants sont amenés à partir de ces fils. A titre d'exemple, dans le cas de fils en aluminium d'une longueur de un centimètre, un courant maximum de 25 A peut être utilisé pour un diamètre de fil de 300 μm et de 60 A pour un diamètre de 500 μm [5]. Avec de telles sections et des ampérages plus élevés, le fil fond par effet Joule. Afin de limiter leurs échauffements, les fils sont associés en parallèle. Néanmoins, pour des applications nécessitant de très fortes intensités et/ou de hautes fréquences, le recours à des alliages aluminium-cuivre est nécessaire. De nouvelles solutions permettant une meilleure résistance à la fatigue thermomécanique sont actuellement développées sur la base d'alliage aluminium-cuivre renforcés par des fibres de carbone ou encore des composites Cu/Nb ou Cu/Ta [20, 21, 24].

La puce électronique

La très grande majorité des assemblages est basée sur des puces dont le semiconducteur est un monocristal de silicium [25]. En fonction des montages, la température limite d'utilisation d'une telle puce sera de 250 °C pour des appareils dont les composants ont une tension de claquage inférieure à 100 V contre 150 °C pour des dispositifs dont la tension de claquage peut atteindre 1000 V.

La face arrière de la puce est généralement métallisée de manière à garantir une qualité de surface optimale vis-à-vis de la brasure. La métallisation peut aussi être utilisée sur les faces supérieures et inférieures du substrat céramique métallisé ainsi que sur la face supérieure de la semelle, c'est-à-dire l'ensemble des parties en contact avec des brasures.

Afin de concevoir des applications à la fois haute tension et haute température, il est nécessaire d'utiliser d'autres semiconducteurs tel que le carbure de silicium (SiC) ou le nitrure de gallium (GaN) ou encore le diamant qui supportent des tensions plus élevées que le silicium.

Enfin, les puces étant de plus en plus puissantes (Fig. 2 [4]), elles subissent donc des flux de chaleur de plus en plus importants (Fig. 3 [4]) ; il est donc nécessaire de les concevoir dans un matériau ayant une excellente conductivité thermique [25].

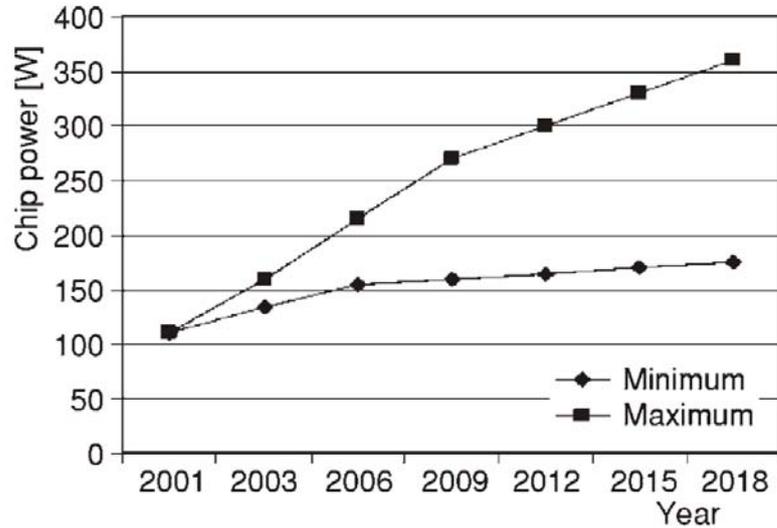


FIGURE 2 – Evolution de la puissance des puces électroniques [4].

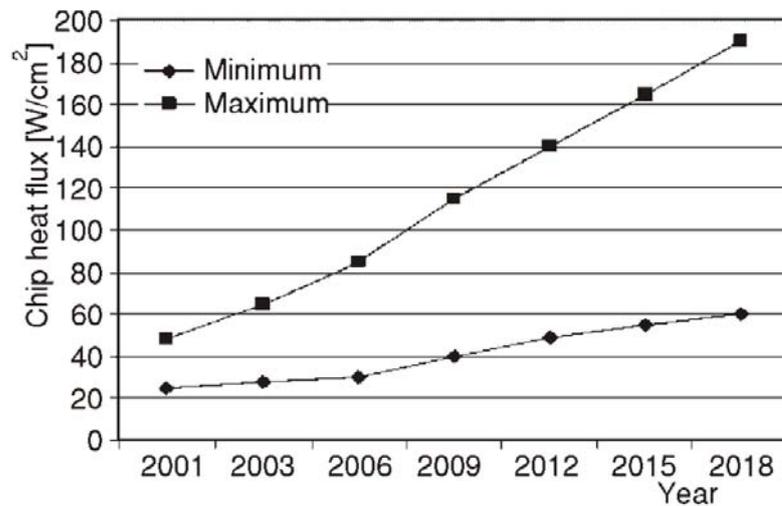


FIGURE 3 – Evolution du flux de chaleur des puces électroniques [4].

Les brasures

Les brasures jouent le rôle de lien à la fois thermique et mécanique entre différentes parties de l'assemblage. Cependant, l'industrie de l'électronique connaît des difficultés de fiabilité relatives au vieillissement et à l'endommagement des joints de brasure [7,8,11–14]. Les assemblages subissent à la fois des cycles thermiques actifs (fonctionnement du système) et passifs (environnement). Ceci implique que le matériau de brasure doit s'accommoder de fortes contraintes de cisaillement dues à la différence de coefficient d'expansion.

sion thermique (CET) des matériaux auxquels il est brasé : d'une part une céramique, ($CET < 10 \times 10^{-6} /K$) et d'autre part un métal ($CET = 17 \times 10^{-6} /K$ pour du cuivre ou bien $CET = 23 \times 10^{-6} /K$ pour de l'aluminium) [5]. Le résultat de telles contraintes est la casse du module à cause de la délamination de la brasure. De plus, d'un point de vue cinétique, un vieillissement des brasures est constaté avec la croissance d'intermétalliques qui fragilisent le matériau ce qui conduit à la casse et donc à la défaillance du module.

Historiquement, les brasures étain-plomb ont été privilégiées par l'industrie jusqu'en juillet 2006, c'est-à-dire jusqu'à ce que la directive européenne « *Restriction of the use of certain Hazardous Substances in electrical and electronic equipment* » entre en vigueur [26]. Depuis cette date l'usage de plomb (ainsi que 5 autres composés : mercure, cadmium, chrome hexavalent, polybromodiphényles et polybromodiphényléthers) a été restreint pour des raisons environnementales. De nouvelles solutions de brasures ont été développées, en particulier les brasures étain-argent-cuivre qui sont les plus représentées sur le marché de l'électronique [7,8,11,13].

Le substrat céramique métallisé

	Conductivité thermique (W/m.K)	Coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}/K$)	Tension de claquage (kV/mm)
Al ₂ O ₃	20-30	7-8	11-16
AlN	170-260	4-5	14-17
Si ₃ N ₄	35	3	15

FIGURE 4 – Propriétés de Al₂O₃, AlN et Si₃N₄.

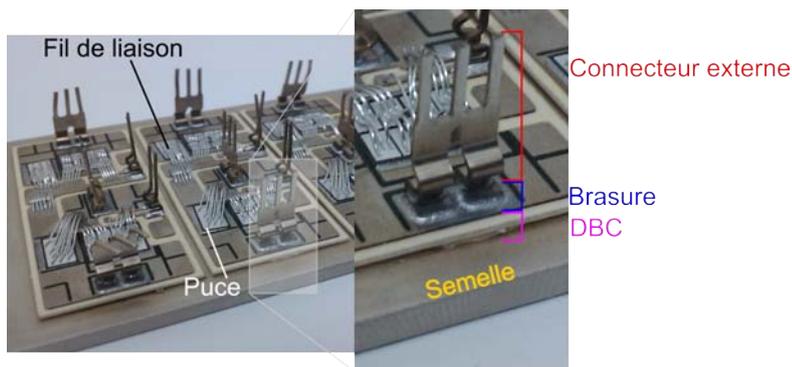


FIGURE 5 – Module de puissance avec connecteurs brasés.

Historiquement, la première liaison directe métal/céramique a été développée dès le milieu des années 70 par Sun et Burgess [27,28]. Le terme de *direct bonding metal* qualifiait à l'origine la liaison chimique créée entre le métal et la céramique cependant, dans le domaine de l'électronique, cette expression désigne maintenant l'ensemble de la structure métal/céramique/métal. Le *Direct Bonding Copper* (DBC) a été tout particu-

lièrement étudié et développé. Plus récemment, la méthode été adaptée à l'aluminium, il s'agit alors de *Direct Bonding Aluminium* (DBA). L'oxyde d'aluminium (aussi dénommé *alumine* et de formule chimique Al_2O_3) est la céramique la plus utilisée parmi les substrats céramiques métallisés. Néanmoins pour des applications hautes températures ses performances ne sont plus suffisantes, le nitrure d'aluminium (AlN) est alors à privilégier. Les principales caractéristiques de ces matériaux sont récapitulées figure 4. Des montages mettant en jeu de l'oxyde de béryllium (BeO) ou du nitrure de silicium (Si_3N_4) existent aussi. L'utilisation du premier est marginale de part la toxicité du matériau quant à Si_3N_4 son usage est réservé à un type de montage différent de celui présenté figure 1 où le substrat céramique est pris en sandwich entre deux fines couches de métal (cuivre ou aluminium).

Des connecteurs qui relient le module à l'extérieur peuvent être brasés sur la couche supérieure du substrat céramique métallisé (Fig. 5). Cependant afin de s'affranchir des risques de défaillances liés à l'emploi de brasures, de nouvelles solutions technologiques où le connecteur fait directement partie du substrat métallisé ont été développées (Fig. 1 p. 10) [10].

La semelle

La semelle est la partie la plus épaisse de l'assemblage, son rôle est avant tout de limiter les déformations du système. Pour cela il est nécessaire d'employer un matériau rigide et ayant un coefficient d'expansion thermique contrôlé. De plus la semelle doit aussi être capable de dissiper efficacement la chaleur induite par la puce électronique lors de son fonctionnement. Il est donc nécessaire d'utiliser un matériau ayant une forte conductivité thermique d'autant plus qu'elle peut être associée à un drain thermique (tel qu'un radiateur par exemple) [29].

Le cuivre est généralement employé en tant que semelle pour ses excellentes propriétés thermomécaniques. De plus, d'un point de vue industriel, ce matériau est abondant, peu onéreux et facilement usinable. Cependant, sa densité relativement élevée est problématique dans le cas d'applications embarquées où le poids est un critère déterminant. Dans ces cas là, l'aluminium lui est préféré même si sa conductivité thermique est plus faible et son coefficient d'expansion thermique plus élevé (Fig. 6) [6, 30–32].

Ces solutions simples trouvent néanmoins leurs limites lors de montages nécessitant de fortes puissances et de hautes températures. Dans ce cas là, il est absolument indispensable d'utiliser un matériau ayant un coefficient de dilatation plus faible que celui des métaux précédemment cités tout en ayant si possible une conductivité thermique plus élevée. Deux approches ont été développées afin d'obtenir de meilleures performances, il s'agit d'alliages (Cu-W, Cu-Mo, ©Invar ou ©Kovar) ou de matériaux composites (Cu/fibres de carbone, Cu/diamant, Al/SiC ou encore Ag/diamant par exemples) [6, 31, 32]. Il est à noter pour les matériaux composites que la matrice peut éventuellement être un alliage basé sur le métal présenté. Cependant malgré les avantages spécifiques à chacune de ces solutions, elles peuvent aussi présenter des défauts :

- L'utilisation de cuivre dans un alliage ou un composite permet d'obtenir de bonnes propriétés thermiques mais au détriment d'une densité très élevée.
- L'utilisation du diamant permet d'obtenir d'excellentes performances cependant l'usinage des pièces est très coûteux.

- L'Invar et le Kovar permettent d'obtenir une semelle peu sensible à la dilatation thermique mais la densité de ces matériaux est élevée tout en ayant une conductivité thermique très faible.
- Le recours au composite Al/SiC est l'une des alternatives les plus employées de part la faible densité du matériau et un coefficient d'expansion thermique proche de celui de l'alumine. Cependant sa conductivité thermique reste inférieure à celle de l'aluminium.
- L'utilisation d'une matrice en argent permet de bonnes performances thermiques et mécaniques tout en ayant un matériau peu sensible à l'environnement chimique cependant le coût d'une telle semelle est très élevé.

Matériaux	Métaux			Alliages				Composites			
	Al	Cu	Ag	Cu-W	Cu-Mo	Invar®	Kovar®	Cu/30%vol fibres de carbone	Cu/50%vol diamant	Al/75%vol SiC	Ag/60%vol diamant
Conductivité thermique (W/m.K)	200-220	400	425	170-220	135-170	15-90	17	300	300-650	170-235	400-600
Coefficient d'expansion thermique ($10^{-6}/K$)	23	17	19,7	6-8	6-9	0,5-7	5	7-10	5-9	8-9	6
Masse volumique (g/cm^3)	2,7	8,9	10,5	15-17	10	8	8	7	5-6	3	6

FIGURE 6 – Propriétés de différents matériaux pouvant être employés en tant que semelle [31,33–44].

0.1.3 Dégradations des constituants d'un module

Les fils de liaison

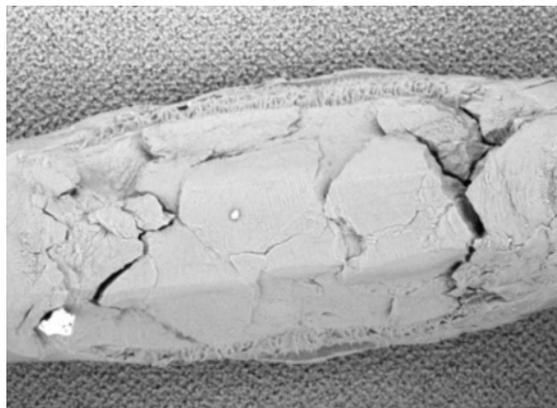


FIGURE 7 – Micrographie du phénomène d'écaillage d'un fil de liaison en alliage d'aluminium.

Les fils de liaison sont, pour la très grande majorité du marché, en alliage d'aluminium. L'application de cycles thermiques sur les fils conduit à un phénomène d'écaillage (Fig. 7) lui-même dû à la croissance des grains constituant le fil. Ceci peut être visualisé par une analyse par diffraction d'électrons rétrodiffusés (*Electron BackScattered Diffraction* ou EBSD). La figure 8 met ainsi en évidence des grains de petite taille avant le cyclage

(micrographie a) et des grains de très grande taille après un millier de cycles entre $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $250\text{ }^{\circ}\text{C}$ (micrographie b). Ce phénomène est aussi constaté pour des cycles ayant une température maximale de $150\text{ }^{\circ}\text{C}$, néanmoins pour des raisons cinétiques la croissance est moins marquée pour un nombre de cycles équivalent.

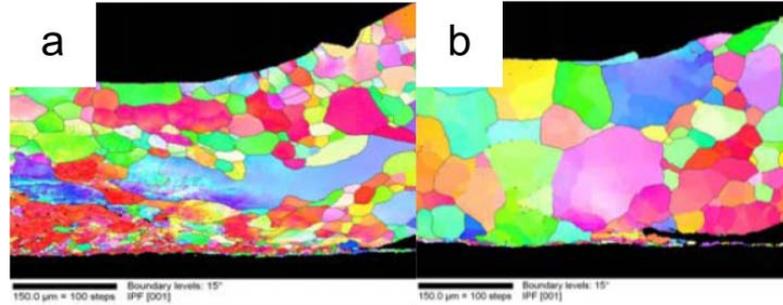


FIGURE 8 – Mise en évidence, par diffraction d’électrons rétrodiffusés, de la taille des grains dans un fil de liaison avant (a) et après (b) cyclage thermique.

Conjointement au phénomène d’écaillage, deux autres types de dégradations peuvent intervenir. Il s’agit de la levée des fils et des fractures aux pieds (Fig. 9) [5]. Dans les deux cas, ces dégradations surviennent à cause des différences de dilatation entre le fil et le substrat. Le cas le plus courant étant un fil en aluminium (coefficient d’expansion thermique de $23 \times 10^{-6} /\text{K}$) brasé sur un substrat en silicium (coefficient d’expansion thermique de $2,6 \times 10^{-6} /\text{K}$). Enfin, bien que de nombreux alliages aient été développés pour répondre aux besoins spécifiques des fils de liaisons dans l’électronique, leur durée de vie reste limitée par la croissance d’intermétalliques ou d’oxydes qui rendent le fil plus cassant et qui génèrent localement des points chauds entraînant la casse du matériau [20–22].



FIGURE 9 – Exemples de micrographies d’endommagement de fils de liaisons. a et b : Fractures au pied ; c : Levée du fil [5].

Les métallisations

Les cycles thermiques ont aussi un effet sur les métallisations [5]. Plus l’amplitude et la température maximale sont importantes et plus les dégradations des métallisations seront visibles. Néanmoins, en dessous de $110\text{ }^{\circ}\text{C}$, les dégradations restent négligeables. Les micrographies présentées figure 10 mettent ce phénomène en évidence sur des métallisations de puces IGBT (*Insulated Gate Bipolar Transistor*) dans différentes conditions de cyclage.

L’application d’une couche de passivation apparaît donc nécessaire afin de protéger les métallisations [5]. La micrographie de la figure 11 met en évidence l’effet protecteur d’une

couche de verre déposée sur une métallisation en aluminium d'une puce ayant subi des cycles thermiques dus à la répétition de courts-circuits. Il peut être constaté que la partie recouverte par la couche de passivation ne présente pas d'endommagement contrairement à la zone non protégée qui a été fortement dégradée par les cycles thermiques.

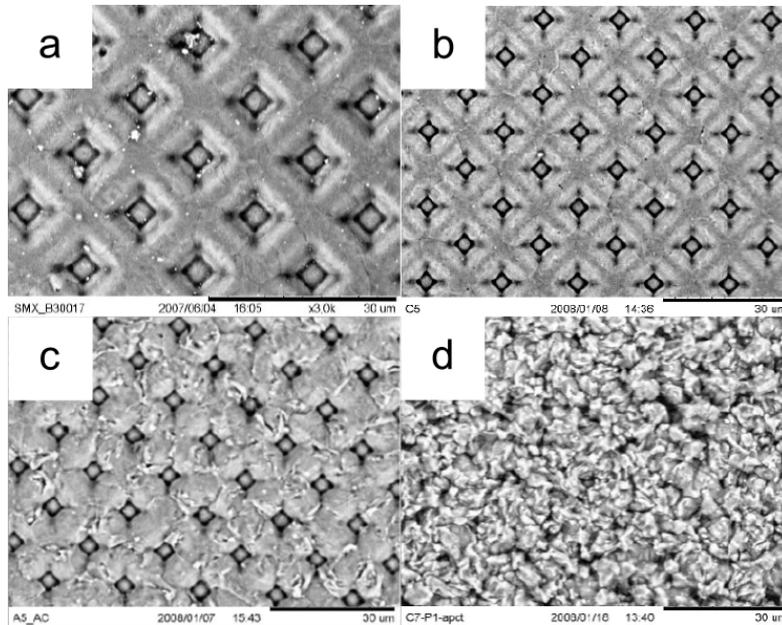


FIGURE 10 – Métallisations ayant subies différentes conditions de cyclage thermique :
a : métallisation avant cyclage ;
b : métallisation après 250 000 cycles avec $T_{min} = 35 \text{ }^{\circ}\text{C}$ et $T_{max} = 95 \text{ }^{\circ}\text{C}$;
c : métallisation après 100 000 cycles avec $T_{min} = 90 \text{ }^{\circ}\text{C}$ et $T_{max} = 150 \text{ }^{\circ}\text{C}$;
d : métallisation après 47 000 cycles avec $T_{min} = 90 \text{ }^{\circ}\text{C}$ et $T_{max} = 170 \text{ }^{\circ}\text{C}$.

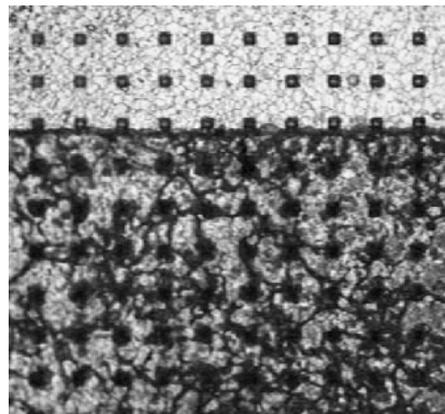


FIGURE 11 – Mise en évidence de la protection par un verre passivant d'une métallisation en aluminium soumise à des courts-circuits répétitifs. En haut zone protégée par la couche de passivation, en bas zone sans protection.

Les céramiques

Les cycles thermiques déforment d'une manière non homogène les différentes pièces constituant le module de puissance. Les brasures et les parties métalliques sont capables de se déformer sans casser mais ce n'est pas le cas des céramiques qui présentent un caractère fragile. La micrographie présentée figure 12 a met en évidence la fissuration d'une céramique en alumine sous l'effet de la déformation de son support métallique.

De plus, la répétition des cycles thermiques entraîne petit à petit l'écroutissage des pièces métalliques. Ainsi au fur et à mesure que le nombre de cycles augmente, les contraintes mécaniques augmentent dans la céramique à cause du durcissement du métal. Le maximum de contraintes est très localisé et apparaît aux coins des métallisations et entraîne la rupture de la céramique. La micrographie présentée figure 12 b met en évidence un substrat céramique en nitrure d'aluminium qui a cassé à cause de l'écroutissage de la métallisation en cuivre auquel il est lié. Cependant, il peut aussi arriver que la céramique se brise spontanément dès la 1ère utilisation. Dans ce cas, la déformation plastique du support ne peut être invoquée afin d'expliquer ce phénomène. La cause de la casse vient alors de l'existence d'un défaut de trop grande taille générant des contraintes supérieures à la contrainte à rupture du matériau entraînant ainsi la casse [5]. La micrographie présentée figure 12 c met en évidence la propagation d'une fissure dans la céramique à partir d'une inhomogénéité de la brasure qui génère localement une forte contrainte [5].

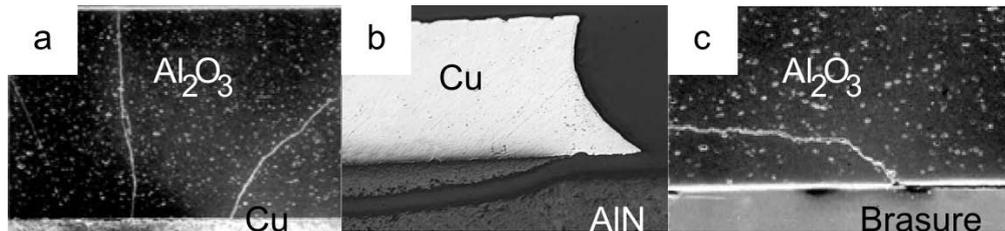


FIGURE 12 – Micrographies de différentes ruptures de céramiques. a : rupture d'alumine par déformation du support. b : rupture de nitrure d'aluminium par écroutissage du support. c : rupture d'alumine à cause de l'inhomogénéité de la brasure [5].

Les brasures

De nombreuses solutions ont été et sont encore développées afin de remplacer efficacement les brasures au plomb. Cependant ces solutions étant développées depuis peu, il n'y a donc que peu de recul concernant les problèmes de vieillissements et d'endommagements par les cycles thermiques, eux-mêmes imposés par les modules de puissance et l'environnement. Le principal mode de dégradation est la fracture de la brasure (Fig. 13 a). La fracture survient généralement suite à la formation locale d'intermétalliques. Si les cycles de température atteignent des températures assez élevées comparées à la température de fusion de la brasure ($0,8T_{fusion}$ ou plus) alors un autre mode d'endommagement peut être observé, il s'agit de déplacement de matière au sein même de la brasure. Ces déplacements conduisent à terme à la formation de porosités (Fig. 13 b) nuisibles au bon fonctionnement du dispositif [5, 7, 11–13].

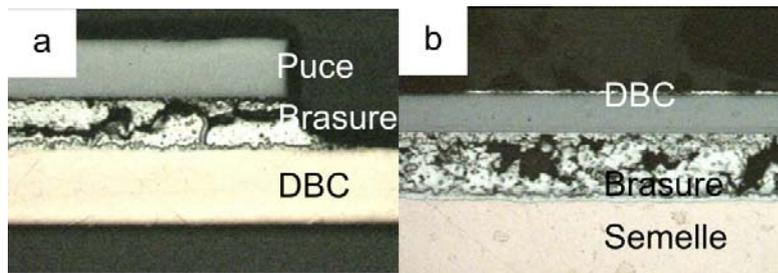


FIGURE 13 – a : micrographie d'une brasure fracturée. b : micrographie de porosités dans une brasure [5].

Les isolants d'encapsulation

Actuellement, aucune solution d'encapsulation n'est réellement satisfaisante pour les modules travaillant à haute tension et haute température. Les conditions de dégradations varient fortement en fonction des cycles de température imposés et de l'environnement mais de grandes tendances peuvent cependant être dégagées. Ainsi d'une manière générale les isolants d'encapsulation développés à partir de polymères ne sont pas capables de résister aux dégradations causées par les hautes températures sur de longues durées (milliers d'heures) [17, 18]. Les verres borosilicates sont une autre grande famille d'isolants d'encapsulation. De part leur température de transition vitreuse élevée, ils peuvent résister aux hautes températures de manière bien plus efficace que les polymères. Par contre, la conductivité ionique de ces matériaux augmente avec la température ce qui peut conduire à des situations critiques où le matériau ne présente plus un caractère diélectrique suffisamment marqué pour pouvoir continuer à jouer son rôle d'isolant électrique.

0.1.4 Conclusion

Les défaillances des modules de puissance sont dues à deux principaux facteurs : d'une part l'environnement chimique, responsable d'oxydations prématurées ou de corrosion des matériaux, d'autre part l'ensemble des contraintes thermomécaniques induites par la répartition des températures au sein de l'assemblage, par la géométrie du montage et par les propriétés des différents matériaux utilisés. Afin de minimiser au mieux ces dernières, l'architecture du module doit être optimisée de même que les matériaux employés pour les divers constituants. Le matériau utilisé en tant que semelle ou drain thermique correspond à la pièce la plus grosse d'un module. En tant que telle, elle impose au reste de l'assemblage ses propres déformations. Il est donc absolument nécessaire d'employer un matériau performant afin de limiter au mieux les contraintes thermomécaniques dans le système. Des solutions ont déjà été proposées au cours de ce chapitre bien que la liste ne soit pas exhaustive. Ainsi une autre alternative, à savoir des composites aluminium renforcés par des fibres de carbone, va être proposée dans la suite de ce travail.

0.2 Composite aluminium/fibres de carbone : présentation des constituants

0.2.1 L'aluminium

Historique

Alors que l'alun ($\text{KAl}(\text{SO}_4)_2, 12 \text{H}_2\text{O}$) est utilisé depuis des millénaires pour ses propriétés antiseptiques mais aussi pour teinter les vêtements, il a fallu attendre 1754 et les travaux du chimiste allemand Andreas Sigismond Marggraf pour isoler la « terre d'alun », qui sera renommée alumine par le français Louis-Bernard Guyton de Morveau en 1787.

Deux ans plus tard, Laurent Antoine Lavoisier formule une hypothèse selon laquelle certaines « terres » considérées jusque là comme des corps simples seraient peut-être des oxydes. C'est en 1827 que cette hypothèse sera vérifiée avec les travaux de l'allemand Friedrich Wöhler qui réussit pour la première fois à obtenir de la poudre d'aluminium en réduisant non pas de l'alumine mais du chlorure d'aluminium par du potassium. Cette poudre impure n'a suscité que peu d'intérêt car elle était attaquée très facilement par de l'eau chaude ! En 1854, le français Henri Sainte-Claire Deville réalise la réduction du chlorure d'aluminium par du sodium et obtient de l'aluminium pur. La même année, le chimiste allemand Robert Wilhelm Bunsen expérimente une méthode d'obtention de l'aluminium par électrolyse.

En 1857, le premier site de production industrielle d'aluminium voit le jour à Nanterre.

En 1886, le français Paul Héroult ainsi que l'américain Charles Martin Hall découvrent de manière indépendante un procédé de fabrication de l'aluminium par électrolyse de l'alumine dans un bain de cryolithe fondue ($3\text{NaF}, \text{AlF}_3$) à $950 \text{ }^\circ\text{C}$. L'année d'après, en 1887, le procédé « Bayer », du nom du chimiste australo-hongrois Karl Bayer, est mis au point. La méthode permet d'obtenir facilement de grandes quantités d'alumine à partir de la bauxite (minerai particulièrement riche en alumine, oxydes de fer et silice, son nom est tiré du village de Baux-de-Provence dans les Bouches-du-Rhône). Il devient donc possible d'obtenir par le procédé Bayer de grandes quantités d'alumine qui sera transformée en aluminium par le procédé de Héroult et Hall. Bien que les méthodes actuelles aient bénéficiées de plus d'un siècle d'améliorations, le procédé reste basé sur le principe de ces méthodes. Ainsi l'aluminium qui était jusque là considéré comme un métal précieux va devenir l'un des métaux les plus produits au monde avec actuellement plus de 3 millions de tonnes produites par mois dans le monde.

Propriétés

L'aluminium est un métal alliant de nombreuses propriétés très intéressantes - non pas de manière absolue mais - par le fait que ce matériau possède une très faible masse volumique ($\rho = 2,7 \text{ g/cm}^3$), tout en étant très stable chimiquement grâce à la fine couche de passivation (de l'ordre de 10 nanomètres d'épaisseur) le recouvrant spontanément à l'air.

L'aluminium présente une résistivité de $30 \Omega \times m$ et une conductivité thermique proche de $240 \text{ W}/(m \times K)$ dans ses nuances les plus pures, contre $220 \text{ W}/(m \times K)$ pour une pureté à 99,5 %. Ces valeurs peuvent être comparées à celles du cuivre qui sont respectivement $17 \Omega \times m$ et $400 \text{ W}/(m \times K)$ mais dont la masse volumique ($8,96 \text{ g/cm}^3$) est le triple de celle de l'aluminium.

D'un point de vue mécanique, l'aluminium est bien trop ductile pour être comparé aux aciers. Par contre, des centaines d'alliages commerciaux ont été développés pour répondre à des besoins spécifiques. Ces alliages peuvent être divisés en deux grandes catégories :

- Les alliages de corroyage (c'est-à-dire des alliages dont le lingot a été déformé à chaud par une méthode de laminage, de filage etc. . .). Parmi les propriétés recherchées, il peut être cité tout particulièrement les propriétés de résistances, que ce soit à la fissuration, à la fatigue ou encore à la corrosion.
- Les alliages de moulage sont coulés directement en produits finis, pour cela ils doivent présenter un faible retrait lors de la solidification afin d'éviter en particulier la formation de criques. Ces alliages proviennent pour la majorité d'aluminium recyclé plutôt que de d'aluminium primaire.

Les alliages sont classés de la manière suivante [45] :

- 1XXX aluminium ayant une pureté de 99,0 % ou plus ;
 2XXX nuance de cuivre ;
 3XXX nuance de manganèse ;
 4XXX nuance de silicium ;
 5XXX nuance de magnésium ;
 6XXX nuance de magnésium et de silicium ;
 7XXX nuance de zince ;
 8XXX autre éléments ;
 9XXX non utilisé.

A titre indicatif les propriétés de quelques alliages sont présentées figure 14.

Alliage	Elément	%atomique	Densité	Coefficient d'expansion thermique ($10^{-6}/K$)	Conductivité thermique (W/m.K)	Résistivité ($\mu\Omega.m$)	Module d'Young (Gpa)
Al	Al	99,5	2,70	24,0	218	3,0	69
		99,0	2,70	24,0	209	3,1	
Al-Cu	Cu	4,5	2,75	22,5	180	3,6	71
		8	2,83	22,5	180	3,6	
		12	2,93	22,5	138	4,7	
Al-Mg	Mg	3,75	2,66	22,0	134	5,1	71
		5	2,65	23,0	130	5,6	
		10	2,57	25,0	88	8,6	
Al-Si-Cu	Si	10	2,74	20,0	100	6,6	71
	Cu	3					
	Si	4,5	2,76	21,0	134	4,9	
	Cu	3					
Al-Si-Cu-Mg	Si	17	2,73	18,0	134	8,6	88
	Cu	4,5					
	Mg	0,5					

FIGURE 14 – Propriétés de quelques alliages d'aluminium [45].

Dans le cas de cette étude, la poudre d'aluminium utilisée est commercialisée par « Poudres Hermillons » sous le nom Al F3731. La pureté est de 99,97%. Une spécificité de cette poudre réside dans sa morphologie qui contrairement à de nombreuses poudres n'est pas sphérique mais quelconque et ce sur une large gamme de taille de particules (Fig. 15).

Les particules n'étant pas sphérique, il ne sera donc pas proposé de granulométrie de cette poudre.

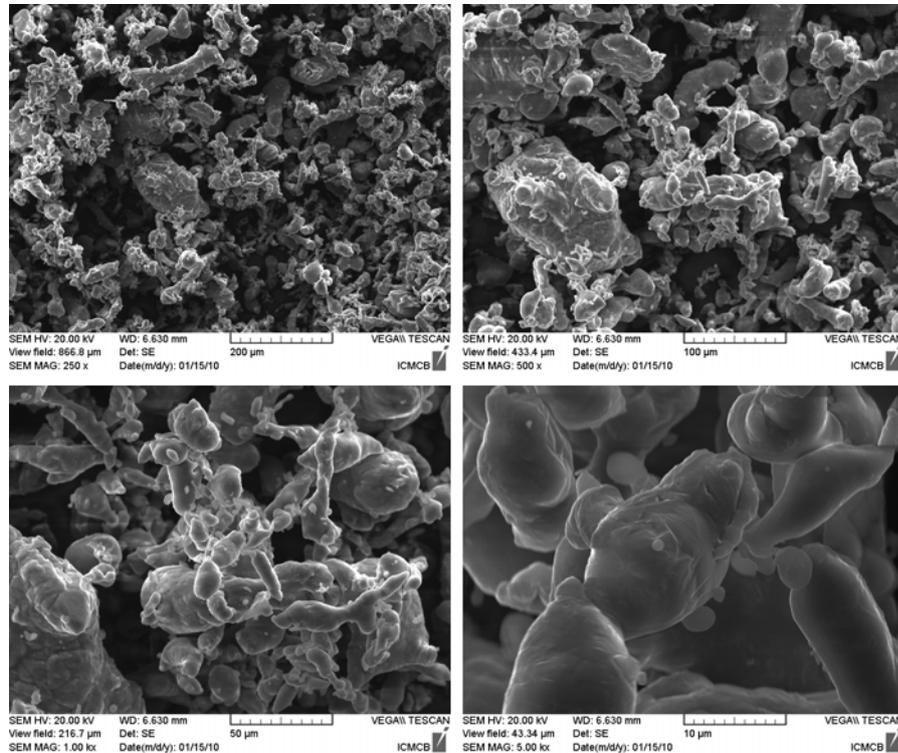


FIGURE 15 – Micrographies de la poudre d'aluminium F3731.

0.2.2 Les fibres de carbone

Les fibres de carbone, sont devenues populaires depuis une dizaine d'année grâce à des applications grand public sollicitant leurs excellentes propriétés mécaniques. Elles ont cependant été utilisées pour la toute première fois en 1879 par Thomas Edison en tant que filament pour la première lampe à incandescence [46]. Il s'agissait d'une forme très rustique de fibre qui était en fait une fibre de bambou ayant été carbonisée. De nos jours, les fibres de carbone sont élaborées à partir de trois types de précurseur : la cellulose (aussi dénommée rayonne), le polyacrylonitrile (PAN) ou bien le brai. Les structures et donc les propriétés pouvant être obtenues sont différentes en fonction du précurseur. Le principe général étant de faire subir des traitements thermiques aux précurseurs afin d'obtenir une fibre de carbone. Les fibres obtenues à partir de cellulose présentent le plus grand nombre de défaut, au contraire celle obtenues à partir de PAN sont les plus proches de la structure idéale du graphite.

En fonction du précurseur, les fibres de carbone sont dénommées ex-cellulose, ex-PAN ou ex-brai. Une autre dénomination courante est de les définir par leur module d'Young, les fibres seront ainsi divisées entre « fibres bas module » ($E \approx 250 \text{ GPa}$) et « fibres haut module » ($E \approx 800 \text{ GPa}$).

Fibres ex-cellulose

De la cellulose est chauffée entre 1000 et 1500 °C sous atmosphère inerte afin d'obtenir un composé carboné qui pourra être traité à plus de 2000 °C pour obtenir un meilleur arrangement cristallographique au sein de la structure. Le développement d'autres méthodes de production conduisant à l'obtention de fibres de meilleure qualité a rendu obsolète le procédé de fabrication de fibres de carbone à partir de cellulose dont le pic de production a été atteint aux alentours des années 1970 [46, 47].

Fibres ex-PAN

Les monofilaments de polyacrylonitrile sont étirés afin de leur conférer une orientation privilégiée. Cette opération est réalisée à chaud sur des rouleaux chauffants ou à l'aide de vapeur d'eau. Les filaments sont ensuite oxydés à l'air entre 200 et 300 °C durant 0,5 à 3 h ce qui entraîne la réticulation du matériau : les chaînes de PAN qui étaient jusqu'ici isolées les unes des autres réagissent entre elles pour former un polymère tridimensionnel. Le polymère étant tridimensionnel, il est donc infusible. L'application de plus hautes températures entraînera donc sa dégradation sans jamais passer par un état liquide.

En fonction des propriétés désirées, un ou deux traitements thermiques seront nécessaires : il s'agit de la carbonisation suivie d'une éventuelle graphitisation. La carbonisation consiste à chauffer le précurseur polymère entre 700 et 1500 °C sous une atmosphère inerte durant 2 à 10 minutes. Il en résulte une perte de masse d'environ 50 % évacuée sous forme de gaz (principalement de la vapeur d'eau, des dérivés carbonés mais aussi azotés). Durant cette étape un fort réarrangement structural est observé : il y a apparition de nombreuses zones cristallines mais peu développées. De plus de nombreux hétéroatomes sont présents dans la structure, il s'agit surtout d'azote (jusqu'à 10 %*massique*), d'oxygène (moins de 1 %*massique*) et d'hydrogène (moins de 1 %*massique*) n'ayant pas été éliminés par le traitement thermique. Les fibres ainsi traitées présentent une haute résistance mais un module faible.

L'obtention de fibres haut module implique une étape de graphitisation entre 2000 et 3000 °C sous gaz inerte pendant 1 à 2 minutes. A l'issue de la graphitisation, la grande majorité des hétéroatomes est éliminée (la fibre est alors constituée de plus de 99 %*massique* de carbone) permettant l'accroissement des zones cristallisées sous forme de graphite et une hausse de la densité. Plus le traitement aura été efficace et plus la microstructure sera proche de celle du graphite sur des longueurs de corrélations importantes et donc plus les propriétés seront proches de celle de la structure idéale. Il sera noté en particulier les valeurs élevées du module d'où l'appellation de fibres haut module [46].

Fibres ex-brai

Les fibres ex-brai sont formées à partir de brai (produit organique pouvant être obtenu par distillation de la houille ou du pétrole) présentant de 3 à 8 cycles aromatiques qui réagissent entre eux à des températures de l'ordre de 350 °C à 450 °C (sous atmosphère neutre) pour former des structures condensées de 20 à 40 cycles préfigurant la structure du graphite. Le matériau est alors filé afin de déterminer une direction d'orientation privilégiée. En fonction des conditions opératoires, la texture de la fibre sera comprise entre les deux textures extrêmes qualifiées de radiale ou d'oignon.

De même que pour les fibres ex-PAN, une étape de carbonisation (jusqu'à 1500 °C) suivie d'une étape de graphitisation (plus de 3000 °C) sont nécessaires afin d'obtenir des

fibres haut module. Néanmoins la résistance en traction des fibres ex-brai reste inférieure à celle des ex-PAN de par la grande difficulté à éliminer les impuretés déjà présentes dans le précurseur [46].

Fibres CN80C et fibres XN100

Les fibres de carbone utilisées dans le cas de cette étude sont commercialisées par « Nippon Graphite Corporation » sous les noms CN80C et XN100. Ces fibres atteignent une masse volumique ρ de $2,17 \text{ g/cm}^3$. Les propriétés, qui seront utilisées au cours de cette étude, sont les suivantes :

- coefficient de dilatation thermique (α) (quel que soit le type de fibres) :
 - dans le sens longitudinal de la fibre, $\alpha_{\parallel} = -1 \times 10^{-6}/K$,
 - dans le sens transverse de la fibre, $\alpha_{\perp} = 12 \times 10^{-6}/K$;
- conductivité thermique (λ) :
 - fibres CN80C :
 - dans le sens longitudinal de la fibre, $\lambda_{\parallel} \approx 320W/(m.K)$,
 - dans le sens transverse de la fibre, $\lambda_{\perp} \approx 10W/(m.K)$,
 - fibres XN100 :
 - dans le sens longitudinal de la fibre, $\lambda_{\parallel} \approx 900W/(m.K)$,
 - dans le sens transverse de la fibre, $\lambda_{\perp} \approx 10W/(m.K)$.

Remarque :

- *Les propriétés thermiques de ces fibres montrent une meilleure graphitisation des fibres XN100 que des CN80C, les fibres XN100 devront donc être considérées comme moins réactives que les fibres CN80C Chang2006. En l'absence de précisions de la part du fabricant, il est difficile de déterminer si ces fibres sont ex-PAN ou ex-brai. Par contre, une hypothèse « ex-cellulose » est à exclure car ce précurseur ne permet pas d'atteindre les propriétés présentées.*
- *Les fibres de carbone (aussi bien CN80C que XN100) sont vendues ensimées dans un polymère créant ainsi des mèches millimétriques ne permettant pas d'atteindre les objectifs de cette étude, il sera donc nécessaire de préparer les fibres afin de pouvoir les utiliser efficacement. Le paragraphe 2.2.1 Préparation des fibres de carbone p. 55 abordera cela en détails.*

0.3 Conclusion

Il vient d'être montré que l'industrie de l'électronique de puissance fait face à de nombreux défis afin de pouvoir commercialiser des modules haute tension qui soient fiables malgré - entre autres - un environnement thermique pouvant évoluer de la température ambiante (voir même des températures de l'ordre de $-50 \text{ }^{\circ}\text{C}$ pour des applications embarquées) jusqu'à plusieurs centaines de degrés. L'optimisation du matériau de semelle (pouvant aussi servir de matériau pour le drain thermique) fait partie des solutions qui doivent être apportées pour que cette industrie puisse continuer à progresser. Il est proposé ici, une solution sur la base d'un matériau composite aluminium-fibres de carbone dont les constituants viennent d'être décrits. Le prochain chapitre sera basé sur une étude théorique des propriétés thermomécaniques de composites aluminium-fibres de carbone ainsi que leurs effets en tant que semelle sur un assemblage électronique simplifié.

1.1 Introduction à la méthode des éléments finis

La méthode des éléments finis consiste à calculer la solution approchée d'un problème en le discrétisant en un nombre finis d'éléments. Plus la discrétisation (le terme de maillage est généralement employé) sera fine et plus l'erreur sera réduite. Par contre le temps de calcul nécessaire à la convergence du résultat sera plus grand étant donné qu'il y aura un plus grand nombre d'éléments définissant le système [48–50]. Le procédé peut-être divisé de la manière suivante :

- définition des géométries ;
- définition des conditions initiales ;
- maillage du problème ;
- résolution du problème ;
- traitement des résultats.

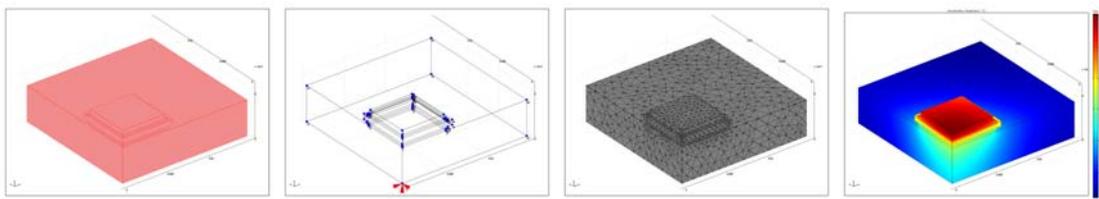


FIGURE 1.1 – Illustration des différentes étapes d'une modélisation par éléments finis. De gauche à droite : création de la géométrie, définition des conditions initiales, maillage de la géométrie et post-traitement.

La définition des géométries (Fig. 1.1) consiste à modéliser la forme des différents éléments du système. La modélisation peut se faire en une, deux ou trois dimensions d'espace en fonction des besoins, mais plus le nombre de dimension est élevé et plus le temps de calcul est grand. Cependant si le système possède des symétries alors il est possible de ne modéliser qu'une partie du système permettant ainsi soit un gain de temps pour un même maillage, soit un gain en précision (maillage plus raffiné) pour un même

temps de calcul.

La définition des conditions initiales (Fig. 1.1) consiste à implanter l'ensemble des paramètres initiaux du système. Il s'agit de définir les propriétés des volumes, des (inter)faces, des arêtes et enfin des sommets de l'ensemble de la géométrie. Lors d'une simulation faisant intervenir un module de calcul mécanique, il est nécessaire de définir un point fixe dans la géométrie servant de point de référence et permettant ainsi la convergence du calcul car sinon il existerait une infinité de solutions possibles à la résolution du calcul. Si le système possède un axe de symétrie, alors le point fixe devra appartenir à cet axe.

exemples de paramètres :

- *paramètre de volume : valeurs du module d'Young selon les axes x , y et z ;*
- *paramètre d'interface : coefficient d'échange thermique entre deux matériaux ;*
- *paramètre d'arête : possibilité de déformer ou non une arête ;*
- *paramètre de sommets : application d'une charge en un point.*

Le maillage consiste à subdiviser la géométrie en un ensemble d'unités élémentaires (Fig. 1.1). La division permet donc de transposer le problème initial (continu) en un problème discret c'est à dire ayant un nombre fini d'éléments. Les éléments constitutifs du maillage ne sont pas forcément de même taille sur l'ensemble de la géométrie. Des mailles grossières pourront être utilisées là où les fonctions étudiées subissent de faibles variations tandis que des mailles fines seront nécessaires lors de fortes variations d'une fonction.

exemples de maillages : en 2D : maille triangulaire ou rectangulaire ; en 3D : maille pyramidale ou parallélépipédique.

La résolution du problème consiste à calculer une solution pour chacune des mailles du système. En conséquence, plus le nombre de mailles est important et plus le temps de calcul est important. De plus, la solution calculée n'est pas une solution exacte. En effet, le problème initial ayant été discrétisé, la solution est donc une solution plus ou moins approchée en fonction des critères de tolérances imposés lors de la résolution.

exemples de résolutions : la solution d'un problème peut-être donnée pour un état stationnaire ou bien résolue dans le temps.

Le traitement des données (aussi appelé post-traitement) consiste à représenter les données accessibles à partir des valeurs de la solution calculée (Fig. 1.1).

exemple de traitement des données : en associant un code couleur à chacune des mailles il est possible d'obtenir une cartographie des valeurs prises par une variable sur l'ensemble de la géométrie étudiée.

Plusieurs modélisations à partir de calculs par éléments finis ont été réalisées. Une partie de ces modélisations a été faite à la fois sur ©Comsol Multiphysics et sur le code de calcul Zebulon, en collaboration avec Eric MARTIN professeur au Laboratoire des Composites ThermoStructuraux (LCTS, Bordeaux), à seule fin de vérifier la reproductibilité des solutions calculées. Les modélisations ayant servi à ces vérifications ne seront pas décrites ici. Néanmoins, les résultats des calculs présentent les mêmes tendances bien

que les valeurs exactes soient différentes. Par la suite, les modélisations ont été réalisées uniquement à partir de © Comsol Multiphysics version 3.5.

1.2 Modélisation de l'influence de la nature du drain thermique sur un montage électronique

1.2.1 Modélisation des matériaux

Les matériaux suivants ont été modélisés directement à partir de la base de données intégrée au logiciel de calcul :

- silicium (utilisé pour modéliser la puce) ;
- brasure « SnAg3.8Cu0.7 » (utilisé pour modéliser les joints de brasure) ;
- cuivre (utilisé pour les métallisations du substrat céramique métallisé et pour le drain thermique) ;
- alumine (utilisé pour la céramique du substrat céramique métallisé) ;
- alliage Al-6063-T83 (utilisé pour la semelle).

Les propriétés de ces matériaux sont récapitulées dans le tableau de la figure 1.2. La densité des matériaux est donnée à titre indicatif bien qu'elle ne soit pas nécessaire aux calculs réalisés. En ce qui concerne les propriétés thermiques, seule la conductivité thermique est nécessaire afin d'obtenir les cartes de températures à l'équilibre.

	Silicium	Brasure SnAg3.8Cu0.7	Cuivre	Alumine	Aluminium Al-6063-T83
Conductivité thermique [W/(m.K)]	163	70	400	35	201
Masse volumique [kg/m ³]	2330	7400	8900	3985	2700
Module d'Young [GPa]	131,00	4,16	110,00	390,00	69,00
Coefficient de Poisson	0,270	0,355	0,350	0,254	0,330
Coefficient d'expansion thermique [1e-6/K]	4	22	17	7	23

FIGURE 1.2 – Propriétés des matériaux de la base de donnée.

remarque : des modélisations mettant en jeu la cinétique du transfert de chaleur auraient nécessité la prise en compte de la capacité calorifique [51].

Les matériaux composites utilisés expérimentalement, dans le cadre de cette étude, sont renforcés par un grand nombre de fibres courtes de taille très inférieure à celle de la matrice. Cela pose un problème vis-à-vis de leur modélisation. En effet, il serait nécessaire pour cela d'utiliser une approche multi-échelle pour laquelle le logiciel utilisé n'est pas adapté. Afin de contourner ce problème, les matériaux composites ont été modélisés comme des matériaux homogènes équivalents. Il s'agit dans cette approche de remplacer un matériau réel par un matériau fictif qualifié d'homogène équivalent. Ce matériau fictif est modélisé de manière à avoir un champ de contraintes macroscopique identique à celui du matériau réel [52]. Cette approche présuppose une distribution homogène (mais pas forcément isotrope) du renfort dans la matrice.

1.2.2 Propriétés de Al30Cplan : composite à matrice d'aluminium renforcé par 30%_{vol} de fibres de carbone réparties de manière homogène dans un plan.

remarque : les dénominations x , y et z correspondent aux axes définis en trois dimensions où x et y forment un plan horizontal tandis que z définit la verticale. Lors de la définition des propriétés des matériaux composites la nomenclature tridimensionnelle sera utilisée. Dans le cas des simulations 2D, l'axe x définira l'horizontal alors que y définira la verticale. Les propriétés selon l'axe x en 2D correspondront à celles de l'axe x en 3D, tandis que celles de l'axe y en 2D correspondront à celles de l'axe z en 3D.

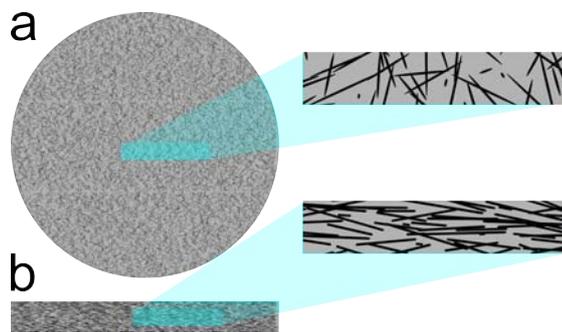


FIGURE 1.3 – Répartition des fibres de carbone au sein de la matrice par élaboration par compression uniaxiale à chaud. a : vue selon l'axe de compression. b : vue perpendiculairement à l'axe de compression.

La méthode de frittage sous charge uniaxiale permet d'un point de vue expérimental l'obtention de composite dont les renforts fibreux sont alignés dans un plan orthogonal à l'axe de compression. Il peut alors être considéré que les fibres sont orientées aléatoirement selon un plan. Cependant, cet alignement n'est pas parfaitement inscrit dans un plan, il convient de considérer que les fibres sont légèrement désorientées hors de ce plan ($\pm 10^\circ$, Fig. 1.3). Le pourcentage de renfort utilisé est de 30% en volume.

Les valeurs des propriétés mécaniques utilisées sont les suivantes :

- **Module d'Young**

$$E(\text{composite, plan}) = 100 \text{ GPa}$$

$$E(\text{composite, transverse}) = 40 \text{ GPa}$$

- **Coefficient d'expansion thermique**

$$\alpha(\text{composite, plan}) = 16 \times 10^{-6} / K$$

$$\alpha(\text{composite, transverse}) = 20 \times 10^{-6} / K$$

- **Conductivité thermique**

$$k(\text{composite, plan}) = 265 \text{ W}/(m \times K)$$

$$k(\text{composite, transverse}) = 150 \text{ W}/(m \times K)$$

Les valeurs de la conductivité thermique ont été calculées en utilisant la loi des mélanges : $k(\text{composite, } i) = (1 - a) \times k(\text{matrice, } i) + a \times k(\text{fibres, } i)$

avec :

– a : fraction volumique de renfort.

- i : la direction correspondante à l'axe x , y ou z .
- $k(\text{composite}, i)$: la conductivité thermique du composite selon i .
- $k(\text{matrice}, i)$: la conductivité thermique de la matrice selon i . La matrice étant isotrope, on a ici $k(\text{matrice}, x) = k(\text{matrice}, y) = k(\text{matrice}, z) = k(\text{matrice})$.
- $k(\text{fibre}, i)$: la conductivité thermique équivalente des fibres dans la direction i . Les fibres étant réparties dans un plan, $k(\text{fibre}, x)$ est donc égale à $k(\text{fibre}, y)$.

Calcul de $k(\text{fibre}, i)$:

Il est possible d'obtenir de manière commerciale des fibres de carbone ayant une conductivité thermique selon leur axe de $900 \text{ W}/(m \times K)$. La conductivité dans la direction perpendiculaire à l'axe étant de l'ordre de $10 \text{ W}/(m \times K)$ au mieux. La conductivité thermique équivalente de ces fibres orientées aléatoirement dans le plan de la matrice serait alors :

$$k(\text{fibre}, \text{plan}) = \frac{(900+10)}{2} = 455 \text{ W}/(m \times K)$$

Le facteur $1/2$ correspondant au fait qu'il n'y a pas de raison de privilégier l'une des deux directions du plan.

$$\text{Donc } k(\text{fibre}, x) = k(\text{fibres}, y) = 455 \text{ W}/(m \times K)$$

Par contre selon l'axe z , $k(\text{fibre}, z)$ est égale à la conductivité transverse des fibres de carbone, soit $10 \text{ W}/(m \times K)$.

D'où les valeurs suivantes de $k(\text{composite}, i)$:

$$\begin{aligned} k(\text{composite}, \text{plan}) &= k(\text{composite}, x) &&= k(\text{composite}, y) \\ &= (1 - a) \times k(\text{matrice}) + a \times k(\text{fibres}, x) \\ &= (1 - a) \times k(\text{matrice}) + a \times k(\text{fibre}, \text{plan}) \end{aligned}$$

Avec :

- $a = 0,3$;
- $k(\text{matrice}) = k(\text{Al}) = 200 \text{ W}/(m \times K)$;
- $k(\text{fibre}, \text{plan}) = 455 \text{ W}/(m \times K)$.

Soit $k(\text{composite}, \text{plan}) = 276,5 \text{ W}/(m \times K)$.

Et de la même manière :

$$\begin{aligned} k(\text{composite}, \text{transverse}) &= (1 - a) \times k(\text{matrice}) + a \times k(\text{fibres}, z) \\ &= 143 \text{ W}/(m \times K) \end{aligned}$$

Rappelons que dans le cas d'un échantillon réel élaboré par frittage sous compression uniaxiale, les fibres ne s'ordonnent pas strictement selon un plan et qu'il existe des résistances de contact. Les valeurs retenues ont donc été les suivantes :

$$k(\text{composite}, \text{plan}) = 265 \text{ W}/(m \times K)$$

$$k(\text{composite}, \text{transverse}) = 150 \text{ W}/(m \times K)$$

1.2.3 Propriétés de Al30Cextrude : composite à matrice d'aluminium renforcé par 30%_{vol} de fibres de carbone réparties de manière homogène selon un axe

La mise en forme par extrusion doit permettre d'obtenir des composites fortement anisotropes car le procédé d'extrusion induit l'alignement des fibres de renfort selon un axe (ici, l'axe x). L'orientation des fibres hors de l'axe d'extrusion est alors considérée comme négligeable (Fig. 1.4). En suivant le même type de raisonnement que pour le

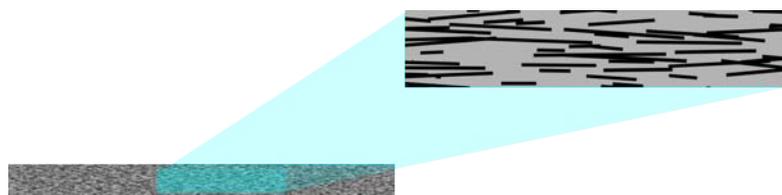


FIGURE 1.4 – Répartition des fibres de carbone au sein de la matrice par élaboration par extrusion à chaud.

composite ayant une répartition des fibres selon un plan, les valeurs suivantes ont été utilisées :

- **Module d'Young**
 $E(\text{composite, axe d'extrusion}) = 130 \text{ GPa}$
 $E(\text{composite, transverse}) = 40 \text{ GPa}$
- **Coefficient d'expansion thermique**
 $\alpha(\text{composite, axe d'extrusion}) = 12 \times 10^{-6} /K$
 $\alpha(\text{composite, transverse}) = 20 \times 10^{-6} /K$
- **Conductivité thermique**
 $k(\text{composite, axe d'extrusion}) = 410 \text{ W}/(m \times K)$
 $k(\text{composite, transverse}) = 130 \text{ W}/(m \times K)$

L'ensemble des propriétés des matériaux composites modélisés est répertorié à la figure 1.5.

	Al30Cplan	Al30Cextrude
Conductivité thermique x [W/(m.K)]	265	410
Conductivité thermique y [W/(m.K)]	265	130
Conductivité thermique z [W/(m.K)]	150	130
Masse volumique [kg/m ³]	2541	2541
Module d'Young x [GPa]	100	130
Module d'Young y [GPa]	100	40
Module d'Young z [GPa]	40	40
Coefficient de Poisson	0,330	0,330
Coefficient d'expansion thermique x [1e-6/K]	16	12
Coefficient d'expansion thermique y [1e-6/K]	16	20
Coefficient d'expansion thermique z [1e-6/K]	20	20

FIGURE 1.5 – Propriétés des matériaux composites modélisés.

1.3 Conditions des simulations

1.3.1 Conditions thermiques

- La température ambiante a été choisie égale à 25 °C.

- La puce électronique est décrite comme une source de chaleur dont la puissance a été ajustée de manière à ce que la température maximale atteinte par un point du circuit soit de $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ avec un drain en aluminium.
- Les interfaces entre les matériaux ont été supposées parfaites.
- Le milieu extérieur a été décrit comme de l'air (coefficient de transfert de chaleur de $15\text{ W}/(\text{m}^2 \times \text{K})$), à l'exception de la face inférieure de la semelle qui bénéficie d'un coefficient de transfert de chaleur plus élevé ($2000\text{ W}/(\text{m}^2 \times \text{K})$) correspondant à un refroidissement forcé [6]. Il y aura donc une évacuation préférentielle de la chaleur par le bas du montage, non pas par les propriétés des matériaux mais par les conditions aux limites utilisées.

1.3.2 Condition mécaniques

- Les dimensions des pièces sont définies pour une température ambiante de $25\text{ }^{\circ}\text{C}$.
- Les interfaces entre les matériaux ont été supposées parfaites.
- Les segments appartenant à l'axe de symétrie du montage n'ont pas de liberté hors de l'axe de symétrie.
- Le point le plus bas du drain thermique appartenant à l'axe de symétrie ne possède aucun degré de liberté (point de référence).

1.3.3 Résolution du calcul

La résolution est faite en deux temps, tout d'abord la carte des températures est calculée, puis, à partir de cette solution, la carte des contraintes est calculée à son tour. Les phénomènes de contraintes qui doivent être mis en évidence par ces simulations sont très locaux. Ainsi, il est nécessaire d'utiliser le maillage le plus raffiné possible pour obtenir une solution qui ne soit pas aberrante.

remarques sur l'interprétation de la solution calculée : Les simulations ont été utilisées afin de mettre en évidence deux phénomènes : l'influence du drain thermique sur la température atteinte par la puce électronique et son influence sur les contraintes de cisaillement dans l'ensemble du montage. Il convient de préciser que les simulations ont été faites dans des cas idéaux d'élasticité, les phénomènes plastiques ne sont donc pas pris en compte. De même, les phénomènes tels que la diffusion d'éléments, le vieillissement des matériaux ou tout autres paramètres susceptibles de modifier les propriétés thermomécaniques des matériaux ont été négligés. Par conséquent, les valeurs exactes des contraintes calculées n'ont pas de sens physique. Néanmoins, les allures des courbes de contraintes entre les différentes simulations peuvent être comparées les unes avec les autres.

1.4 Analyse des résultats des modélisations bidimensionnelles (2D)

Afin de déterminer l'influence de la nature du drain thermique sur un montage électronique, 4 cas de figure ont été systématiquement étudiés. Il s'agit de deux drains de

référence (cuivre et aluminium) et de deux drains composites (aluminium renforcé par des fibres de carbone réparties dans un plan ou réparties selon un axe). Pour des raisons de symétrie seule la moitié des montages a été modélisée (Fig. 1.6).

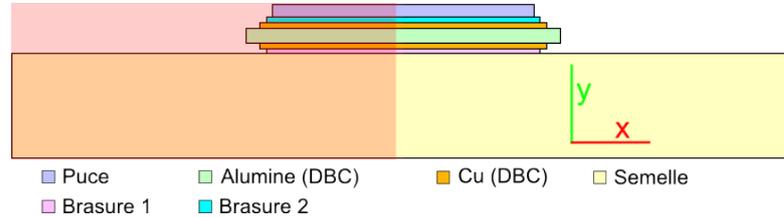


FIGURE 1.6 – Schéma du montage bidimensionnel utilisé lors des simulations. Le montage étant symétrique, la partie de gauche (rose saumon) n’a pas été modélisée.

Ce montage bien que simplifié correspond à un type de technologie utilisée en électronique de puissance actuellement. Une puce en silicium est brasée sur un substrat métallique métallisé (Cuivre/Alumine/Cuivre, c’est-à-dire un DBC) qui est lui-même brasé sur une semelle [5, 6]. Afin de simuler l’échauffement de la puce, cette dernière a été définie comme une source de chaleur. Les conditions aux limites ont été déterminées selon les travaux présentés en [6].

1.4.1 Température maximale du montage

Les cartes de températures calculées pour les différents types de drains sont représentées figure 1.7. Il apparaît que le drain en cuivre est le plus performant puisque la température maximale atteinte par la puce est la plus faible ($T_{max}(Cu) = 93,0\text{ }^{\circ}C$) des 4 montages. Ce résultat était néanmoins tout à fait prévisible étant donné qu’il s’agit du matériau présentant la meilleure conductivité thermique dans les 3 directions d’espace de l’ensemble des matériaux étudiés (seul Al30Cextrude présente une conductivité thermique similaire mais selon un axe seulement).

En ce qui concerne les drains composites, le compromis entre répartition de la chaleur sur l’ensemble de la surface du drain (conductivité thermique selon x) et l’évacuation de la chaleur au travers du drain (conductivité thermique selon y) n’a pas les mêmes conséquences en fonction du matériau. Ainsi le composite Al30Cextrudé n’offre pas un refroidissement meilleur de la puce qu’un drain en aluminium massif. Dans le cas du composite Al30Cplan, la température maximale atteinte par la puce est de $96,6\text{ }^{\circ}C$ ce qui représente donc une légère amélioration par rapport à la matrice seule.

L’emploi de composites ne modifie donc pas ou peu le maximum de température atteint par la puce de silicium dans la configuration étudiée. Par contre, du fait de leurs propriétés mécaniques et en particulier de leurs faibles valeurs de coefficient d’expansion thermique ces drains doivent permettre de modifier les contraintes de cisaillement subies par les différents éléments. Les phénomènes étant très locaux et d’ordres de grandeurs variant de 1 MPa à 100 MPa , il a donc été choisi de diviser la carte des contraintes en trois parties :

- le drain et la brasure 1 ;
- l’ensemble des trois couches du DBC ;
- la brasure 2 et la puce électronique.

Les contraintes de cisaillement pouvant être positives ou négatives en fonction du sens

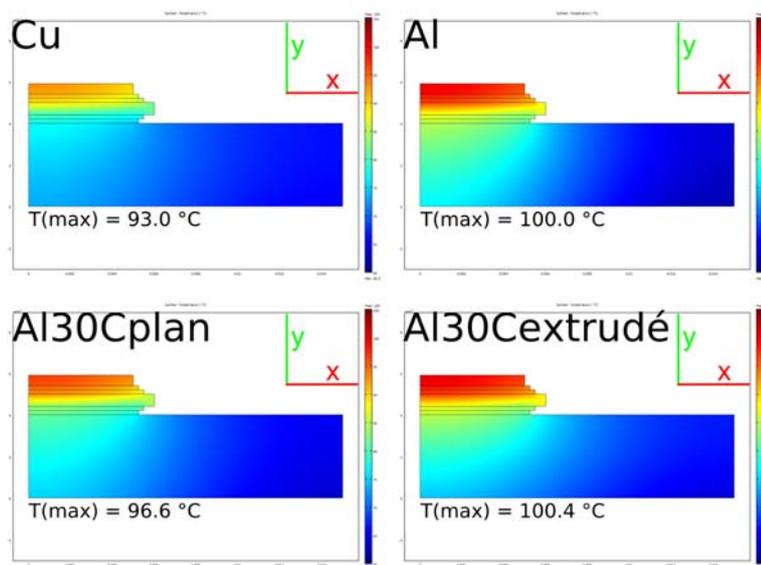


FIGURE 1.7 – Représentation de la carte des températures pour les différents montages. (Rouge foncé : 105°C / Bleu foncé : 60 °C).

d'observation, il a donc été choisi de relever la valeur absolue maximale de contrainte de cisaillement comme critère de comparaison.

remarque : le fait que la carte des contraintes ait été divisée en trois parties ne signifie pas que le calcul ait été restreint à une partie de la géométrie. Seule la représentation de la solution a été restreinte à une zone donnée bien que le calcul de la solution ait été fait sur l'intégralité de la structure.

1.4.2 Contraintes de cisaillement s_{xy} dans le drain et la brasure 1

Afin de mettre en évidence le rôle du coefficient d'expansion thermique sur les contraintes de cisaillement, il a été choisi de faire des simulations avec des drains basés sur les matériaux Cu, Al, Al30Cplan ou Al30Cextrudé mais dont le coefficient d'expansion thermique varie de $-10 \times 10^{-6} /K$ à $30 \times 10^{-6} /K$ par pas de $2 \times 10^{-6} /K$. Dans les cas de Cu et Al, la variation du coefficient d'expansion thermique est isotrope tandis que pour les composites la variation ne porte que sur les axes où sont alignés les fibres. C'est-à-dire l'axe x pour les simulations en deux dimensions, mais il s'agira du plan (x,y) et de l'axe x pour respectivement Al30Cplan et Al30Cextrudé lors des simulation en trois dimensions.

Les variations de contraintes sont donc ainsi directement liées au coefficient d'expansion thermique et non aux différences des cartes de températures. D'un point de vue expérimental seuls les points correspondant aux valeurs de coefficient d'expansion thermique réelles (pour Cu et Al) ou estimées (Al30Cplan ou Al30Cextrudé) peuvent avoir une signification physique.

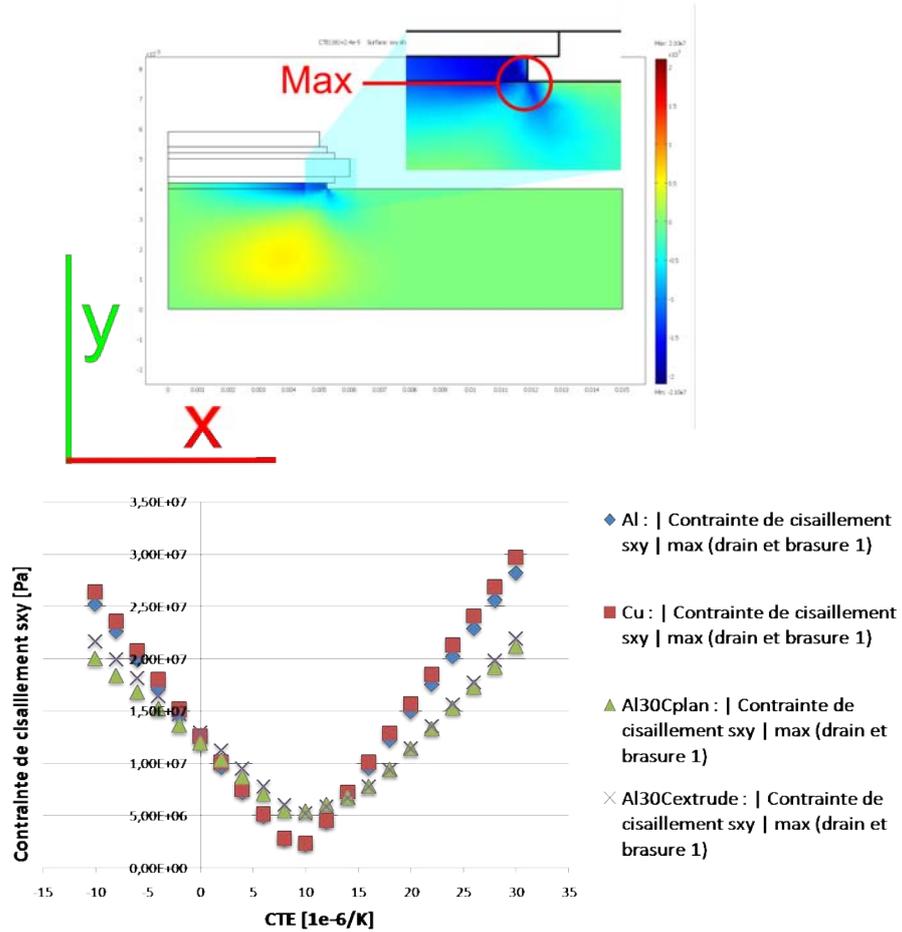


FIGURE 1.8 – Haut : illustration de la position du maximum de contraintes de cisaillement σ_{xy} dans la semelle et la brasure 1. Bas : valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement σ_{xy} , dans la semelle et la brasure 1, en fonction du coefficient d’expansion thermique des différents matériaux utilisés pour la semelle.

Les courbes de la figure 1.8 représentent la valeur absolue de la contrainte de cisaillement σ_{xy} maximale en fonction du coefficient d’expansion thermique pour différents matériaux dans la couche de la brasure 1 et du drain thermique. Quel que soit le matériau, ces courbes passent par un minimum aux alentours d’un coefficient d’expansion thermique de $10 \times 10^{-6} / K$. Expérimentalement, il est envisageable d’obtenir des composites ayant les propriétés de Al30Cextrude et donc ayant un coefficient d’expansion thermique de l’ordre de $12 \times 10^{-6} / K$.

L’emploi de tels matériaux en tant que drains thermiques devrait ainsi pouvoir restreindre les probabilités de rupture par délamination au niveau de la brasure 1.

1.4.3 Contraintes de cisaillement s_{xy} dans le DBC

Les courbes de la figure 1.9 représentent la valeur absolue de la contrainte de cisaillement s_{xy} maximale en fonction du coefficient d'expansion thermique pour différents matériaux dans les couches du DBC. Il peut être constaté une légère influence du coefficient d'expansion thermique sur les valeurs de cisaillements au sein du DBC, puisque le maximum de contrainte tend à baisser avec la baisse du coefficient d'expansion thermique. Néanmoins sur une zone expérimentalement abordable, il peut être considéré que le coefficient d'expansion thermique de la semelle n'a qu'une influence négligeable sur cette partie du montage.

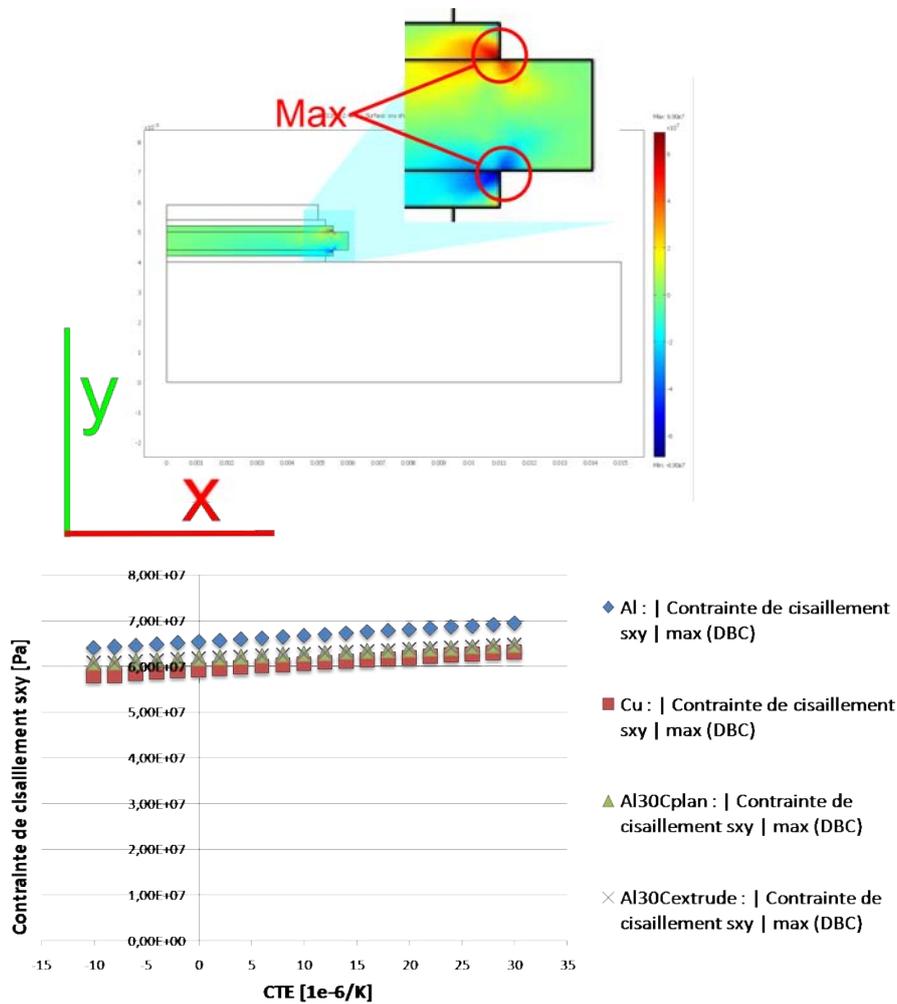


FIGURE 1.9 – Haut : illustration de la position du maximum de contraintes de cisaillement s_{xy} dans le DBC.

Bas : valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement s_{xy} , dans le DBC, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour la semelle.

1.4.4 Contraintes de cisaillement s_{xy} dans la brasure 2 et la puce

Les courbes de la figure 1.10 représentent la valeur absolue de la contrainte de cisaillement s_{xy} maximale en fonction du coefficient d'expansion thermique pour différents matériaux dans la couche de la brasure 2 et de la puce. Il a été observé précédemment (Fig. 1.9) une diminution du maximum de contraintes de cisaillement dans le DBC avec la baisse du coefficient de dilatation thermique du matériau de semelle. Cependant, cette diminution du maximum de contraintes de cisaillement dans le DBC est accompagnée d'une hausse de ces contraintes dans la brasure 2 et la puce (Fig. 1.10). Ainsi, le fait de diminuer le coefficient de dilatation thermique du matériau a permis de modifier la répartition des contraintes de cisaillement : une partie des contraintes de cisaillement du DBC ont été transférées vers la brasure 2 et la puce.

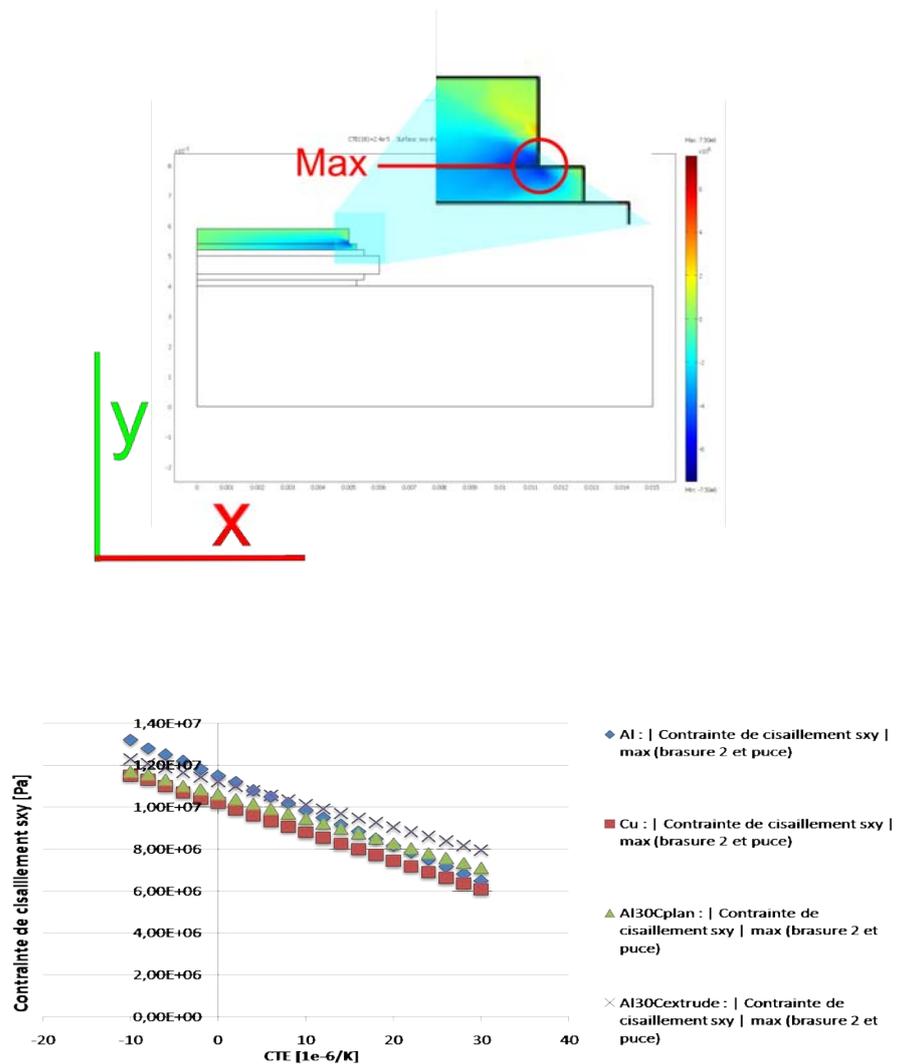


FIGURE 1.10 – Haut : illustration de la position du maximum de contraintes de cisaillement s_{xy} dans la puce et la brasure 2.

Bas : valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement s_{xy} , dans la puce et la brasure 2, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour la semelle.

1.4.5 Conclusion

Les simulations montrent que les matériaux composites étudiés n'apportent que peu ou pas de bénéfices d'un point de vue thermique. Cependant le fait de pouvoir minimiser les contraintes de cisaillement doit permettre aux systèmes équipés de tels drains d'avoir une durée de vie optimisée tout en ayant un gain de poids (la masse volumique des composites étant inférieure à celle de l'aluminium et du cuivre). La simulation bidimensionnelle est suffisante pour modéliser les phénomènes présents au niveau d'un plan de symétrie du système, mais il n'est pas possible d'avoir accès aux phénomènes hors de ces plans. Bien que pratique (temps de calcul rapide même avec un maillage très raffiné) la simulation bidimensionnelle ne s'avère donc pas suffisante pour étudier l'ensemble du système. L'analyse de la totalité de la structure n'est donc possible qu'en trois dimensions.

1.5 Analyse des résultats des modélisations tridimensionnelles (3D)

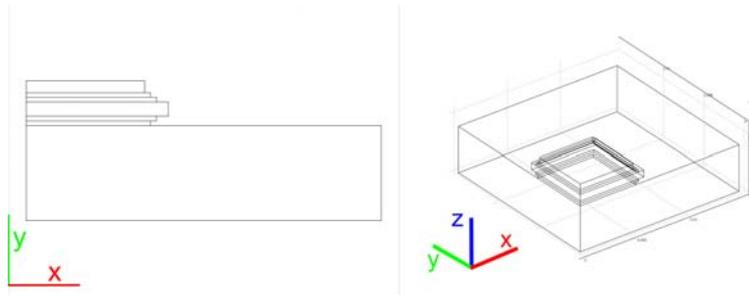


FIGURE 1.11 – Comparaison des montages bi (gauche) et tridimensionnels (droite).

remarque : l'axe x et l'axe y correspondent respectivement à l'horizontal et à la verticale en 2D. En 3D, les axes x et y définissent le plan horizontal tandis que l'axe z définit la verticale (Fig. 1.11). Du fait du changement de repère, les contraintes s_{xy} présentées lors des simulations bidimensionnelles correspondent donc aux contraintes s_{xz} et s_{yz} des simulations tridimensionnelles.

remarque : la puissance de la puce a été ajustée de manière à obtenir une température maximale de $100,0\text{ }^{\circ}\text{C}$ sur un montage ayant un drain en aluminium.

Les modélisations ont été faites sur la base du montage qui avait déjà été réalisé en deux dimensions. Ainsi les dimensions selon $x(3D)$ et $y(3D)$ sont identiques à celles de $x(2D)$, de même celles de $z(3D)$ sont identiques à celles de $y(2D)$. Pour des raisons de symétrie, seul un quart de la géométrie a été modélisé (Fig. 1.12). De plus les propriétés calculées en deux dimensions doivent correspondre aux propriétés des plans de symétrie en trois dimensions si l'ensemble des phénomènes existant en trois dimensions est équivalent à celui en deux dimensions.

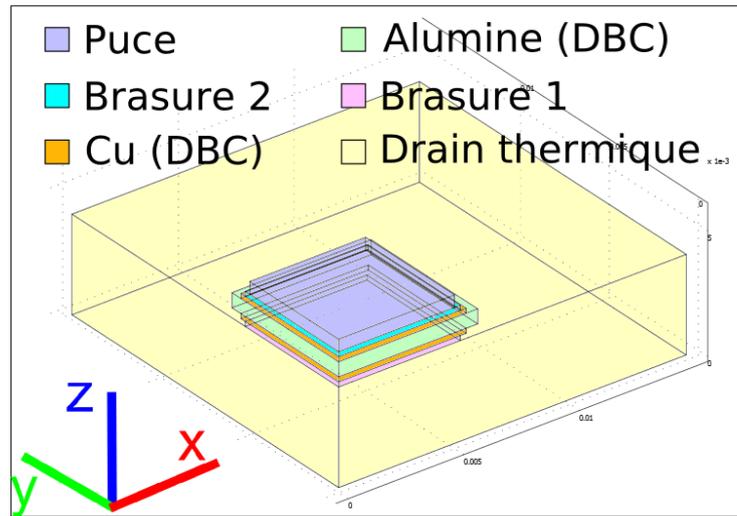


FIGURE 1.12 – Schéma du montage tridimensionnel utilisé lors des simulations. Le montage étant symétrique, seul un quart du montage a été réalisé.

1.5.1 Vérification des résultats des calculs bidimensionnels par comparaison avec les valeurs relevées sur les plans de symétrie du modèle tridimensionnel

De par les différences de maillage et du fait que la valeur de la puissance dissipée par la puce ait dû être ajustée, il n'est pas évident de retrouver strictement les mêmes valeurs numériques tant pour les températures maximales (Fig. 1.13) que pour les contraintes maximales de cisaillement. Cependant les allures des courbes de contraintes de cisaillement ne doivent *a priori* pas être modifiées.

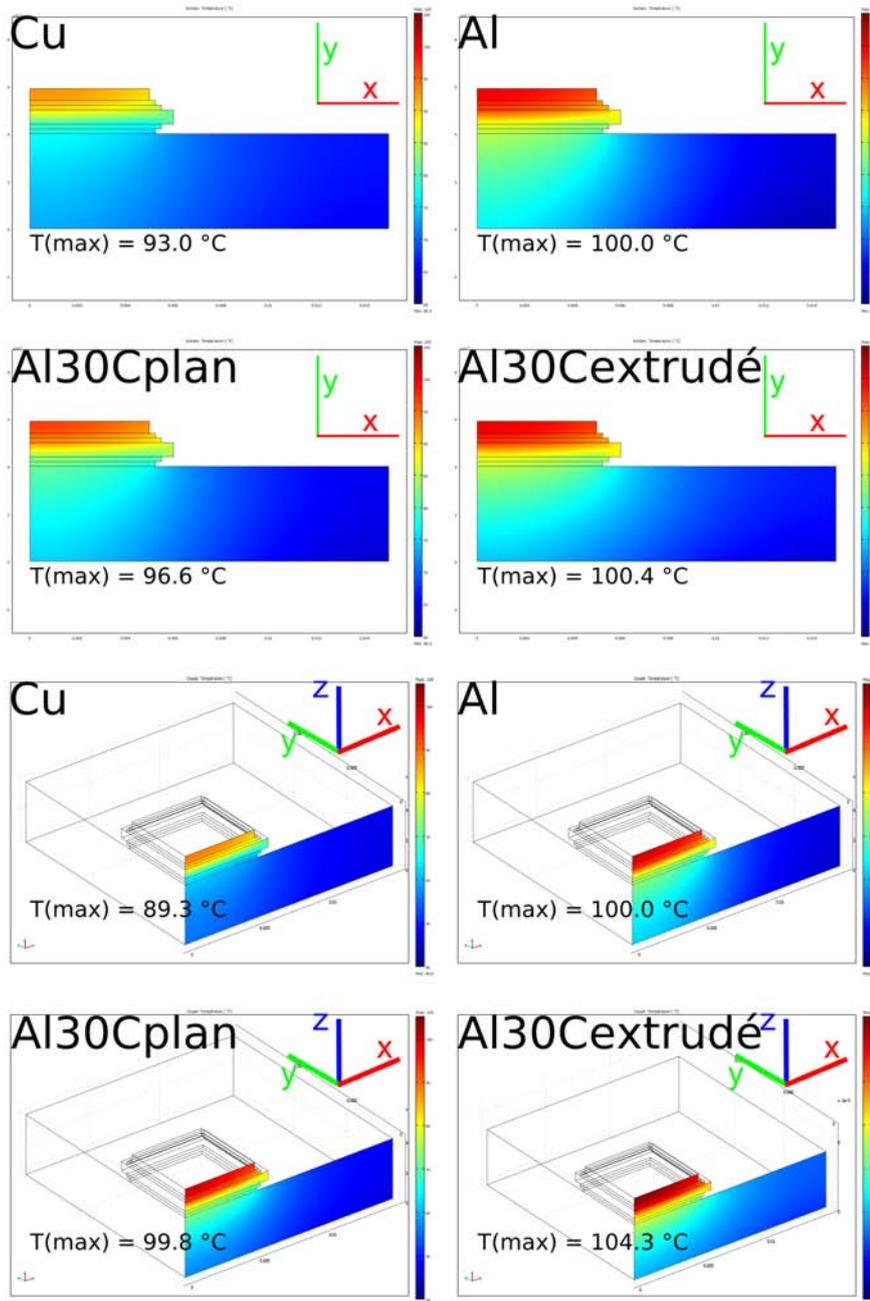


FIGURE 1.13 – Comparaison des cartes de températures calculées en 2D et en 3D sur un plan de symétrie.

Comparaison des simulations 2D et du plan de symétrie du modèle 3D pour un drain Cu

L'analyse des courbes présentées (Fig. 1.14) permet de constater que l'allure des courbes correspondant aux propriétés du plan de symétrie du modèle 3D est conforme aux prévisions faites en 2D. Il est remarqué en particulier que le minimum de contraintes de l'ensemble drain + brasure 1 est retrouvé aux alentours de 10 à $12 \times 10^{-6} / K$. En ce qui

concerne l'ensemble du DBC ainsi que l'ensemble brasure 2 et puce, il peut être constaté que les valeurs des contraintes de cisaillement calculées en 3D sont systématiquement plus élevées qu'en 2D.

D'un point de vue thermique, le maximum de température calculé sur le plan de symétrie en trois dimensions (89,3 °C) est plus faible qu'en deux dimensions (93,0 °C) (Fig. 1.13).

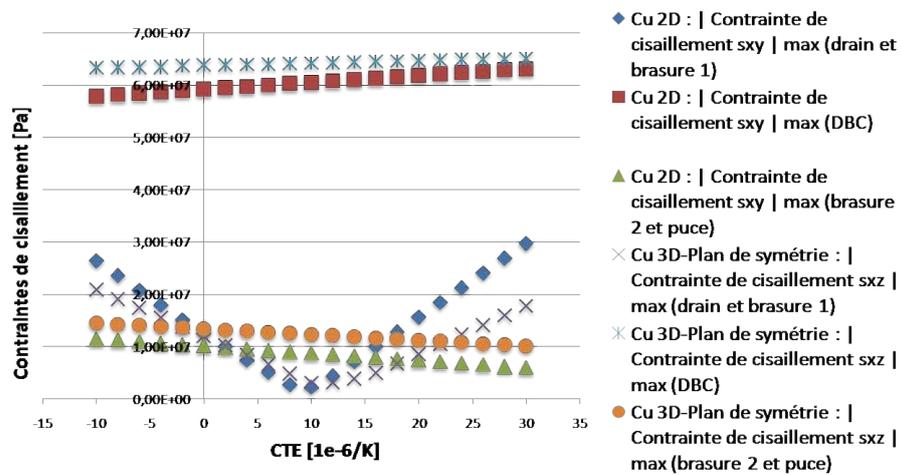


FIGURE 1.14 – Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l'axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Cu.

Comparaison des simulations 2D et du plan de symétrie du modèle 3D pour un drain Al

L'analyse des courbes présentées figure 1.15 permet de constater que l'allure des courbes correspondant aux propriétés du plan de symétrie du modèle 3D est conforme aux prévisions faites en 2D. Il est remarqué en particulier que le minimum de contraintes de l'ensemble drain + brasure 1 est retrouvé à $10.10^{-6} / K$. En ce qui concerne l'ensemble du DBC ainsi que l'ensemble brasure 2 et puce, il peut être constaté que les valeurs des contraintes de cisaillement calculées en 3D sont systématiquement plus élevées qu'en 2D.

D'un point de vue thermique, les maxima calculés en 2 et 3 dimensions (Fig. 1.13) sont identiques par construction puisque les drains en aluminium ont servi de référence.

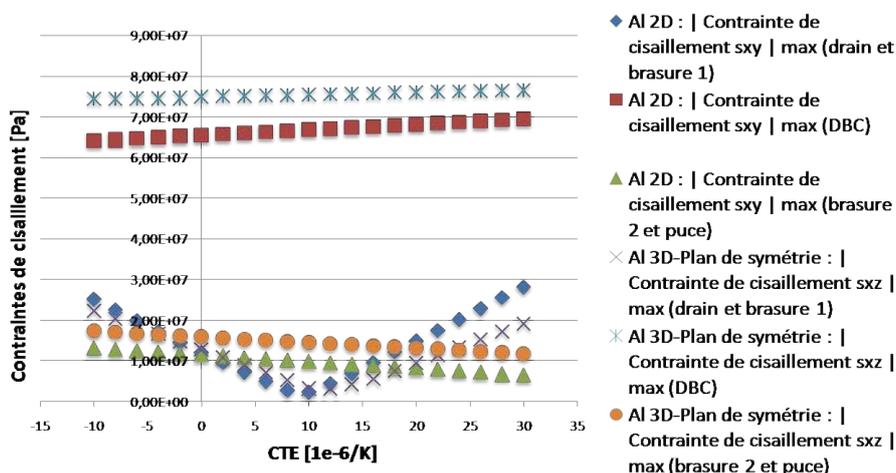


FIGURE 1.15 – Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l’axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al.

Comparaison des simulations 2D et du plan de symétrie du modèle 3D pour un drain Al30Cplan

L’analyse des courbes présentées figure 1.16 permet de constater que l’allure des courbes correspondant aux propriétés du plan de symétrie du modèle 3D est conforme aux prévisions faites en 2D. Il sera remarqué en particulier que le minimum de contraintes de l’ensemble drain + brasure 1 est retrouvé aux alentours de 10 à $12 \times 10^{-6}/K$. En ce qui concerne l’ensemble du DBC ainsi que l’ensemble brasure 2 et puce, il peut être constaté que les valeurs des contraintes de cisaillement calculées en 3D sont systématiquement plus élevées qu’en 2D.

D’un point de vue thermique, le gain réalisé en 2D (température maximale de $96,6^\circ C$) n’est pas retrouvé ici puisqu’une température maximale de $99,8^\circ C$ est obtenue (Fig. 1.13).

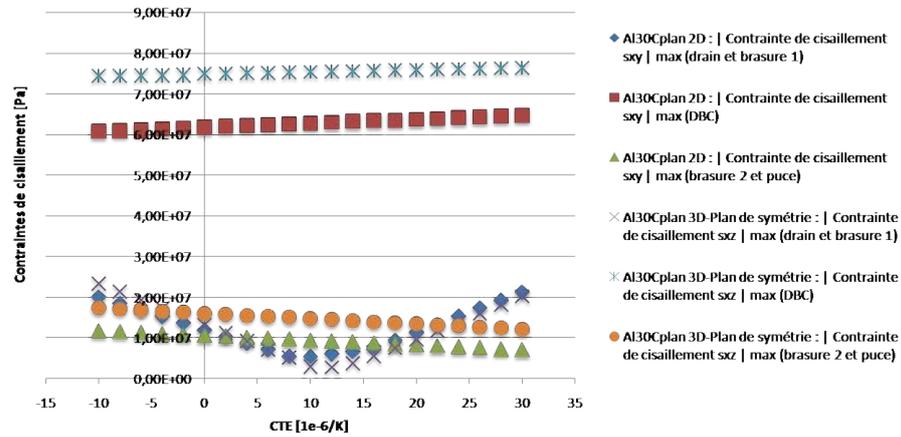


FIGURE 1.16 – Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l’axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al30Cplan.

Comparaison des simulations 2D et du plan de symétrie du modèle 3D pour un drain Al30Cextrude

L’analyse des courbes présentées figure 1.17 permet de constater que l’allure des courbes correspondant aux propriétés du plan de symétrie du modèle 3D est conforme aux prévisions faites en 2D. Il sera remarqué en particulier que le minimum de contraintes de l’ensemble drain + brasure 1 est retrouvé à $12 \times 10^{-6} / K$. En ce qui concerne l’ensemble du DBC ainsi que l’ensemble brasure 2 et puce, il peut être constaté que les valeurs des contraintes de cisaillement calculées en 3D sont systématiquement plus élevées qu’en 2D.

D’un point de vue thermique, alors qu’en 2D les performances étaient équivalentes à un drain en aluminium ceci n’est plus le cas en 3D puisque la température maximale atteint dans ce cas $104,3 \text{ } ^\circ C$ (Fig. 1.13).

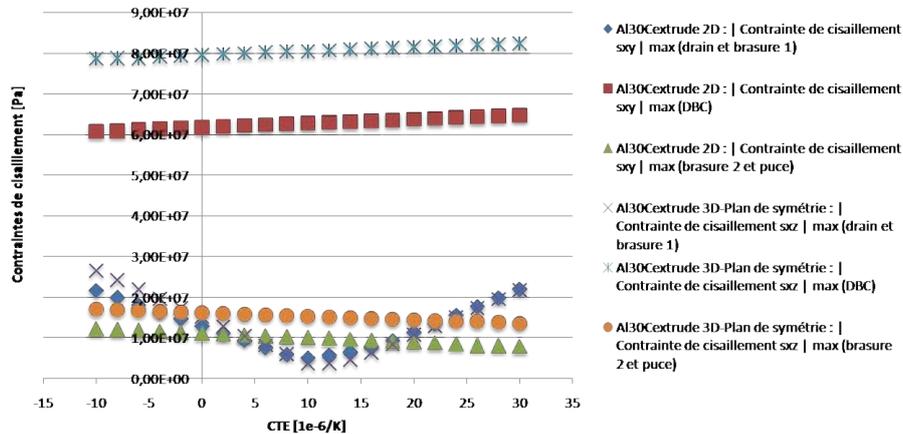


FIGURE 1.17 – Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l’axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al30Cextrude.

Conclusion

Les tendances simulées en deux dimensions sont retrouvées au niveau des plans de symétrie du système. Les simulations sont donc cohérentes entre elles. Cependant les valeurs numériques obtenues diffèrent que se soit d’un point de vue thermique ou mécanique. Il est probable que ces différences soient dues au fait que le maillage tridimensionnel est moins raffiné que le maillage bidimensionnel. Il sera donc préférable d’exploiter les allures des cartes de températures ou de contraintes plutôt que les valeurs exactes.

1.5.2 Analyse des résultats des modélisations tridimensionnelles (3D)

Température maximale du montage

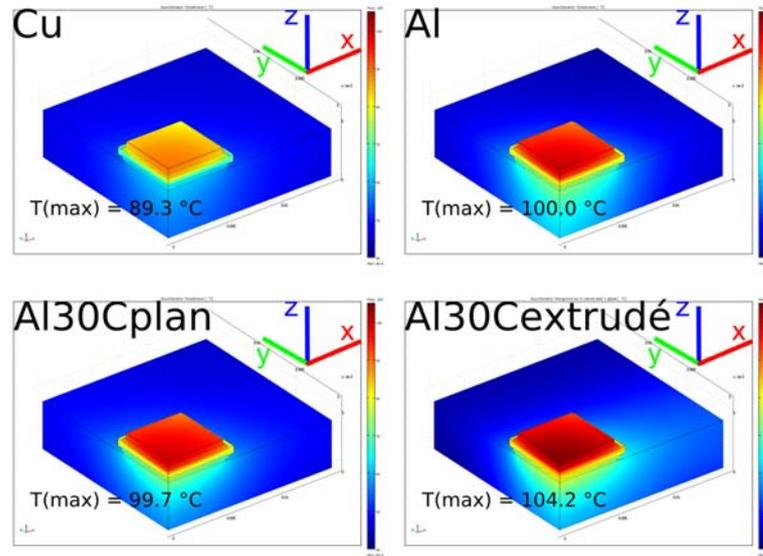


FIGURE 1.18 – Représentation de la carte des températures des différents montages. (Rouge foncé : 105°C / Bleu foncé : 40 °C).

Les cartes de températures calculées pour les différents types de drains sont représentées figure 1.18. Il peut être constaté que le centre de la puce est le point le plus chaud du système, or ce point appartient à l'axe de symétrie du montage, il est donc normal de retrouver les mêmes valeurs de températures maximales que lors des modélisations en 2D (Fig. 1.13). La valeur exacte de la température est néanmoins inférieure de 0,1 °C dans 3 cas (Cu, Al30Cplan et Al30Cextrude) entre la représentation de la température sur l'ensemble du volume et sur l'axe de symétrie. Cette différence ne reflète en rien une réalité physique, mais seulement une différence de traitement des données par le logiciel.

Contraintes de cisaillement sxz et syz dans le drain et la brasure 1

L'ensemble des matériaux (à l'exception de Al30Cextrude) est isotrope dans le plan défini par les axes x et y , les propriétés et donc en particulier les contraintes de cisaillement seront donc identiques selon ces deux axes. Seules les contraintes de cisaillement sxz seront donc représentées pour les drains Cu, Al et Al30Cplan. Afin de mettre en évidence l'anisotropie de Al30Cextrude, seront détaillées dans ce cas les contraintes de cisaillement sxz et syz .

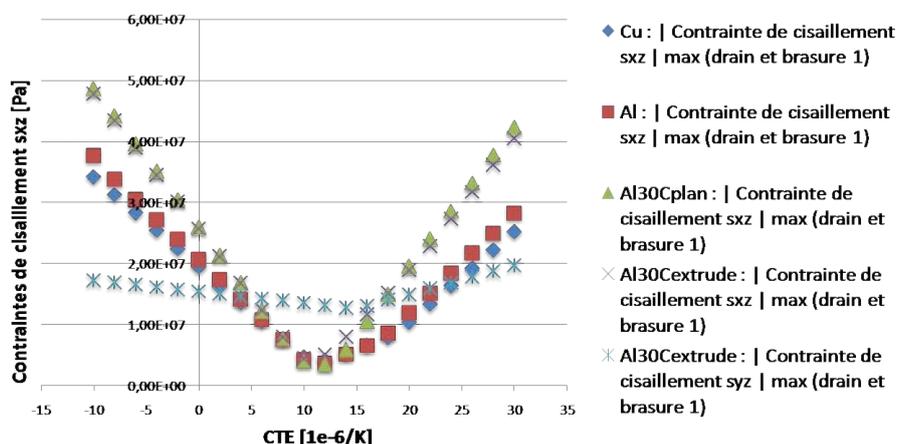


FIGURE 1.19 – Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement sxy et sxz, dans le drain thermique et la brasure 1, en fonction du coefficient d’expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.

L’analyse de la figure 1.19 permet de constater que les tendances dégagées lors des simulations précédentes restent valides. De plus concernant le composite Al30Cextrude, il peut être constaté que bien que la valeur du coefficient d’expansion thermique ne soit modifiée que selon x , il y a tout de même des répercussions sur les contraintes de cisaillement syz puisque la courbe de contraintes de cisaillement syz n’est pas constante. Il est d’ailleurs remarquable que le minimum de cette courbe soit obtenu pour un coefficient d’expansion thermique de $14 \times 10^{-6} /K$ tandis que le minimum des autres courbes est vers $10 - 12 \times 10^{-6} /K$. En ce qui concerne les valeurs calculées, l’analyse de la figure 1.20 montre que les maxima ont été calculés en des points situés sur le plan de symétrie de la géométrie. Des simulations bidimensionnelles sont donc suffisantes pour déterminer la position du maximum de contraintes de cisaillement dans la partie drain et brasure 1. De plus, que ce soit lors des simulations en 2D ou en 3D, la position du maximum de contraintes de cisaillement n’a pas varié en fonction du coefficient d’expansion thermique.

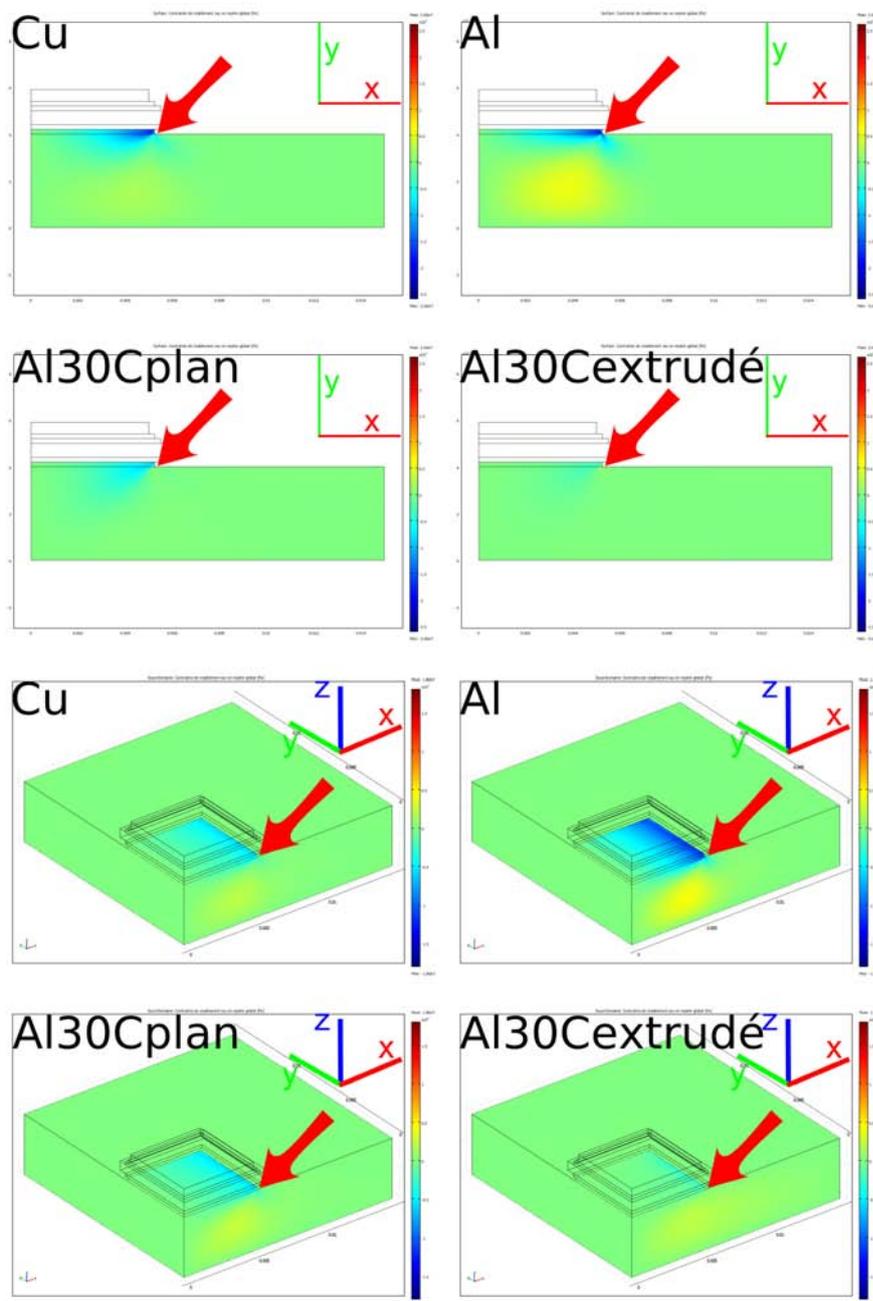


FIGURE 1.20 – Comparaison de la position du maximum de contraintes de cisaillement entre les simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles dans le drain et la brasure 1.

Seule la courbe « Al30Cextrudé : | Contrainte de cisaillement syz | max » nécessite une simulation tridimensionnelle pour être réalisée. L'ensemble des autres cas peut être réalisé avec les modèles bidimensionnels (Fig. 1.8).

Par contre, lorsque les valeurs présentées figure 1.19 sont comparées à celles calculées pour l'axe de symétrie (Fig. 1.14, Fig. 1.15 et Fig. 1.16), il est constaté un écart entre les

valeurs. Or la solution calculée est identique dans les deux cas puisqu'il s'agit de la même simulation, la seule différence provenant de l'étape de post traitement des données : il s'agit de faire une coupe au niveau de l'axe de symétrie dans un cas et de prendre en compte l'ensemble du volume dans l'autre cas. Comme pour les températures, ces différences de valeurs n'ont pas de significations physiques. Seule l'allure des courbes sera donc utilisée par la suite.

Contraintes de cisaillement sxz et syz dans le DBC

Comme l'illustre la figure 1.22, le maximum de contraintes de cisaillement se situe sur le plan de symétrie. Il n'est donc pas surprenant de constater que l'allure des courbes présentées à la figure 1.21 soit identique à celles déjà vu lors des simulations 2D (Fig. 1.9). La contrainte de cisaillement restant quasiment constante en fonction de la valeur du coefficient d'expansion thermique, il peut donc en être déduit que la valeur du coefficient d'expansion thermique du drain thermique a une influence négligeable sur le comportement du DBC.

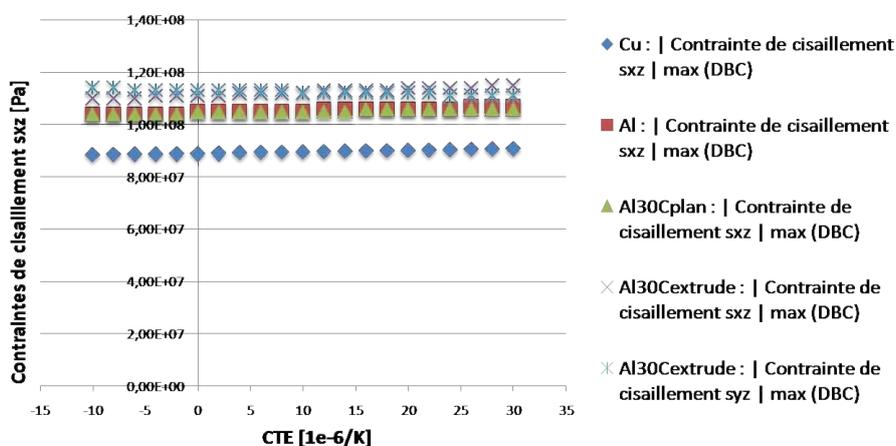


FIGURE 1.21 – Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement sxy et sxz , dans le DBC, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.

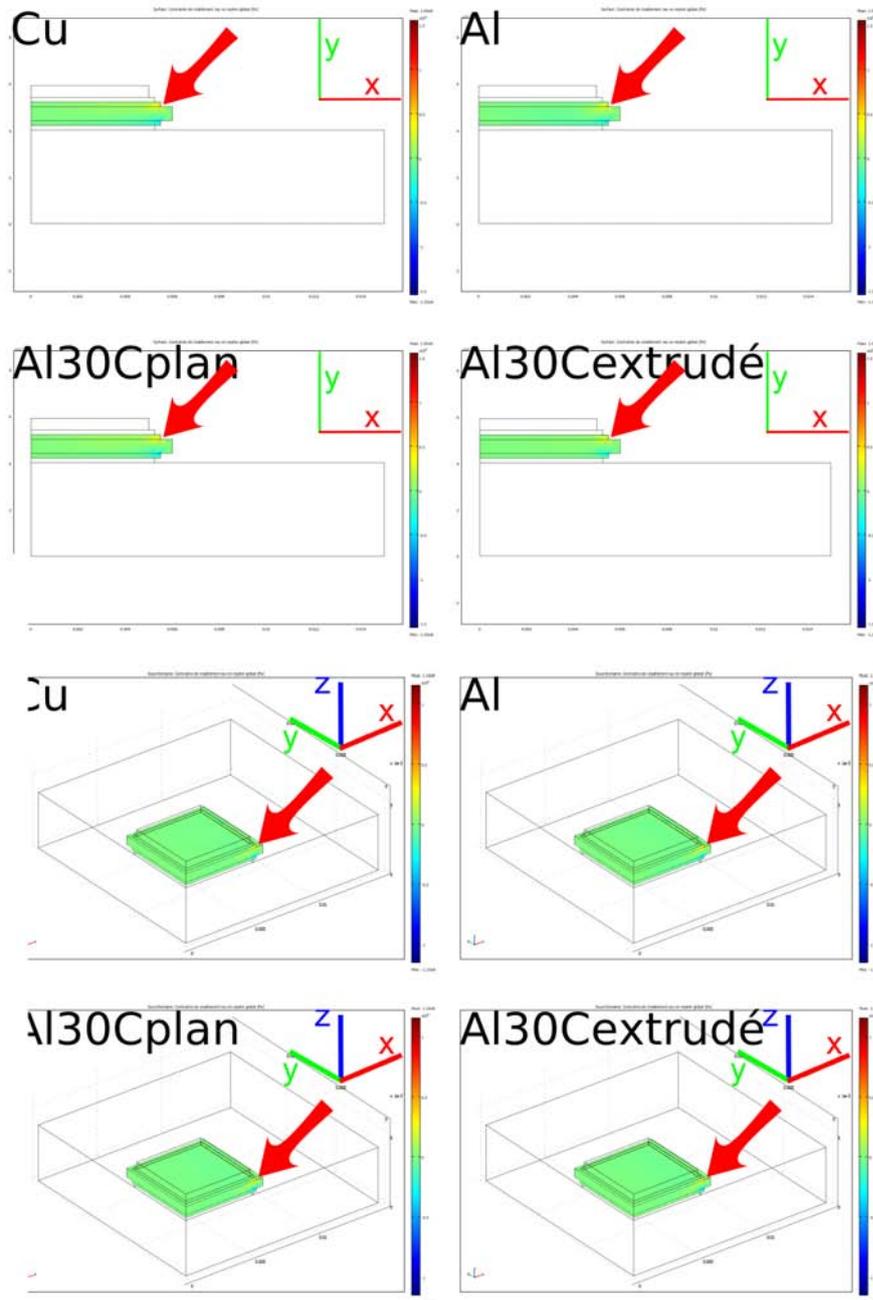


FIGURE 1.22 – Comparaison de la position du maximum de contraintes de cisaillement entre les simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles dans le DBC.

Contraintes de cisaillement s_{xz} et s_{yz} dans la brasure 2 et la puce

Dans le cas des contraintes de cisaillement au niveau de la brasure 2 et de la puce électronique, le maximum de contraintes n'est plus situé sur le plan de symétrie mais dans l'angle de la puce (Fig. 1.23). Une évolution de la valeur maximale de contrainte de cisaillement en fonction du coefficient d'expansion thermique est observée figure 1.24, mais la puce et la brasure 2 ne sont en contact qu'avec le DBC et non avec le drain

thermique. Or, il vient d'être constaté que la valeur du coefficient d'expansion thermique du drain thermique n'a qu'une influence négligeable sur le comportement du DBC. Donc si le comportement du DBC est constant, il n'y a *a priori* pas de raison d'observer une évolution dans la puce et la brasure 2. Afin d'expliquer l'évolution constatée sur le graphique de la figure 1.24, il est nécessaire de prendre en compte le fait que les ordres de grandeurs des contraintes de cisaillement dans le DBC et dans l'ensemble puce et brasure 2 sont différents. Ainsi l'évolution qui avait été considéré comme négligeable à l'échelle du DBC doit maintenant être prise en compte pour comprendre le phénomène observé dans la partie haute du montage.

De plus, les contraintes semblent en fait transférées en partie du DBC vers le joint de brasure 2 ce qui explique qu'une baisse de contraintes de cisaillement dans le DBC s'accompagne d'une hausse de contraintes de cisaillement dans la brasure 2 et inversement (Fig. 1.21 et Fig. 1.24).

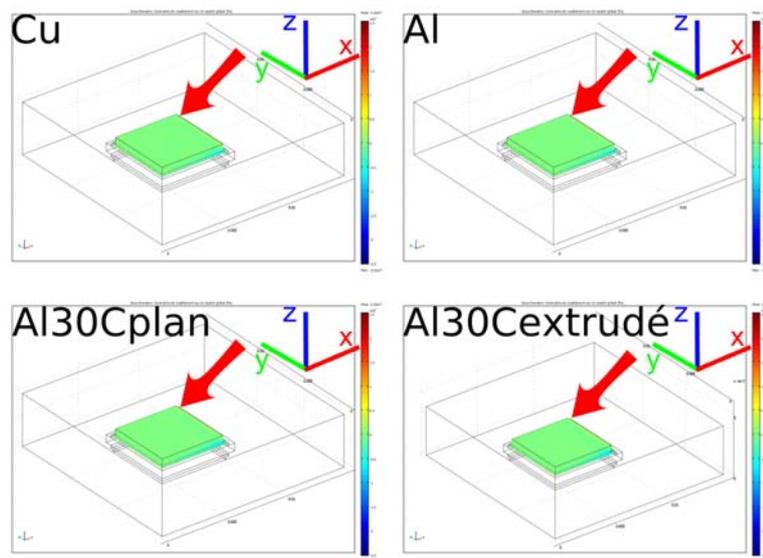


FIGURE 1.23 – Position du maximum de contraintes de cisaillement dans la puce et la brasure 2.

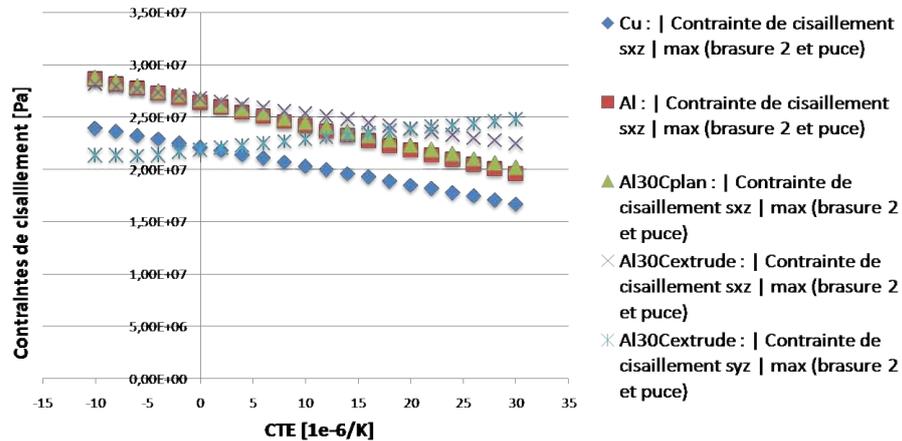


FIGURE 1.24 – Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement sxy et sxz , dans la brasure 2 et le drain, en fonction du coefficient d’expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.

Conclusion

Les simulations tridimensionnelles ont permis de cerner les zones ayant les contraintes de cisaillement les plus importantes dans chacune des parties du montage électronique. De plus, il a été montré qu’un drain thermique fabriqué à partir d’un matériau ayant un coefficient d’expansion thermique de l’ordre de $10 \times 10^{-6} /K$ permettrait de limiter au maximum les contraintes de cisaillement dans la brasure 1 liant le drain au reste du montage. Cependant une telle solution implique une légère hausse des contraintes dans la partie la plus haute du montage, au niveau de la brasure 2, lorsque le coefficient d’expansion thermique du drain thermique est abaissé.

1.6 Conclusion

Bien qu’il ne soit pas expérimentalement possible d’obtenir des matériaux dont le coefficient d’expansion thermique puisse être ajusté sur une gamme aussi étendue que celle de ces simulations et ce sans pour autant modifier le reste des propriétés thermo-mécaniques, il n’en reste pas moins intéressant d’avoir eu recours à ces modélisations afin de mieux comprendre l’influence du type de matériau à utiliser en tant que drain thermique. Il a été ainsi montré que les performances mécaniques de la semelle peuvent être fortement modulées en fonction du choix du matériau.

Un matériau de semelle idéal devra donc présenter à la fois une conductivité thermique très élevée et un coefficient d’expansion thermique de l’ordre de $10 \times 10^{-6}/K$. Les technologies actuelles basées sur le cuivre permettent ainsi une excellente évacuation de la chaleur ce qui compense le coefficient d’expansion thermique relativement élevé de ce matériau. L’aluminium présente de son côté à la fois une conductivité thermique moindre

que celle du cuivre tout en ayant un coefficient d'expansion thermique plus élevé, il est donc nécessaire de recourir à une technologie composite afin d'améliorer les performances d'une semelle basée sur ce métal. Des matériaux composites ayant des propriétés – et particulièrement un coefficient d'expansion thermique – proches de celles utilisées dans les modélisations des matériaux Al30Cplan et Al30Cextrude se placent en candidats idéaux en tant que drains thermiques pour des applications nécessitant de hautes performances. En effet, la baisse de contraintes de cisaillement dans la couche de brasure liant le drain au substrat céramique métallisé doit se traduire par une fatigue thermomécanique plus faible au cours des cycles d'utilisation et donc une durée de fonctionnement allongée. Ceci est d'autant plus intéressant pour les installations embarquées puisque les réparations lorsqu'elles sont possibles sont particulièrement onéreuses. De plus, de par la faible densité des composites à matrice d'aluminium renforcée par des fibres de carbone le gain de poids par rapport à des semelles purement métalliques permet de réduire la masse embarquée.

Les deux prochains chapitres seront consacrés à une approche expérimentale où seront étudiés successivement des composites aluminium-fibres de carbone, élaborés par frittage sous charge et par extrusion, permettant d'obtenir respectivement une répartition des fibres selon un plan et selon un axe.

Frittage sous charge uniaxiale de composites aluminium/fibres de carbone

2.1 Introduction

Au travers de ce chapitre consacré au frittage sous charge, l'effet de différents paramètres expérimentaux sur les propriétés thermomécaniques des matériaux obtenus va être passé en revue. La préparation de la poudre composite (le terme de poudre composite sera utilisé ici pour faire référence au mélange de la poudre d'aluminium et des fibres de carbone), les conditions de frittage et de traitements thermiques des échantillons mais aussi la qualité des fibres de carbone utilisées vont ainsi être étudiés. Le but de cette étude est de déterminer les meilleures conditions afin d'obtenir un composite aluminium-fibres de carbone ayant des propriétés thermomécaniques optimisées. Pour cela, plusieurs impératifs expérimentaux doivent être atteints :

- la porosité du matériau doit être la plus faible possible afin de maximiser la conductivité thermique du matériau [31, 32] ;
- les renforts doivent être individualisés et répartis de manière homogène dans le matériau ;
- l'interface (et une éventuelle interphase) entre la matrice d'aluminium et les fibres de carbone doit être contrôlée afin de permettre un transfert efficace des propriétés thermomécaniques vers les renforts ;
- le protocole expérimental doit aboutir à des résultats reproductibles.

Remarque : en l'absence de précisions :

- Les fibres utilisées ont été broyées à l'aide d'une grille de 0,50 mm (cf. 2.2.1 Préparation des fibres de carbone p. 55).
- Une pression uniaxiale de 50 MPa est utilisée lors du frittage.
- Le moule est chauffé par induction.
- Le frittage est réalisé sous vide.
- Les propriétés données correspondent à la moyenne d'un minimum de 3 échantillons. Dans le cas des composites, les mesures sont faites de manière à détermi-

ner les propriétés dans le plan contenant les fibres de carbone (c'est-à-dire le plan perpendiculaire à l'axe de compression).

Remarque :

- la poudre d'aluminium « Al F3731 » sert de référence ;
- les fibres de carbone « CN80C » sont moins bien graphitées (et donc plus réactives) que les « XN100 » [53], d'où des diffusivités thermiques respectivement d'environ $205 \text{ mm}^2/\text{s}$ et $580 \text{ mm}^2/\text{s}$ selon l'axe de la fibre (données fabricant), soit des conductivités thermiques de $320 \text{ W}/(\text{m} \times \text{K})$ et $900 \text{ W}/(\text{m} \times \text{K})$ respectivement.

2.2 Protocole expérimental

2.2.1 Obtention des poudres composites

Le phénomène de frittage permet à une poudre d'acquérir une tenue mécanique par la formation de joints entre les grains de la poudre. Il est considéré que l'ensemble des joints est formé pour une densité relative de l'ordre de 65 %. Le matériau qui était pulvérulent devient un matériau continu constitué d'un squelette poreux. Au-delà d'une densité relative de 92 %, la porosité résiduelle du matériau est considéré comme étant fermée c'est-à-dire que les pores seront isolés du milieu extérieur [54]. Dans le cas présenté ici, les grains de la poudre d'aluminium vont former par frittage la matrice du composite, tout en englobant les renforts (ici, des fibres de carbone) qui ne frittent pas et qui gênent donc la densification du matériau. Afin d'obtenir un matériau composite présentant les propriétés désirées, il est nécessaire d'obtenir au préalable une poudre au sein de laquelle les particules de renforts sont d'une part réparties uniformément et d'autre part non agglomérées [54]. Afin de comprendre pourquoi ces deux conditions sont nécessaires, envisageons le frittage dans le cas d'une poudre composite dont les renforts sont répartis de manière homogène mais sous forme d'agglomérats (Fig. 2.1) et celui d'une poudre composite dont les renforts sont non agglomérés mais répartis de manière hétérogène (Fig. 2.2).

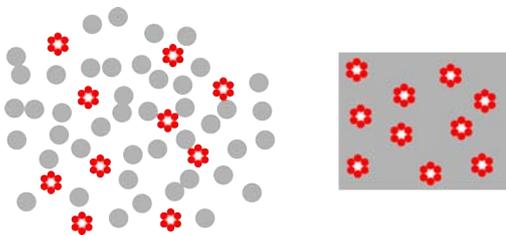


FIGURE 2.1 – A gauche : poudre composite avant frittage, en gris la matrice, en rouge les renforts sous forme d'agglomérats uniformément répartis. A droite, la même poudre composite après frittage (en blanc la porosité).

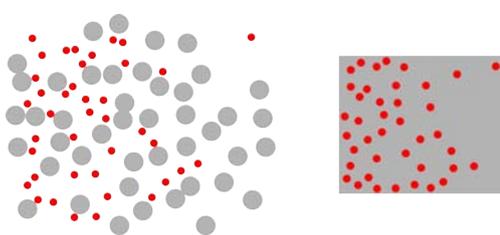


FIGURE 2.2 – A gauche : poudre composite avant frittage, en gris la matrice, en rouge les renforts non agglomérés mais répartis de manière hétérogène. A droite, la même poudre composite après frittage.

Poudre composite dont les renforts sont répartis de manière homogène mais sous forme d'agglomérats

Les agglomérats sont constitués de particules faiblement liées entre elles. Il en résulte une mauvaise tenue mécanique puisqu'une destruction des agglomérats sera possible sous faible contrainte. De plus, la présence d'agglomérats est généralement accompagnée de porosités nuisibles à la cohésion du matériau [54]. Ces considérations induisent que le matériau une fois fritté présentera d'un point de vue mécanique un caractère fragile de par la présence des agglomérats et pourra même localement s'effriter tandis que d'un point de vue thermique, sa conductivité thermique sera faible de par la présence des porosités [31, 32]. Néanmoins macroscopiquement le matériau présentera des propriétés homogènes puisque ces défauts sont uniformément répartis.

Poudre composite dont les renforts sont non agglomérés mais répartis de manière hétérogène

Dans le cas d'un renfort non aggloméré, le procédé de frittage va pouvoir être optimisé de manière à bien densifier le matériau. Cependant la répartition hétérogène des renforts implique que les propriétés du matériau soient elles aussi hétérogènes en fonction des zones étudiées. De plus la répartition des particules n'étant pas maîtrisée, la reproductibilité des résultats est faible. Tout protocole expérimental menant à une répartition non homogène des particules doit donc être modifié afin de parvenir à des résultats reproductibles.

Obtention d'une poudre composite aluminium-fibres de carbone homogène et sans agglomérats

Préparation des fibres de carbone Les fibres de carbone sont livrées sous forme de mèches d'une longueur inférieure au centimètre pour un diamètre millimétrique. Ces mèches sont constituées de fibres liées à l'aide d'un plastifiant. Il est nécessaire d'éliminer le plastifiant à l'aide d'un traitement thermique (1h sous air à 400 °C) afin d'individualiser les fibres. Cependant ces dernières sont trop longues (jusqu'à plusieurs millimètres) pour être utilisées. En effet à cette taille, les fibres s'enchevêtrent et forment des pelotes impropres au frittage (la poudre d'aluminium pénètre très mal ces structures). Les fibres sont donc broyées afin de réduire leur taille. Les effets de ce broyage seront examinés en « 2.3.1 Influence de la coupe des fibres p. 60 ». Les micrographies présentées figure 2.3 et figure 2.4 montrent respectivement des fibres de type CN80C et XN100 à l'état brut (c'est-à-dire telles qu'elles sont livrées), déliantées et broyées.

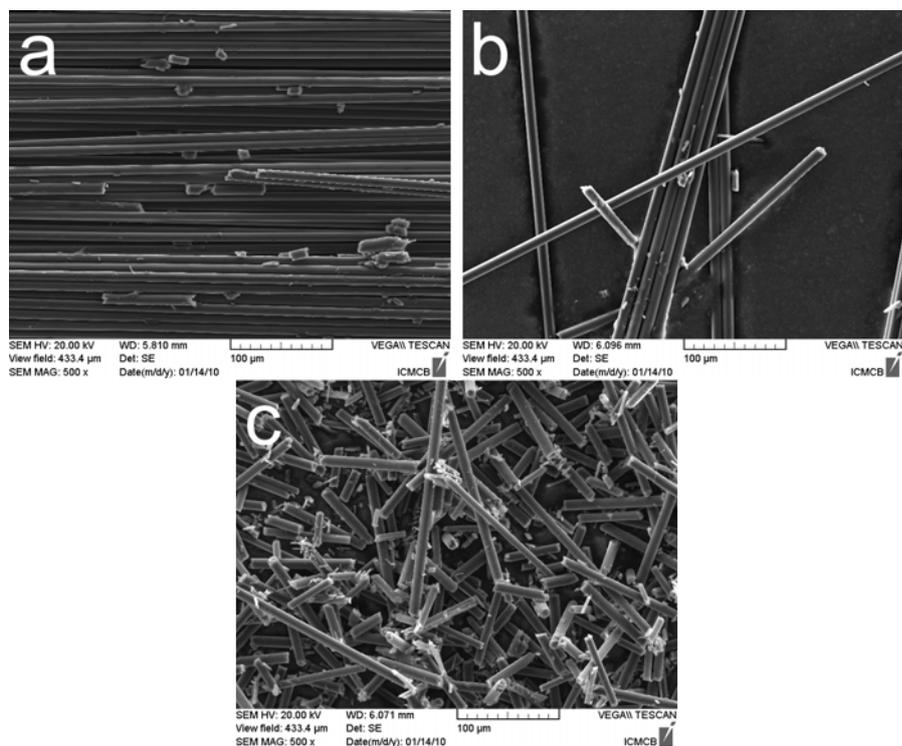


FIGURE 2.3 – Micrographies électroniques de fibres de carbone type CN80C.
a : fibres à l'état brut. b : fibres déliantées. c : fibres après broyage.

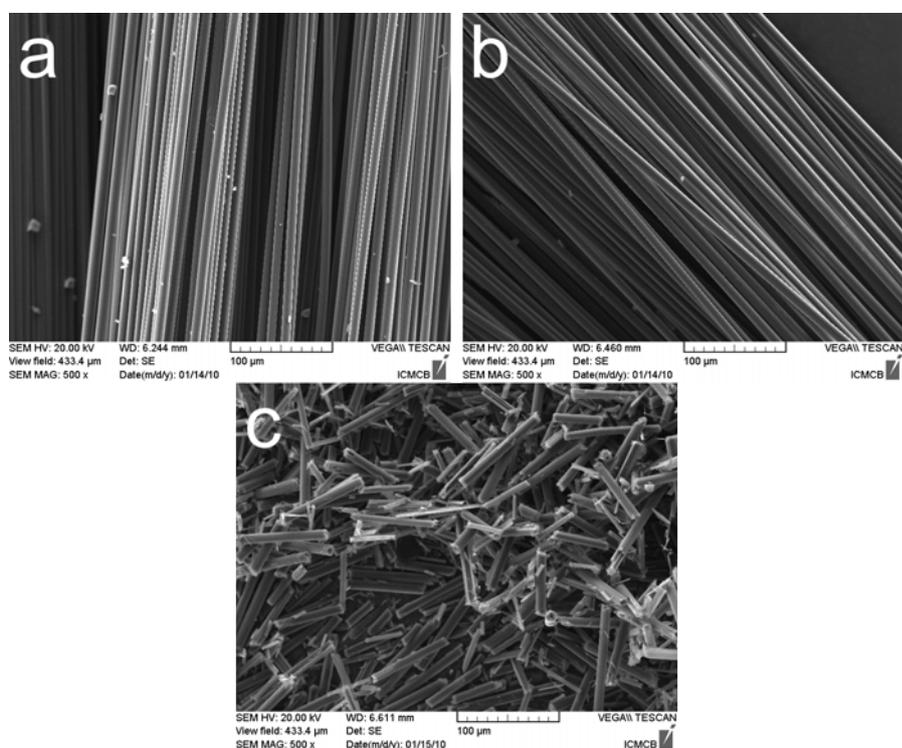


FIGURE 2.4 – Micrographies électroniques de fibres de carbone type XN100.
a : fibres à l'état brut. b : fibres déliantées. c : fibres après broyage.

Mélange de la poudre d'aluminium et des fibres de carbone La poudre d'aluminium et les fibres de carbone sont mélangées dans les proportions désirées à l'aide d'un mélangeur à hélices profilées (2 pales, vitesse de rotation de 0 à 6000 tours par minute) sous argon durant 5 minutes. Il est important de ne pas faire le mélange sous air afin d'éviter tout risque d'explosion. En effet, l'énergie cinétique apportée par le mélangeur entrainerait au contact de l'oxygène présent dans l'air une oxydation de la poudre d'aluminium en alumine au cours d'une réaction exothermique ($\Delta H = -1700 \text{ kJ/mol}$).

L'efficacité de cette méthode de mélange sera évaluée en fonction de l'homogénéité des matériaux obtenus ainsi que de la présence ou non d'agrégats de fibres. Les micrographies présentées figures 2.5, 2.6 et 2.7 représentent respectivement, à différentes échelles, la poudre d'aluminium Al F3731 utilisée pour l'ensemble des travaux, des fibres de carbone de type CN80C broyées à 0,5 mm et enfin un mélange des deux pour un pourcentage de renforts de 30% en volume.

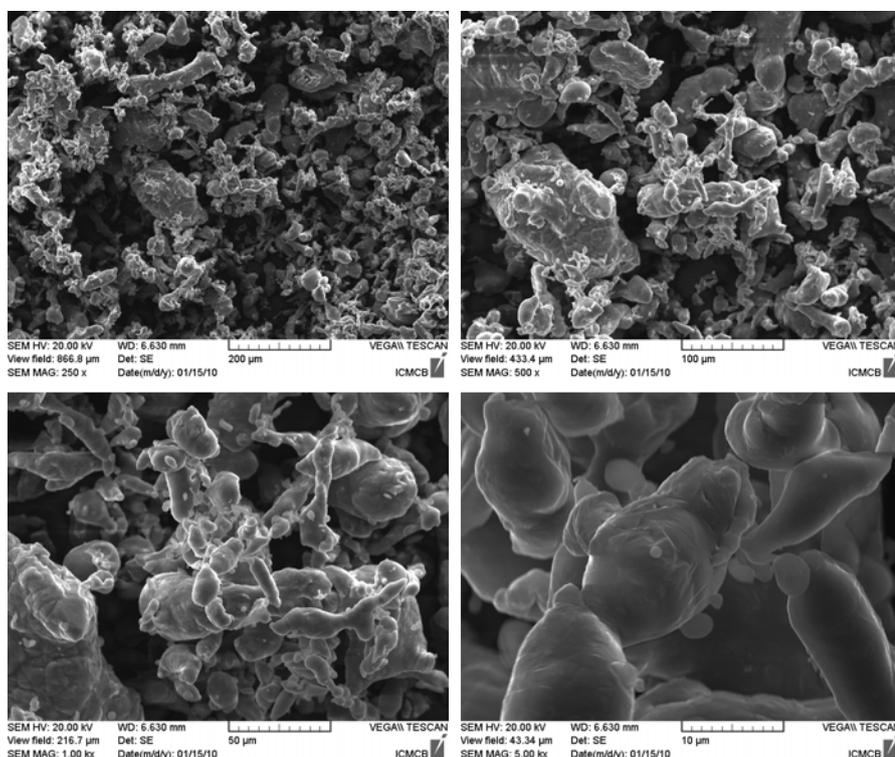


FIGURE 2.5 – Micrographies électroniques de la poudre d'aluminium F3731.

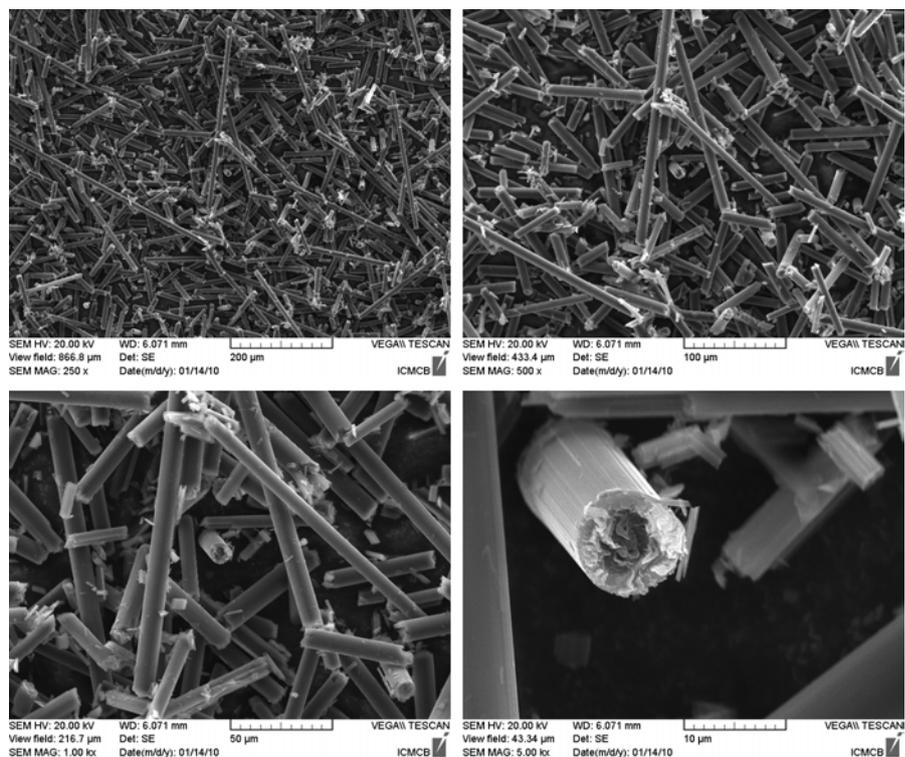


FIGURE 2.6 – Micrographies électroniques de fibres CN80C broyées à l’aide d’une grille de 0,5 mm.

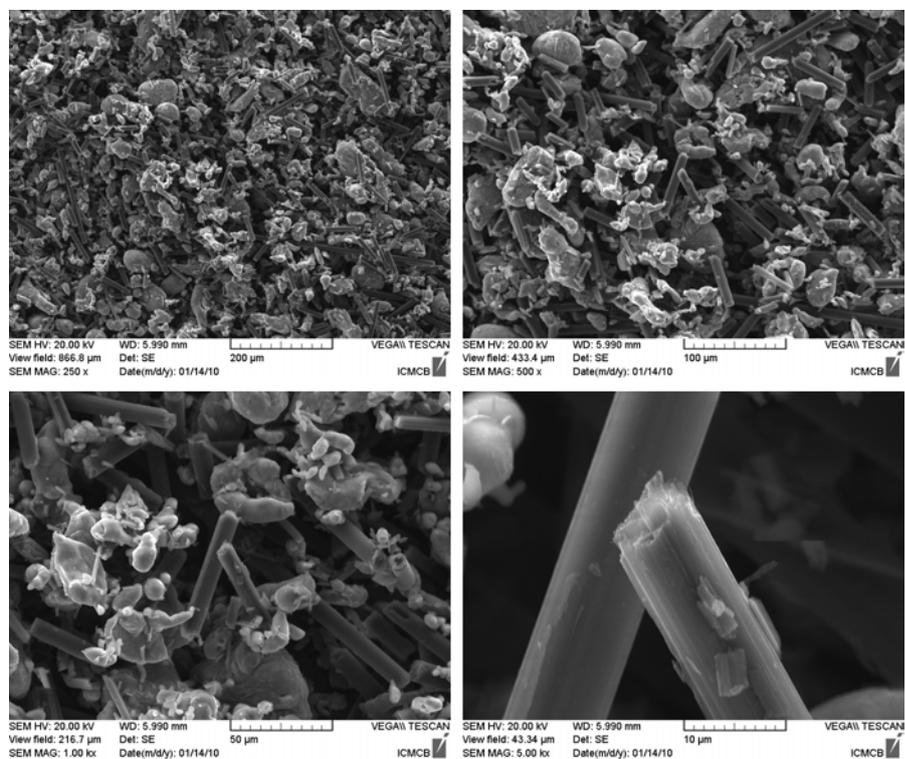


FIGURE 2.7 – Micrographies électroniques d’une poudre composite Al F3731-30%_{vol}CN80C dont les renforts ont été broyés à 0,5 mm.

2.2.2 Méthodes et paramètres de frittage

Une fois la poudre composite obtenue, il est nécessaire de la densifier en un matériau composite exempt de porosités.

Les procédés de fonderie sont très utilisés afin d'obtenir des composites aluminium/fibres de carbone, cependant ils présentent certaines limites [55,56]. Le problème majeur est lié à la dégradation des fibres de carbone en carbure d'aluminium au contact de l'aluminium liquide. Cette dégradation peut être atténuée en décorant les fibres de carbone par un dépôt métallique [56]. Néanmoins, l'élaboration de matériaux à gradient de fonction n'est pas possible par fonderie alors qu'elle est réalisable par métallurgie des poudres. C'est donc cette dernière méthode qui a été retenue pour synthétiser les échantillons.

Afin d'éliminer efficacement la porosité, un frittage sous contrainte a été choisi plutôt qu'un frittage libre. Deux types de contraintes peuvent être appliquées : isostatique ou uniaxiale. Le pressage isostatique implique une pression uniforme ; il n'est donc pas possible d'obtenir une orientation privilégiée des renforts par cette méthode. Au contraire, un pressage uniaxial permet d'orienter les fibres de carbone de manière privilégiée au sein d'un plan perpendiculaire à l'axe de compression. C'est cette dernière méthode qui a donc été utilisée avec une pression de 50 MPa.

Les températures de frittage (550 °C et 600 °C) ont été atteintes soit en chauffant le moule par induction, soit en utilisant la méthode de frittage flash qui consiste à envoyer des impulsions de courant au travers de l'échantillon. De plus l'enceinte est maintenue sous vide afin d'éviter l'oxydation de l'aluminium et des fibres de carbone.

Les durées de frittage généralement constatées dans la littérature pour ces températures sont inférieures ou de l'ordre de 20 minutes [31, 32, 54, 57]. En effet ces durées permettent d'obtenir un matériau dense pour peu que les autres paramètres expérimentaux aient été optimisés. Cependant il a été décidé d'étendre le domaine d'étude à des temps de frittage compris entre 10 et 160 minutes (10 à 60 minutes pour des composites renforcés avec les fibres les plus réactives (CN80C) et 40 à 160 minutes pour les fibres les moins réactives (XN100)). Des temps longs favorisent le phénomène de croissance granulaire. Or, de petits grains sont nuisibles à une bonne conductivité thermique (plus les grains sont petits et plus grandes sont les surfaces de contact grain/grain ce qui implique plus de résistances de contact) [58]. Une éventuelle croissance granulaire ne sera donc pas préjudiciable aux propriétés thermiques recherchés. Ainsi, les temps courts permettent de réaliser une étude de la densification des échantillons tandis que les temps les plus longs permettent de parfaire les interfaces fibres-matrice.

2.2.3 Diffusivité thermique : résultats théoriques

Afin de comparer les valeurs expérimentales à des valeurs théoriques, un cas idéal a été envisagé où :

- les fibres de carbone sont parfaitement dispersées ;
- les fibres de carbone sont parfaitement orientées dans un plan ;
- les fibres de carbone n'ont pas été dégradées au cours du protocole expérimental ;
- la valeur de conductivité thermique des fibres de carbone à l'issue de l'élaboration du composite est égale à la conductivité thermique annoncée par le fournisseur ;
- la résistance de contact entre renfort et matrice est négligeable ;
- la résistance de contact entre les grains de la matrice est négligeable ;

- la conductivité thermique transverse des fibres de carbone est négligeable devant leur conductivité longitudinale (moins de $10 W/m \times K$ contre 320 à $900 W/m \times K$ en fonction des fibres de carbone).

Dans ces conditions, la conductivité thermique des composites dans le plan contenant les fibres de carbone, est selon la méthode de calcul utilisée en « 1.2.2 Propriétés de Al30Cplan p. 28 », de :

- $\lambda(\text{Al F3731-20\%vol CN80C}) = 192 W/(m \times K)$;
- $\lambda(\text{Al F3731-30\%vol CN80C}) = 188 W/(m \times K)$;
- $\lambda(\text{Al F3731-20\%vol XN100}) = 250 W/(m \times K)$;
- $\lambda(\text{Al F3731-30\%vol XN100}) = 275 W/(m \times K)$.

Sachant que $\lambda = c_p \times \rho \times a$.

Avec :

λ	la conductivité thermique	$(W/(m \times K))$
c_p	la capacité calorifique massique à pression constante	$(J/(g \times K))$
ρ	la masse volumique	(g/cm^3)
a	la diffusivité thermique	(mm^2/s)

Alors, d'un point de vue théorique les diffusivités thermiques suivantes sont attendues :

- $a(\text{Al F3731-20\%vol CN80C}) = 87 mm^2/s$;
- $a(\text{Al F3731-30\%vol CN80C}) = 88 mm^2/s$;
- $a(\text{Al F3731-20\%vol XN100}) = 114 mm^2/s$;
- $a(\text{Al F3731-30\%vol XN100}) = 129 mm^2/s$.

D'un point de vue expérimental, ces hypothèses formulées ne peuvent pas être strictement réalisées. Les diffusivités thermiques calculées ici constituent donc les limites hautes pouvant être obtenues expérimentalement par frittage de ces poudres composites aluminium/fibres de carbone.

2.3 Influence de divers paramètres expérimentaux sur la diffusivité thermique des matériaux

2.3.1 Influence de la coupe des fibres

Des composites Al F3731-20%vol CN80C ont été frittés 20 minutes à $550^\circ C$ sous une charge de $50 MPa$. Dans un premier temps des échantillons préparés avec des fibres de carbone ayant été déliantées mais non coupées ont été élaborés. Cependant aucune mesure n'a pu être faite car les matériaux obtenus s'effritent sous l'effet de la moindre manipulation. Ceci est dû au fait que les fibres sont très longues (millimétriques). Il en résulte qu'elles s'enchevêtrent pour former des pelotes que la poudre d'aluminium peut difficilement combler d'où un frittage inefficace.

Afin de s'affranchir de ce problème, une étape de découpe est nécessaire afin de réduire la taille des renforts. Pour couper les fibres de carbone (Fig. 2.8), ces dernières sont déposées sur un plateau en rotation à 18000 tours par minute. Sous l'effet de la force centrifuge et des déplacements d'air, les fibres sont projetées vers une grille qu'elles

doivent traverser en même temps qu'elles sont découpées par les 12 couteaux fixés au plateau en rotation. Trois grilles ont été testées. La première possédant des trous de 0,50 mm, la seconde de 0,20 mm et enfin la dernière de 0,12 mm. Les poudres composites obtenues à partir de ces fibres sont présentées figure 2.9. Les échantillons issus de ces mélanges présentent après frittage une tenue mécanique suffisante pour être analysés.

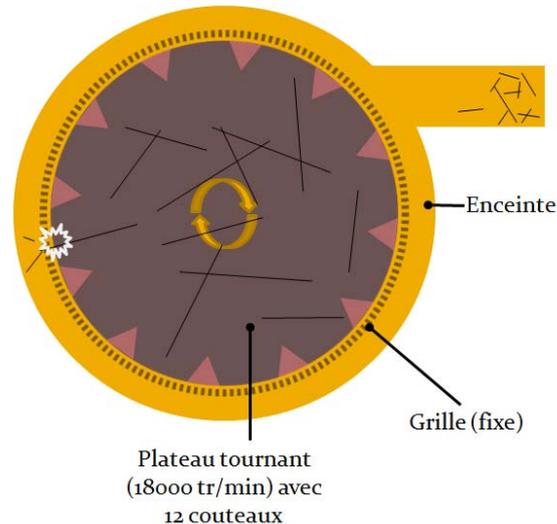


FIGURE 2.8 – Schéma de fonctionnement de la coupe des fibres de carbone.

Il peut être supposé que le fait de couper les fibres de carbone peut dégrader les propriétés thermiques et mécaniques. Les renforts ont été caractérisés par spectroscopie Raman afin de quantifier le taux de défauts de fibres issues des différentes coupes [59]. Plus de détails concernant cette spectroscopie appliquée aux fibres de carbone seront donnés en annexe « 4 Caractérisation de fibres de carbone par microspectrométrie Raman p. 109 ».

Les résultats des mesures présentés figure 2.10 indiquent que le rapport $\frac{I_G}{I_D}$ est de plus en plus faible lorsque la grille utilisée pour couper les fibres de carbone possède des trous de plus en plus fins. Cela signifie donc que plus la coupe est fine et plus la structure du renfort est dégradée d'un point de vue cristallographique. Ou en d'autres termes, plus la fibre est coupée finement et plus faible est la longueur moyenne où la structure graphite peut être considérée comme étant cristallographiquement parfaite. Or, l'obtention d'une forte conductivité thermique nécessite une parfaite organisation structurale, le cas extrême étant celui des nanotubes de carbone qui peuvent présenter une conductivité thermique de plusieurs milliers de watts par mètres et par kelvin qui sont à comparer aux centaines (voir dizaines) de watts par mètres et par kelvin de fibres de carbone dont les structures sont plus ou moins graphitées.

Ainsi, le fait de mesurer un rapport $\frac{I_G}{I_D}$ de plus en plus faible, laisse supposer que les propriétés thermiques des fibres correspondantes sont de plus en plus faibles. Cependant, bien qu'il ne soit pas impossible de mesurer la conductivité thermique d'une fibre, l'opération reste fastidieuse et nécessiterait d'être répétée sur de nombreuses fibres afin que la mesure moyenne soit représentative de l'ensemble. Pour cette raison, il a été choisi de ne pas mesurer directement les propriétés thermiques des fibres mais la diffusivité thermique de composites ayant été synthétisés à partir de ces dernières. En veillant à synthétiser ces composites dans les mêmes conditions et avec les mêmes proportions volumiques de ren-

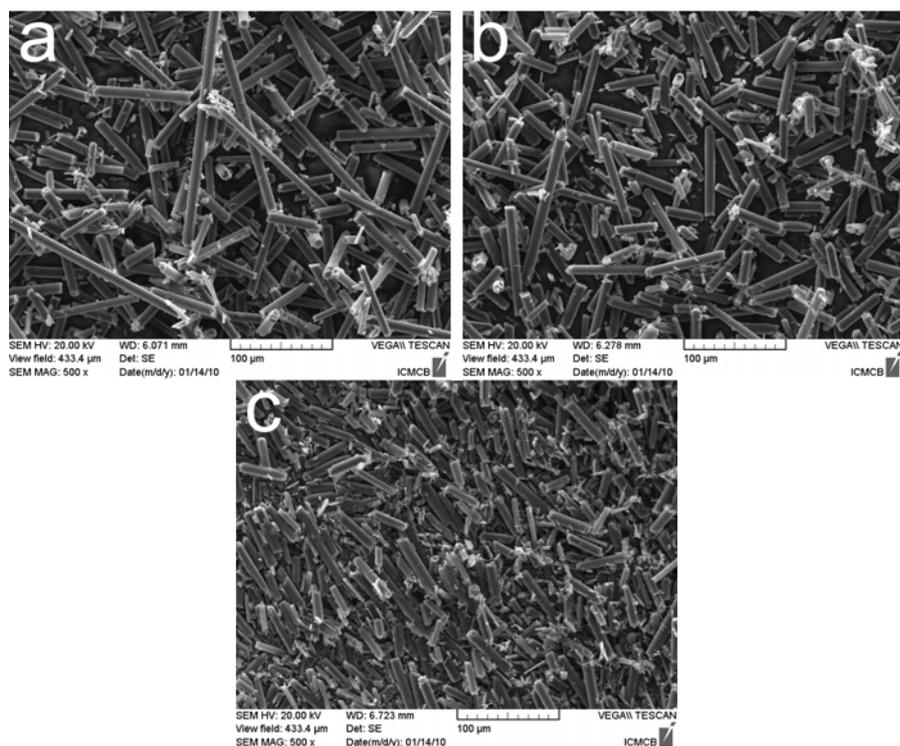


FIGURE 2.9 – Micrographies électroniques de mélanges d’une poudre composite Al F3731 avec 20%*vol* de fibres de carbone CN80C coupées à l’aide de grilles dont les diamètres de pores sont respectivement 0,50 mm (a), 0,20 mm (b) et 0,12 mm (c).

forts, il devient possible de comparer les propriétés thermiques des échantillons et donc des renforts et ainsi d’en déduire une éventuelle influence sur les propriétés thermiques des fibres qui seraient liées au fait de couper les renforts plus ou moins finement.

Les résultats présentés figure 2.11 confirment le fait que les fibres soient dégradées par la découpe. Il apparaît clairement une décroissance de la diffusivité thermique des échantillons pour les coupes conduisant aux plus petites tailles de fibres. La meilleure diffusivité thermique est ainsi obtenue pour une taille de grille de 0,50 mm. Le meilleur compromis entre longueur et dégradation ayant été constaté pour une grille de 0,50 mm, c’est donc dans ces conditions que sera mené l’ensemble des expérimentations présentées dans la suite de cette étude.

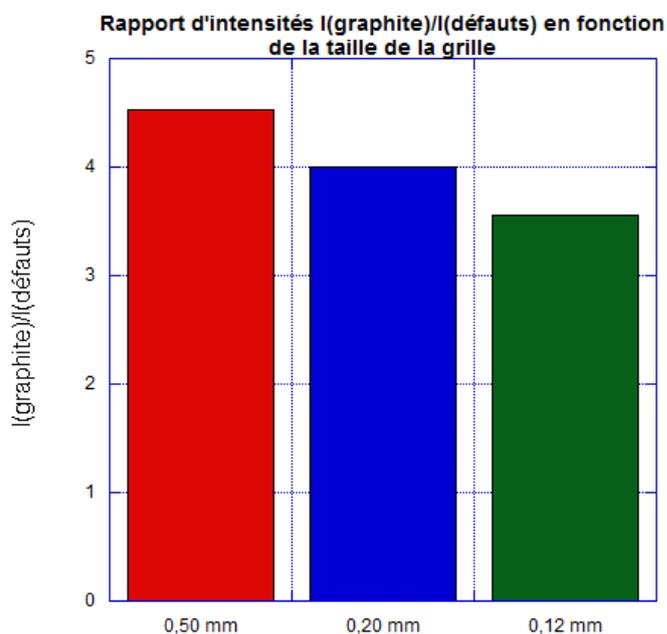


FIGURE 2.10 – Mise en évidence, par spectroscopie Raman, de l'évolution des défauts dans des fibres de carbone CN80C en fonction de la grille de découpe. I(g) : intensité du pic G (graphite) ; I(d) : intensité du pic D (défauts) [59].

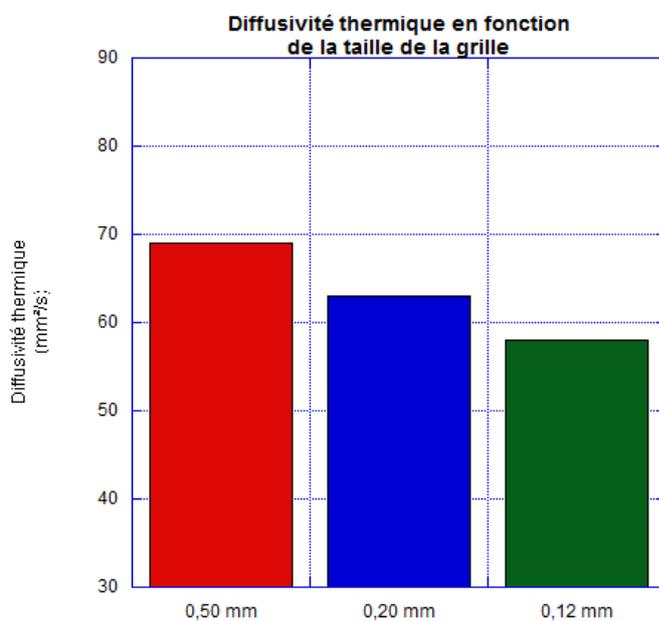


FIGURE 2.11 – Influence de la coupe des fibres de carbone sur la diffusivité thermique d'échantillons Al F3731-20%volCN80C frittés 20 minutes à 550 °C sous une charge de 50 MPa.

2.3.2 Influence de la durée de frittage

Différentes durée de frittage ont été testées au cours de ces travaux, allant de 10 à 60 minutes dans le cas des fibres de basse qualité (CN80C) et de 40 à 160 minutes pour les fibres de plus haute qualité (XN100). La figure 2.12 montre la variation de la densité relative en fonction de la durée de frittage à 600 °C sous 50 MPa pour des échantillons Al F3731-20%_{vol}CN80C. L'analyse de ces résultats permet de constater qu'une durée de frittage trop courte (10 et 20 minutes) ne permet pas l'obtention d'une forte densité relative. De la porosité résiduelle est donc présente dans ces échantillons. Or, lorsque ces échantillons sont observés par microscopie électronique à balayage, il peut être constaté que cette porosité résiduelle est présente de manière prépondérante au niveau de l'interface entre la matrice et le renfort (2.14, micrographies a et b). D'un point de vue thermique, la présence de cette porosité va empêcher l'obtention d'un transfert efficace du flux de chaleur de la matrice d'aluminium vers la fibre de carbone d'où une diffusivité thermique relativement faible pour un temps de frittage court (Fig. 2.13).

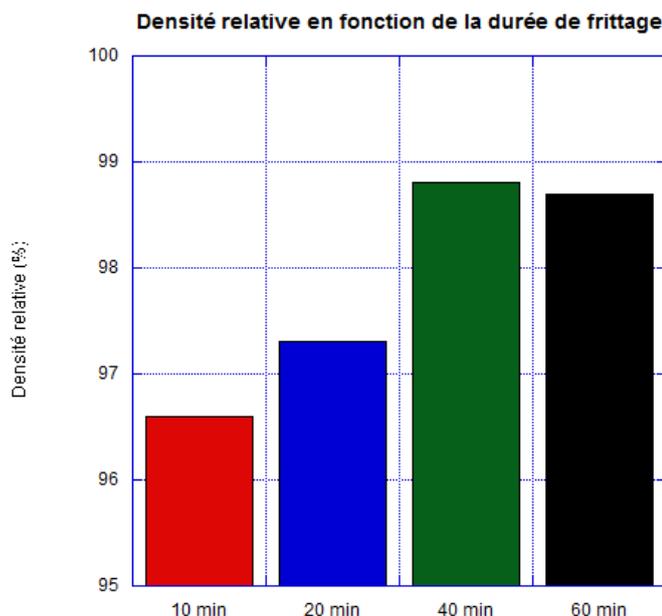


FIGURE 2.12 – Influence du temps de frittage à 600 °C et 50 MPa sur la densité relative d'un composite Al F3731-20%_{vol}CN80C

Au contraire, dès lors que la durée de frittage est suffisamment longue (ici, 40 minutes et plus) alors la densité relative du composite va tendre vers 100 % (Fig. 2.12). La porosité a donc été éliminée au sein du matériau et en particulier à l'interface fibre/matrice. Il existe donc un contact direct entre la matrice et le renfort (micrographies c et d de la figure 2.14). Grâce à un tel contact, un transfert efficace du flux de chaleur devient possible. En prenant en compte ces observations, il peut alors être expliqué qu'une diffusivité thermique plus élevée est mesurée dans le cas des composites ayant été frittés plus de 40 minutes que dans le cas des composites ayant été frittés moins longtemps (Fig. 2.13).

Dans le cas présenté ici, une diffusivité thermique de l'ordre de 76 mm²/s a été mesurée pour une durée de frittage de 40 minutes ou plus à 600 °C. Ce résultat correspond

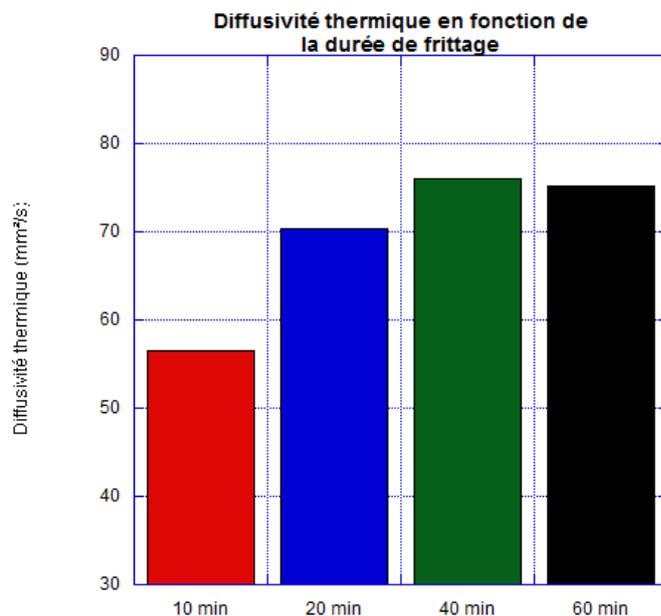


FIGURE 2.13 – Influence du temps de frittage à 600 °C et 50 MPa sur la diffusivité thermique d'un composite Al F3731-20%_{vol}CN80C

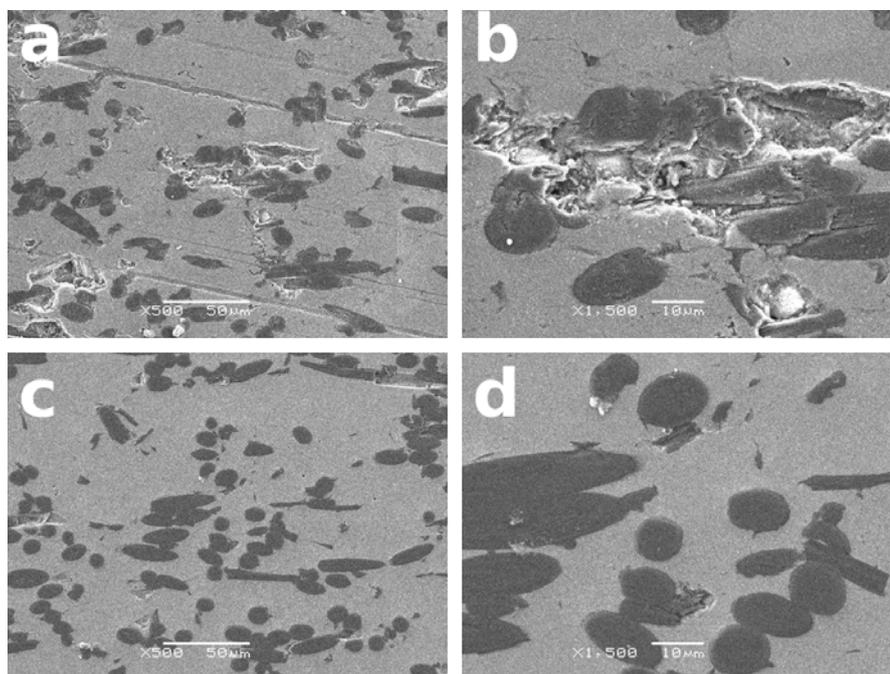


FIGURE 2.14 – Micrographies électroniques de Al F3731-20%_{vol}CN80C frittés à 600 °C et 50 MPa - a et b frittage de 20min - c et d frittage de 60min

à diffusivité thermique relative de 87 % de la valeur théorique ($87 \text{ mm}^2/\text{s}$), ce qui est élevé compte tenu des approximations utilisées lors du calcul (2.2.3 Diffusivité thermique :

résultats théoriques 59). Cette valeur reste cependant inférieure à celle de la matrice d'aluminium ($90 \text{ mm}^2/\text{s}$).

En utilisant strictement le même protocole de synthèse mais en utilisant cette fois-ci des renforts de meilleure qualité (les fibres XN100 présentent un rapport $\frac{I_G}{I_D}$, après broyage à l'aide de la grille de $0,5 \text{ mm}$, égal à $7,3$ contre seulement $4,5$ pour les fibres CN80C utilisées précédemment), il est possible d'augmenter la diffusivité thermique du composite jusqu'à $87 \text{ mm}^2/\text{s}$ soit une diffusivité thermique pratiquement équivalente à celle de l'aluminium. Cependant, utiliser des fibres de plus haute qualité implique un plus faible taux de défauts de surface et donc une réactivité plus faible vis-à-vis de la matrice. Afin de compenser cela, il a été choisit d'augmenter la durée de frittage. La diffusivité thermique la plus élevée ($99 \text{ mm}^2/\text{s}$) a été mesurée pour une durée de frittage de 160 minutes ce qui est donc supérieur à la diffusivité thermique de la matrice ($90 \text{ mm}^2/\text{s}$). Cette valeur correspond alors à 87 % de la valeur théorique ($114 \text{ mm}^2/\text{s}$).

En conclusion, la durée de frittage joue donc sur deux paramètres :

- aux temps courts la durée de frittage a un effet principalement sur la densité du matériau ;
- aux temps longs, le matériau est déjà densifié mais les interfaces renforts/matrice peuvent évoluer et ainsi permettre d'exploiter au mieux le renfort.

2.3.3 Influence de la température de frittage

Le phénomène de frittage a sa cinétique régie par la diffusion des atomes entre les grains de la matrice d'aluminium. Cette cinétique étant d'autant plus élevée que la température est importante, une densité relative plus élevée est attendue pour une température de frittage plus élevée. De plus, il est admis qu'un meilleur contact entre les grains de la poudre favorise la densification au cours du frittage (un frittage sous pression permet effectivement l'obtention de densités plus élevées qu'un frittage libre réalisé dans les mêmes conditions). De plus, pour une pression considérée, plus la température est élevée et plus l'aluminium va être facilement déformable favorisant ainsi le contact entre les grains.

Les mesures de densité pratiquées sur des échantillons frittés à $550 \text{ }^\circ\text{C}$ et $600 \text{ }^\circ\text{C}$ mettent effectivement en évidence une plus forte densité lorsque la température appliquée est plus élevée. Alors que des matériaux frittés à $600 \text{ }^\circ\text{C}$ peuvent présenter une densité relative de l'ordre de 99 %, celle des échantillons frittés à $550 \text{ }^\circ\text{C}$ n'excède pas de manière reproductible 95 %.

Les mêmes conclusions concernant une température de frittage trop faible vont ainsi pouvoir être dégagées que pour un temps de frittage trop court, à savoir qu'elle ne va pas permettre une élimination efficace de la porosité dans le matériau et particulièrement à l'interface fibre/matrice. Cela se traduit donc un transfert peu efficace du flux de chaleur d'où les plus faibles diffusivités thermiques mesurées pour une température de frittage de $550 \text{ }^\circ\text{C}$ qu'à $600 \text{ }^\circ\text{C}$ et cela même pour des durées de frittage importantes (Fig. 2.15).

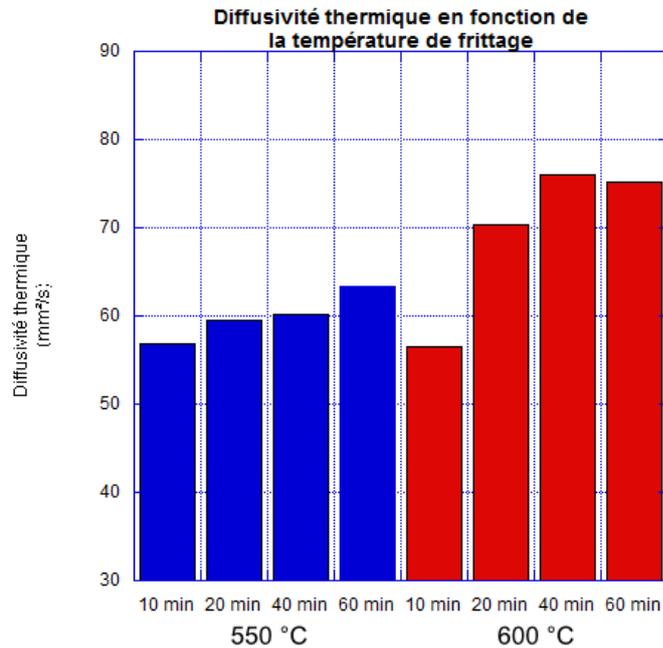


FIGURE 2.15 – Influence de la température de frittage sur la diffusivité thermique pour des échantillons Al F3731-20%_{vol}CN80C.

Outre le fait que l'application d'une température plus élevée permet d'améliorer le frittage des matériaux ainsi que leurs propriétés thermiques, il peut aussi être constaté un effet de la température de frittage sur la reproductibilité des mesures. Ainsi pour une série comprenant de nombreux échantillons Al F3731-20%_{vol}CN80C frittés durant 20 minutes, les valeurs suivantes ont été mesurées (Fig. 2.16) :

- pour une température de frittage de 550 °C :
 - diffusivité thermique moyenne : $a(moy) = 59,5 \text{ mm}^2/s$,
 - écart type : $\sigma = 5,6 \text{ mm}^2/s$,
 - écart type relatif : $(\sigma/a(moy)) \times 100 = 9,4 \%$,
 - précision de la mesure : 5 % ;
- pour une température de frittage de 600 °C :
 - diffusivité thermique moyenne : $a(moy) = 70,4 \text{ mm}^2/s$,
 - écart type : $\sigma = 4,8 \text{ mm}^2/s$,
 - écart type relatif : $(\sigma/a(moy)) \times 100 = 6,8 \%$,
 - précision de la mesure : 5 %.

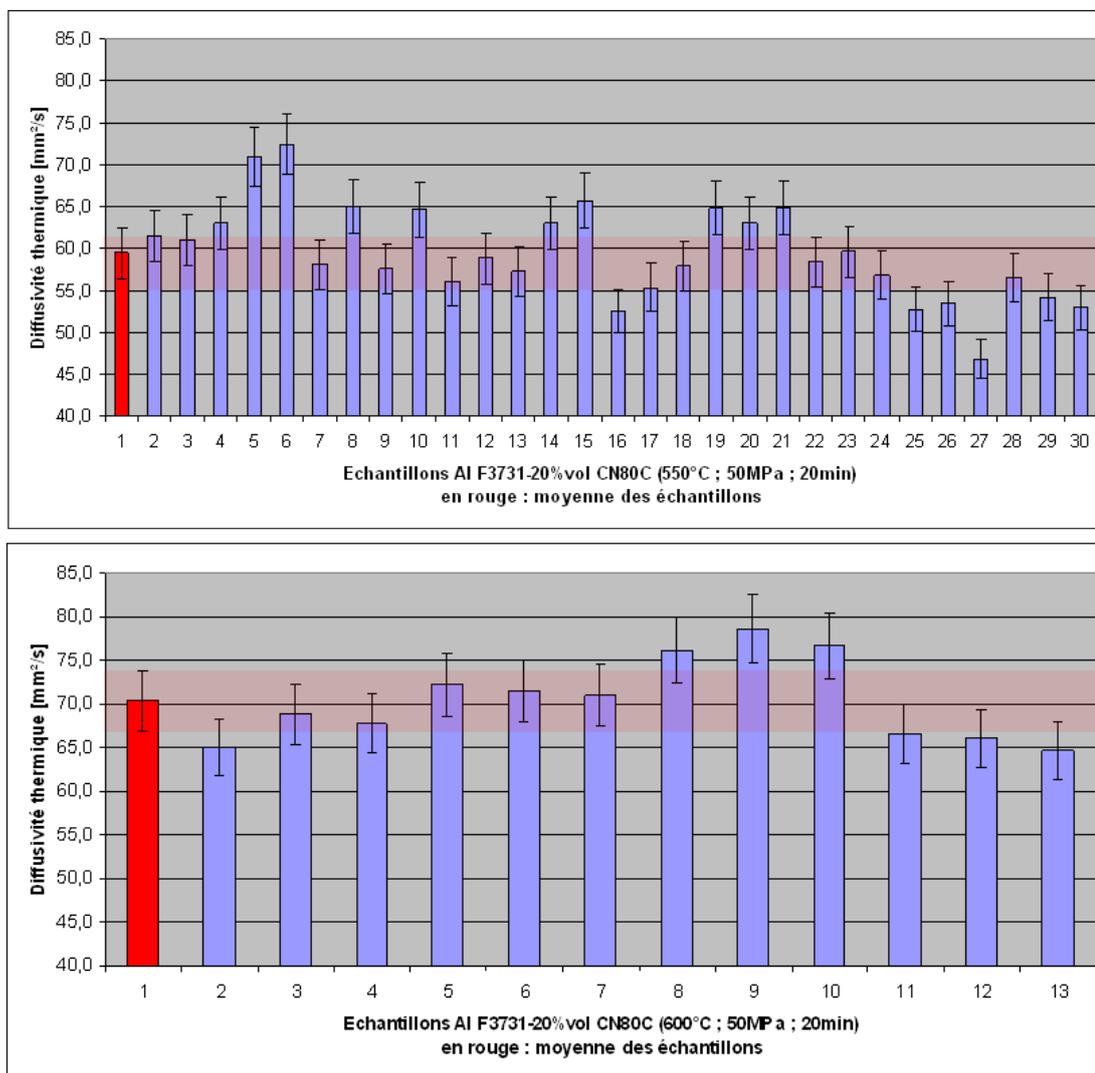


FIGURE 2.16 – Influence de la température de frittage sur la dispersion des résultats pour des échantillons Al F3731-20%*vol*CN80C

Le fait de passer de 500 °C à 600 °C permet d'augmenter significativement la diffusivité thermique moyenne des échantillons grâce à une élimination plus efficace de la porosité. Cependant, le fait que l'écart type relatif soit systématiquement supérieur à la précision de la mesure indique que les renforts ne sont pas parfaitement dispersés au sein de la matrice : les poudres composites ne sont donc pas parfaitement homogènes. De plus, il peut être remarqué que l'écart type relatif devient plus faible lorsque la température de frittage est augmentée. Or, les échantillons sont élaborés à partir des mêmes mélanges de poudre composite et dans les mêmes conditions de frittage à l'exception de la température. L'augmentation de la température permet donc également d'améliorer l'homogénéité de la microstructure des échantillons grâce à fluage plus important de l'aluminium.

2.3.4 Influence du pourcentage de renfort

La cohésion mécanique du matériau étant assurée par le frittage de la matrice d'aluminium, il en résulte que plus le volume de renfort sera élevé et plus une densité relative élevée sera difficile à obtenir. Il a donc été volontairement choisi de se limiter à 20 et 30 %_{vol} dans le cas de ces travaux.

La répartition de fibres CN80C dans un plan conduit à des propriétés thermiques assez proches de celle de la matrice (2.2.3 Diffusivité thermique : résultats théoriques 59), le pourcentage volumique de renfort n'aura donc en théorie qu'une influence très faible sur les propriétés thermiques des échantillons. L'intérêt de ces fibres n'est donc pas vis-à-vis des propriétés thermiques mais de pouvoir réduire le coefficient d'expansion thermique des composites (cf. 2.4 Cycles thermiques et mesures du coefficient d'expansion thermique p. 74).

D'après l'histogramme présenté figure 2.17, les échantillons ayant 30 %_{vol} de fibres CN80C présentent une diffusivité thermique plus faible que ceux ayant été élaborés avec seulement 20 %_{vol} de renforts pour des durées de frittage de 10 et 20 minutes. Cela s'explique par le fait que la densité relative des composites ayant 30 %_{vol} est plus faible que ceux élaborés avec 20 %_{vol} de renforts (respectivement 93% et 97%). Il est donc confirmé qu'il est plus difficile d'obtenir une densification efficace avec de forts taux de renforts. En utilisant des durées de frittage plus longues, la diffusivité thermique des échantillons tend vers un maximum de l'ordre de 76 mm²/s que ce soit pour un pourcentage volumique de renforts de 20 ou 30%. Dans ces conditions, les échantillons sont effectivement parfaitement densifiés (avec des densités relatives similaires de l'ordre 98 à 99%) et présentent donc des propriétés thermiques identiques conformément aux prévisions théoriques présentée en « 2.2.3 Diffusivité thermique : résultats théoriques p. 59 ».

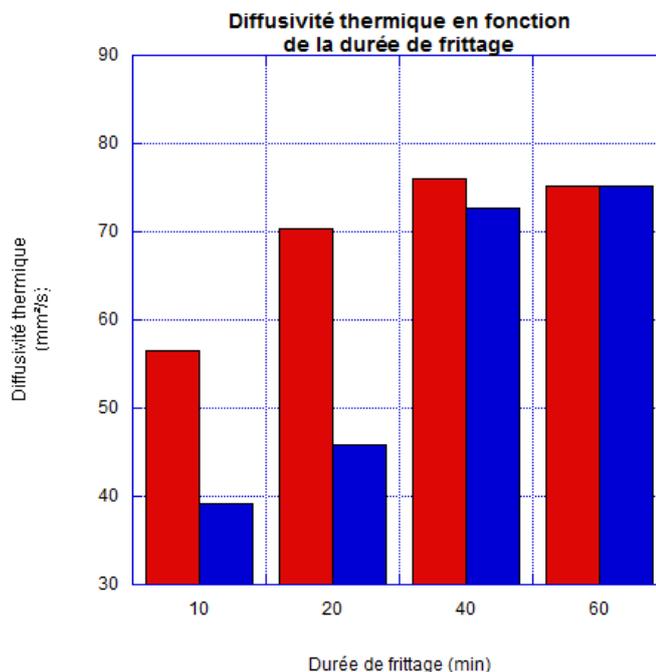


FIGURE 2.17 – Influence du pourcentage de renfort sur la diffusivité thermique pour une température de frittage de $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une pression de 50 MPa .

■ : composite aluminium renforcé par $20\%_{vol}$ de fibres de carbone CN80C.

■ : composite aluminium renforcé par $30\%_{vol}$ de fibres de carbone CN80C.

2.3.5 Influence du type de frittage : frittage par induction et frittage flash

Deux méthodes de frittage sous contrainte vont être comparées : le frittage par induction sous charge uniaxiale et le frittage flash aussi dénommé, entre autres, SPS (*Spark Plasma Sintering* ou *Spark Plasma System*) ou encore PECS (*Pulsed Electric Current Sintering*) mais aussi PAS (*Plasma Activated Sintering*) [57, 60].

Remarque :

- *Echantillons élaborés par SPS : les propriétés correspondent à celles d'un seul échantillon et non d'une moyenne sur un ensemble d'échantillons, cependant tous les échantillons Al F3731-20%_{vol}CN80C proviennent d'un seul et même mélange initial afin de limiter au maximum d'éventuels biais expérimentaux. La même précaution a été prise pour les échantillons Al-30%CN80C.*
- *Echantillons élaborés par induction : les propriétés rapportées sont moyennées sur un minimum de 3 échantillons.*
- *Pour des raisons matérielles (casse du moule en graphite), les échantillons devant être élaborés par SPS à $550\text{ }^{\circ}\text{C}$ pour une durée de 60 minutes n'ont pas pu être synthétisés.*

La méthode de frittage flash tire ce nom de sa capacité à obtenir de hautes densités relatives en des temps de frittage courts. Il est donc probable que d'excellents résultats

de diffusivité thermique puissent être obtenus par cette méthode dès la plus courte des durées étudiées, à savoir un frittage de 10 minutes. De plus, les mécanismes de frittage de cette méthode restent assez peu explicites et ne permettent pas de prédire si les microstructures, obtenues lors d'un frittage par SPS ou par induction, doivent être identiques ou non à partir des mêmes conditions expérimentales. A ce jour, trois tendances théoriques différentes se dégagent [57] :

- Selon le courant de pensée défendu par les inventeurs du procédé, un plasma se crée entre les grains, nettoyant et activant ainsi la surface des particules. La surface des particules devient alors beaucoup plus réactive que lors de l'utilisation d'un frittage standard, d'où une vitesse de frittage très élevée grâce à des transferts de matières efficaces [60].
- La génération d'un plasma n'ayant jamais été démontrée de manière directe [60], il a été suggéré que les effets lui ayant été imputés ne sont en réalité que des effets induits par l'application du courant électrique [61].
- Enfin, un dernier modèle argue que le mécanisme mis en jeu lors du frittage flash ne change rien par rapport à un frittage traditionnel. Il ne s'agirait en fait que d'une différence entre la mesure de température au thermocouple et la température réelle de l'échantillon [62].

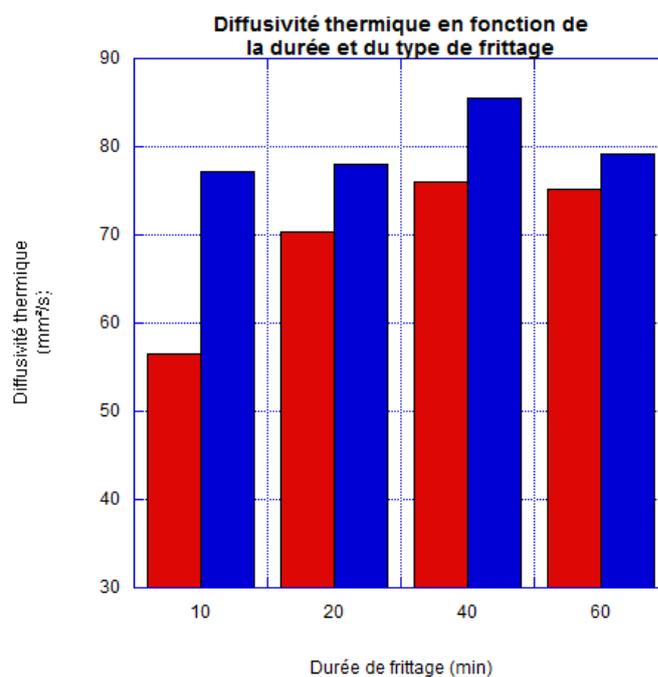


FIGURE 2.18 – Influence du type de frittage sur la diffusivité thermique pour des échantillons Al F3731-20%_{vol}CN80C frittés à 600 °C.

■ : frittage par induction. ■ : frittage flash.

Pour des durées de frittage de 10 ou 20 minutes, le choix de la méthode de frittage modifie fortement la diffusivité thermique des échantillons (Fig. 2.18 et 2.19). En effet, la méthode SPS permet l'obtention d'une forte densité relative dès 10 minutes de frittage (plus de 98 % aussi bien pour 20 ou 30 %_{vol} de fibres), ce qui n'est pas possible par induction (densité relative de l'ordre de 95 %). Même après 20 minutes de frittage,

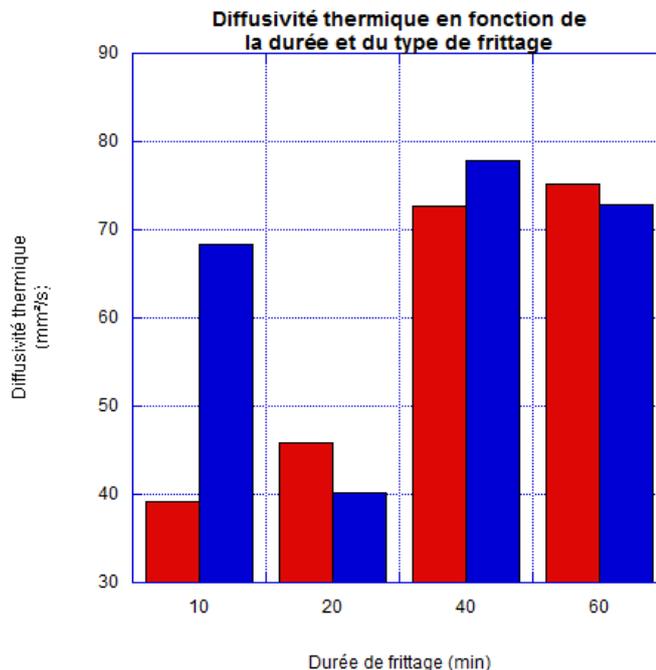


FIGURE 2.19 – Influence du type de frittage sur la diffusivité thermique pour des échantillons Al F3731-30%_{vol}CN80C frittés à 600 °C.

■ : frittage par induction. ■ : frittage flash.

la matrice d'aluminium reste moins bien densifiée par induction que par SPS comme l'attestent les micrographies présentées figure 2.21. Or il a été démontré qu'un taux de porosité de l'ordre de 5 % fait fortement chuter la diffusivité thermique d'un matériau [31, 32]. Il en résulte que la diffusivité thermique est bien plus élevée pour des temps de frittage court par SPS que par induction.

Par contre, les mesures de diffusivité thermique montrent que les mêmes résultats (à l'erreur de mesure près) sont obtenus, pour des durées de 40 ou 60 minutes, par frittage sous charge par induction ou bien par SPS, ceci quel que soit le pourcentage de renforts. Le fait que l'énergie soit apportée directement dans l'échantillon au moyen d'un courant électrique (frittage par la méthode flash) ou qu'elle soit apportée grâce au chauffage par induction du moule (frittage par induction) ne modifie donc pas les propriétés thermiques de l'échantillon. Dans les deux cas, la matrice est parfaitement densifiée et l'interface fibre/matrice ne présente que de rares défauts (Fig. 2.20).

L'utilisation d'une méthode de frittage ou de l'autre a donc une influence sur la cinétique de densification mais pas sur la valeur de diffusivité thermique pour une même densité relative. Dans les deux cas, les mêmes poudres composites ont été utilisées, la différence de cinétique de frittage ne peut donc pas s'expliquer par une différence de préparation ou bien une différence de réactivité entre les poudres. De plus, la pression appliquée lors du frittage est la même quelle que soit l'enceinte de frittage utilisée. De même, pour une durée de frittage donnée, la température de frittage mesurée est identique, soit 600 °C. Afin de mieux comprendre ces résultats, des analyses en microscopie électronique en transmission ont été menées et permettent de mettre en évidence l'existence de phénomène de haute énergie à l'échelle locale dans le cas du frittage flash.

Les différences microstructurales observées seront détaillées au chapitre suivant (2.4.3 Renforts CN80C : comparaison du frittage par induction et du frittage flash p. 80).

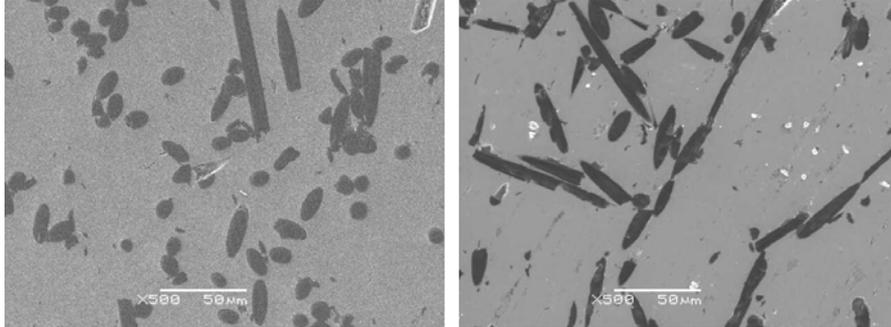


FIGURE 2.20 – Micrographies électroniques d'échantillons Al F3731-30%*vol* CN80C frittés à 600 °C, 60 minutes par induction (gauche) et par SPS (droite).

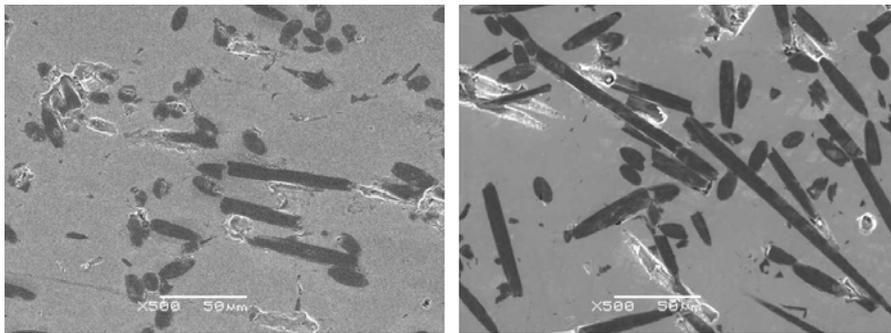


FIGURE 2.21 – Micrographies électroniques d'échantillons Al F3731-30%*vol* CN80C frittés à 600 °C, 20 minutes par induction (gauche) et par SPS (droite).

2.3.6 Diffusivité thermique de composites aluminium/fibres de carbone issus d'un protocole optimisé

Afin d'obtenir des composites optimisés du point de vue des propriétés thermiques, le protocole, en 2 étapes, suivant a été mis en place (protocole validé jusqu'à 30%*vol* de renforts).

1. Obtention d'une poudre composite avec des renforts individualisés et dispersés de manière homogène :
 - (a) déliantage des fibres de carbone sous air à 400 °C pendant une heure,
 - (b) découpe des fibres de carbone à l'aide d'une grille de 0,5 mm,
 - (c) mélange de la poudre Al F3731 et de la quantité désirée de fibres de carbone déliantées et broyées. Le mélange doit être mixé durant 5 minutes sous argon.
2. Frittage de la poudre composite sous une charge uniaxiale de 50 MPa, sous vide, à 600 °C et pour une durée de 40 minutes ou de 160 minutes si les renforts sont de types CN80C ou XN100 respectivement.

Dans ces conditions, les valeurs suivantes de diffusivité thermique ont été mesurées –

les valeurs calculées en « 2.2.3 Diffusivité thermique : résultats théoriques p. 59 » sont rappelées entre parenthèses – :

- avec des renforts de type CN80C :
 - $a_{Al\ F3731-20\%_{vol}CN80C} = 76\ mm^2/s$ ($82\ mm^2/s$),
 - $a_{Al\ F3731-30\%_{vol}CN80C} = 78\ mm^2/s$ ($85\ mm^2/s$);
- avec des renforts de type XN100 :
 - $a_{Al\ F3731-20\%_{vol}XN100} = 99\ mm^2/s$ ($106\ mm^2/s$),
 - $a_{Al\ F3731-30\%_{vol}XN100} = 102\ mm^2/s$ ($122\ mm^2/s$).

2.3.7 Conclusion

Il a été démontré ici que la densité relative de l'échantillon est un facteur influençant les propriétés thermiques des composites aluminium/fibres de carbone puisqu'elle détermine en grande partie la qualité du contact fibre/matrice [63] et influence ainsi l'efficacité du transfert du flux thermique. L'optimisation des paramètres d'obtention de la poudre composite ainsi que des conditions des frittages ont pour but premier de tendre vers une densification parfaite du matériau. Ainsi des diffusivités thermiques de – en moyenne – $76\ mm^2/s$, $78\ mm^2/s$, $99\ mm^2/s$ et $102\ mm^2/s$ ont été obtenues après frittage pour des composites Al F3731-20%_{vol}CN80C, Al F3731-30%_{vol}CN80C, Al F3731-20%_{vol}XN100 et Al F3731-30%_{vol}XN100 respectivement. Ceci correspond à 93%, 92%, 93% et 84% des diffusivités fixées comme objectif en « 2.2.3 Diffusivité thermique : résultats théoriques p. 59 ».

2.4 Cycles thermiques et mesures du coefficient d'expansion thermique

Comme il a été démontré au cours du chapitre « 1.2 Modélisation de l'influence de la nature du drain thermique sur un montage électronique p. 27 », le matériau de semelle du montage électronique doit avoir un coefficient de dilatation thermique de l'ordre de $10 \times 10^{-6} /K$ pour une efficacité optimale. Des mesures de dilatométrie ont donc été faites sur les échantillons subissant le cycle thermique présenté figure 2.22. Le coefficient de dilatation thermique est mesuré de la température ambiante jusqu'à $300\ ^\circ C$ mais seule est retenue la valeur moyenne calculée entre 100 et $200\ ^\circ C$, ceci pour une meilleure précision. Pour chaque échantillon, une seconde série de mesures a été faite systématiquement afin de valider les résultats de la première série. Soit un total de huit mesures par échantillons.

Remarques :

- *Certains échantillons ont subi jusqu'à 20 mesures afin d'étudier une éventuelle évolution du coefficient de dilatation thermique avec les cycles thermiques. Afin de faciliter les comparaisons entre les différents graphiques « Coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures », une échelle commune a été définie allant de 10 à $25 \times 10^{-6} /K$ en ordonnée et des mesures 1 à 20 en abscisses, cela même dans le cas d'échantillon ayant été mesuré moins de 20 fois.*
- *Un taux de renfort de 20%_{vol} de fibres de carbone n'ayant qu'un très faible effet sur les valeurs du coefficient de dilatation thermique, il a été choisi de ne présenter ici que des résultats obtenus pour des composites renforcés par 30%_{vol} de fibres de*

carbone sauf précision contraire. L'ensemble des résultats est toutefois disponible dans le tableau récapitulatif présenté figure 2.28 en « 2.4.4 Conclusion p. 84 ».

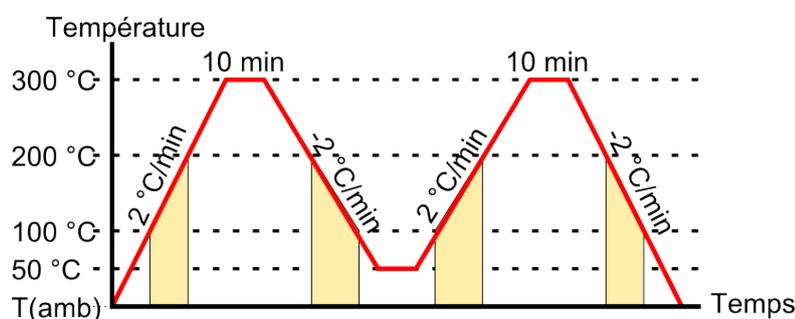


FIGURE 2.22 – Cycle de mesure de dilatométrie.

En rouge : représentation de la température du dilatomètre en fonction du temps.

En jaune : plage de températures utilisée pour le calcul du coefficient de dilatation thermique.

Alors que l'interface renfort/matrice n'avait qu'une influence négligeable sur les valeurs de diffusivité thermique des échantillons, il va être démontré, dans la suite de cette section, qu'elle a une influence déterminante sur la valeur du coefficient de dilatation thermique du matériau. Ainsi, vont être présentés les résultats concernant les matériaux renforcés par les fibres les moins réactives (fibres XN100) puis par les fibres les plus réactives (fibres CN80C). Pour ces dernières, les résultats seront présentés en fonction de la méthode de frittage utilisée (frittage par induction et frittage flash). Quel que soit le renfort ou la méthode de frittage, les échantillons présentés ici ont tous été frittés à $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ sous une charge de 50 MPa . Cependant, afin de pouvoir anticiper les résultats concernant les composites aluminium/fibres de carbone, des résultats concernant un composite similaire (cuivre/fibres de carbone) vont être présentés dans un premier temps.

2.4.1 Composites cuivre/fibres de carbone

Il a été montré, au cours de travaux précédents [31,32] et en cours, qu'il est possible de préparer par frittage par induction des composites cuivre/fibre de carbone dont le coefficient de dilatation thermique est plus faible que celui du cuivre.

Le protocole d'élaboration de ces composites est le même que celui utilisé pour les composites à matrice d'aluminium si ce n'est que les paramètres de frittage ont été adaptés aux spécificités du cuivre, soit :

1. obtention d'une poudre composite avec des renforts individualisés et dispersés de manière homogène :
 - (a) déliantage des fibres de carbone sous air à $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ pendant une heure,
 - (b) découpe des fibres de carbone à l'aide d'une grille de $0,5\text{ mm}$,
 - (c) mélange de la poudre de cuivre et de la quantité désirée de fibres de carbone déliantées et broyées. Le mélange est alors mixé durant 5 minutes sous argon ;
2. la poudre composite est frittée sous une charge uniaxiale de 50 MPa , sous vide, à $650\text{ }^{\circ}\text{C}$ et pour une durée de 20 minutes quelle que soit la qualité du renfort.

Il a été mis en évidence que ces composites sont parfaitement densifiés (densité relative de l'ordre de 99 %) pour une durée de frittage de 20 minutes. De plus, contrairement à l'aluminium, le cuivre est inerte vis-à-vis du carbone : l'interface matrice/renfort est donc une interface mécanique (c'est-à-dire une interface sans réactions chimiques).

Parmi les résultats ayant été obtenu, seuls vont être présentés ceux concernant des composites à matrice de cuivre renforcés par 30 %_{vol} de fibres de carbone CN80C et XN100, c'est-à-dire renforcés par les mêmes renforts et les mêmes quantités que les composites à matrice d'aluminium de cette étude.

Sachant que :

- le coefficient de dilatation thermique du cuivre est de $17 \times 10^{-6} /K$;
- le coefficient de dilatation thermique de la fibre de carbone est de $12 \times 10^{-6} /K$ dans le sens de l'épaisseur ;
- le coefficient de dilatation thermique de la fibre de carbone est de $-1 \times 10^{-6} /K$ dans le sens de la longueur.

Il peut donc en être déduit que lors d'un refroidissement, la matrice va se contracter plus que le renfort. De plus, sachant que le composite est utilisé à une température inférieure à celle de son élaboration, alors la fibre est contrainte par la matrice. De plus l'interface cuivre/fibre de carbone est inerte chimiquement. L'interface est donc due uniquement au frettage du renfort par la matrice et sera qualifiée d'interface mécanique. Or, il a été montré que les composites cuivre/fibres de carbone (CN80C ou XN100) présentent un coefficient de dilatation thermique de $14 \times 10^{-6} /K$ et sont suffisamment stables pour qu'il ne soit pas mesuré de modifications significatives même après plusieurs centaines de cycles thermiques. L'interface mécanique est donc suffisante pour permettre un transfert des contraintes de la matrice vers les renforts.

L'aluminium ayant un coefficient de dilatation thermique ($24 \times 10^{-6} /K$) encore plus élevé que celui du cuivre, la matrice d'aluminium se contractera donc encore plus que le cuivre après élaboration. Le frettage des fibres de carbone par l'aluminium devrait donc être plus important que celui observé pour du cuivre. L'interface mécanique obtenue avec une matrice d'aluminium doit donc être plus forte qu'avec du cuivre et donc permettre ainsi un transfert plus efficace des propriétés de dilatation thermique entre la matrice et le renfort.

De plus, l'aluminium peut former un carbure d'aluminium par réaction avec du carbone. Une interface chimique peut donc s'ajouter à l'interface mécanique. L'avantage d'une interface chimique est qu'elle permet une liaison forte de la matrice aux renforts et donc un excellent transfert de propriétés. Cependant, une trop forte présence de carbure d'aluminium entraînerait, d'une part, de fortes résistances thermiques puisque le carbure d'aluminium est un mauvais conducteur thermique ($\approx 30 W/m \times K$) et, d'autre part, rendrait l'interface fibre/renfort plus fragile.

2.4.2 Composites aluminium/fibres de carbone « hautes qualités » (XN100)

Des mesures de dilatométrie ont été conduites sur des échantillons frittés de 80 à 160 minutes et pour des quantités de renforts de 20 %_{vol} et 30 %_{vol}. En fonction de la quantité de renforts, deux comportements sont observés. Dans le cas de composites renforcés par 20 %_{vol} de fibres XN100, aucun effet du renfort ne peut-être mesuré : le coefficient de dilatation thermique du composite reste de l'ordre de $23 - 24 \times 10^{-6} /K$ soit celui de la matrice et cela quelle que soit la durée de frittage (Fig. 2.23).

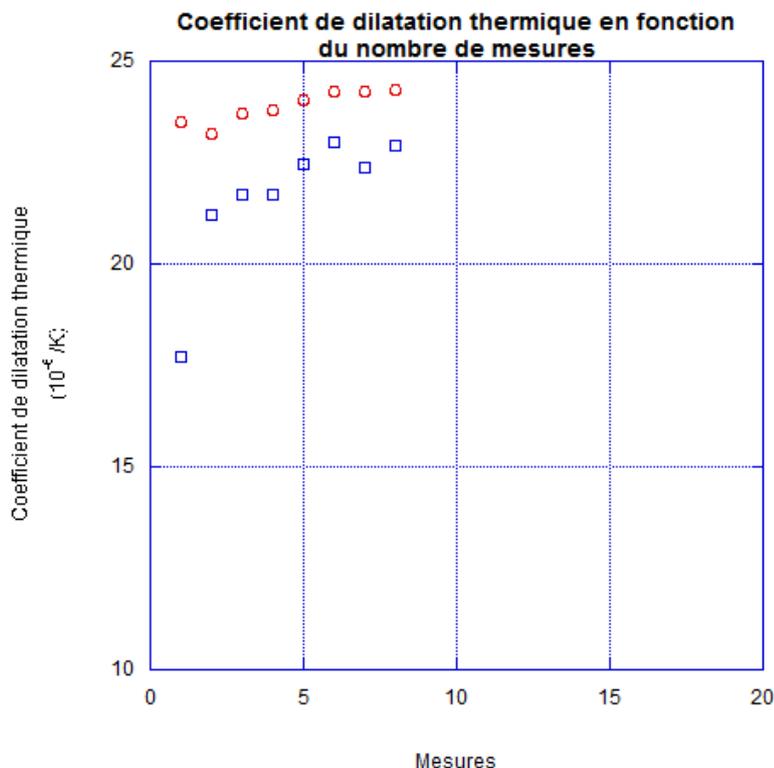


FIGURE 2.23 – Évolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour des échantillons Al F3731 renforcés par 20 (rond rouge) et 30 %_{vol} (carré bleu) de fibres XN100 et fritté respectivement durant 160 et 80 minutes par induction.

Dans le cas de composites renforcés par 30 %_{vol} de fibres XN100, un effet du renfort est observé bien que la totalité des échantillons présente un coefficient de dilatation thermique de l'ordre de $23 - 24 \times 10^{-6} /K$ à l'issue des huit cycles de mesure, soit la même valeur que celle de la matrice. Cependant, il est observé sur les premières mesures un coefficient de dilatation thermique plus faible et de l'ordre de $17 - 18 \times 10^{-6} /K$.

Certains auteurs [64, 65] considèrent que la valeur de la première mesure n'est pas représentative de l'échantillon. En effet, l'échantillon emmagasine de nombreuses contraintes thermomécaniques au cours de son élaboration et le fait de mesurer son coefficient de dilatation thermique nécessite de le chauffer et peut être assimilé à un traitement thermique permettant la relaxation thermique de ces contraintes. Pour ces raisons la mesure 1 sera présentée mais systématiquement écartée des discussions concernant les résultats. De plus, d'après les résultats observés sur des composites à matrice de cuivre, un coefficient de dilatation thermique plus faible était attendu dans le cas d'un composite aluminium/fibres de carbone que dans le cas d'un échantillon d'aluminium. Seul les mesures présentées figure 2.23 témoignent d'un effet du renfort de plus en plus faible au fur et à mesure des cycles thermiques. Or ces cycles thermiques (température ambiante jusqu'à $300\text{ }^{\circ}C$) ne sont pas suffisants pour dégrader les renforts. L'évolution du coefficient de dilatation thermique doit donc être expliquée par une modification de la matrice ou bien de l'interface matrice/renfort.

- Hypothèse selon laquelle l'interface matrice/renfort est constante au cours des cycles thermiques.

Si la force de l'interface matrice/renfort est nulle alors la matrice d'aluminium ne subit pas de contraintes thermomécaniques dues à la présence des renforts. Compte tenu des températures utilisées, il est possible de relaxer les contraintes emmagasinées lors de l'élaboration du matériau [64, 65]. Une fois ces contraintes relaxées aucun autre phénomène ne peut être envisagé pour modifier la valeur du coefficient de dilatation thermique mesurée. Le composite doit donc présenter un coefficient de dilatation thermique constant au cours des différentes mesures. Etant donné, qu'il existe une évolution du coefficient de dilatation thermique alors l'hypothèse d'une force d'interface matrice/renfort nulle est invalide.

Si la force de l'interface matrice/renfort est élevée alors la matrice d'aluminium subit des contraintes thermomécaniques dues à la présence des renforts. Si ces contraintes restent inférieures à la limite d'élasticité, alors les mêmes conclusions que pour une force d'interface nulle peuvent être déduites. Si ces contraintes sont supérieures à la limite d'élasticité, alors la matrice va subir des déformations plastiques. Ces déformations plastiques ne vont pas permettre de conserver la géométrie de l'échantillon. Or le coefficient de dilatation thermique est déduit de la mesure du déplacement d'un poussoir en contact avec l'échantillon. Si la géométrie de l'échantillon est déformée alors le poussoir en contact avec l'échantillon est déplacé et la mesure de coefficient de dilatation thermique est biaisée. Il n'y a cependant aucune raison pour que les valeurs mesurées dans ces conditions tendent vers le coefficient de dilatation thermique d'une référence en aluminium ($24 \times 10^{-6} /K$). Or il est observé aussi bien pour les échantillons présentés ici que pour ceux qui seront présentés dans la suite de cette étude que le coefficient de dilatation thermique augmente jusqu'à tendre vers $24 \times 10^{-6} /K$. En conclusion, si jamais la matrice est plastifiée à cause d'une interface fibre/matrice très forte alors ce phénomène est trop faible pour pouvoir être détecté et n'explique pas l'évolution du coefficient de dilatation thermique qui a été constatée.

- Hypothèse selon laquelle la force de l'interface matrice/renfort évolue au cours des cycles thermiques.

La force de l'interface matrice/renfort est liée d'une part aux effets mécanique et d'autre part aux réactions chimiques. L'interface mécanique est directement liée au frottement des fibres de carbone par l'aluminium. Or la force du frottement est liée à la différence de coefficient de dilatation thermique entre le renfort et la matrice. Cette différence étant la même d'un cycle thermique au suivant, alors la même force de frottement est appliquée d'un cycle thermique à l'autre. L'interface mécanique n'évolue donc pas et ne peut donc pas servir à expliquer l'évolution du coefficient de dilatation thermique des échantillons.

Cependant, le fait que la valeur mesurée augmente petit à petit pour finalement atteindre le coefficient de dilatation thermique de la matrice peut être interprété par une détérioration de l'interface chimique au fur et à mesure des cycles thermiques. Il est alors nécessaire de considérer les points suivants :

- le cycle thermique nécessaire à la mesure fait subir une certaine quantité de contraintes à l'échantillon ;
- les contraintes sont préférentiellement transférées par les zones où une interface forte (chimique) a été créée plutôt que par les zones où il existe seulement une interface faible (mécanique) ;

- l'interface chimique de ce système est liée à la formation de carbure d'aluminium, c'est-à-dire à la formation d'un matériau fragile.

Afin de ne pas fracturer les cristaux de carbure d'aluminium, permettant une interface chimique entre matrice et renfort, il est nécessaire que les contraintes subies par les cristaux soient inférieures à la contrainte à rupture. Plus il y aura de zones présentant une interface chimique et plus les contraintes seront réparties. Au-delà d'une quantité critique d'interface chimique, les contraintes par unité de volume seront suffisamment faibles pour être inférieures à la contrainte à rupture. Dans ce cas là, les contraintes thermomécaniques seront transférées au renfort sans dégradation de l'interface. Le coefficient de dilatation thermique du composite sera donc constant. Or il est observé que le coefficient de dilatation thermique de l'échantillon augmente jusqu'à atteindre celui de la matrice. La quantité d'interface chimique est donc inférieure à la quantité critique. L'interface chimique est donc dégradée mécaniquement à chaque cycle thermique, le renfort devient donc de moins en moins efficace, d'où l'augmentation du coefficient de dilatation thermique jusqu'à ce que la contribution du renfort soit nulle et donc que le coefficient de dilatation thermique du composite soit équivalent à celui de la matrice sans renforts. Il est à noter que ce phénomène est plus marqué lorsque le taux de renfort et la durée de frittage augmentent, c'est à dire pour les interfaces les plus fortes, ce qui conforte l'hypothèse d'une dégradation de l'accroche fibre/matrice.

En prenant en compte le fait que les fibres utilisées ici (fibres XN100) sont des fibres « haute qualité », il peut être déduit qu'elles présentent peu de défauts de surface et sont donc peu réactives vis-à-vis de la matrice d'aluminium. En supposant que le même protocole de synthèse soit appliqué mais en utilisant cette fois-ci des fibres de plus basse qualité alors ces renforts présenteraient plus de défauts de surface et donc une plus grande réactivité vis-à-vis de la matrice. Une plus grande quantité d'interface chimique serait créée et permettraient finalement un meilleur transfert des propriétés mécaniques et ainsi un coefficient de dilatation thermique plus faible. Une telle expérimentation est présentée au paragraphe suivant (2.4.3 *Elaboration par frittage par induction : comparaison des renforts XN100 et CN80C* p. 79) en utilisant les fibres CN80C à la place des fibres XN100 utilisées ici.

2.4.3 Composites aluminium/fibres de carbone « basses qualités » (CN80C)

Elaboration par frittage par induction : comparaison des renforts XN100 et CN80C

Sont présentées figure 2.24 l'évolution du coefficient de dilatation thermique d'un composite Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de XN100 et celle d'un composite Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de CN80C.

Il peut être constaté qu'à nombre de mesures égal, le coefficient de dilatation thermique mesuré pour les fibres les plus réactives (CN80C) est inférieur à celui mesuré pour les fibres les moins réactives (XN100) conformément à l'hypothèse présentée précédemment. De par leur structure, les fibres XN100 présentent moins de défauts et sont donc moins réactives que les fibres CN80C. La surface d'interaction chimique est donc réduite dans le cas de fibres XN100 par rapport aux fibres CN80C. Ainsi, une moins grande quantité d'interface chimique est donc créée dans le cas des fibres XN100 qu'en utilisant

les CN80C. Le transfert de contraintes thermomécaniques entre la matrice et le renfort moins efficace (même en appliquant une durée de frittage deux fois plus longue) et donc le coefficient de dilatation thermique est plus élevé en utilisant les fibres « haute qualité » plutôt que les fibres « basse qualité ».

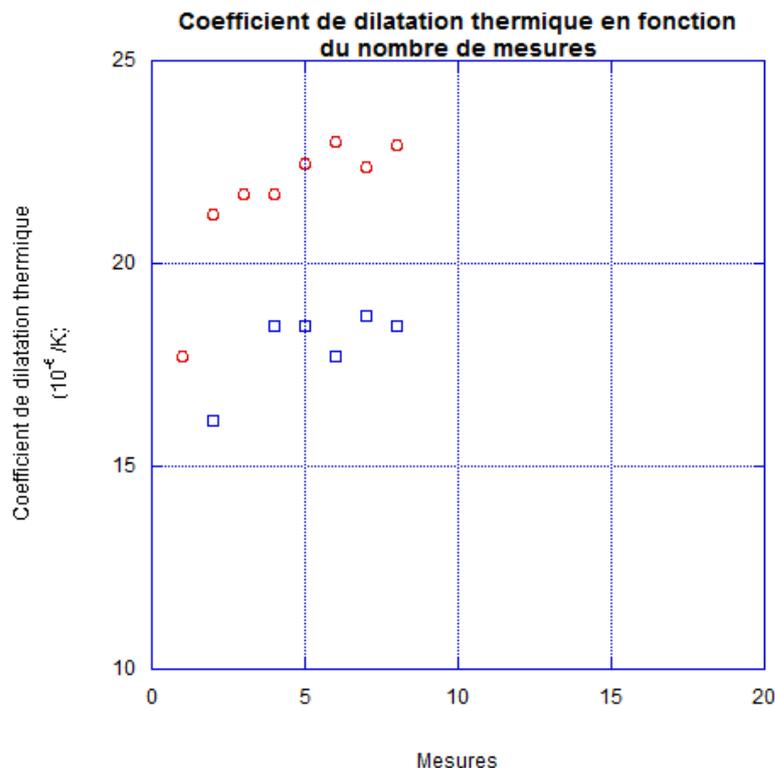


FIGURE 2.24 – Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents.

■ Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres XN100 et fritté durant 80 minutes par induction.

■ Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et fritté durant 40 minutes par induction (les mesures 1 et 3 n'ont pas été reportée pour cause de biais expérimentaux).

Renforts CN80C : comparaison du frittage par induction et du frittage flash

Les résultats des mesures du coefficient de dilatation thermique d'un composite Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et élaboré par SPS sont présentés figure 2.25 avec les résultats précédents concernant les deux types de fibres. Le frittage flash permet l'obtention d'un coefficient de dilatation thermique plus faible que par le frittage par induction. En suivant l'hypothèse formulée précédemment selon laquelle le transfert des propriétés mécaniques est directement lié à la force de l'interface chimique fibre/matrice

alors il peut être déduit que le frittage flash permet l'obtention d'une interface chimique plus forte que le frittage par induction.

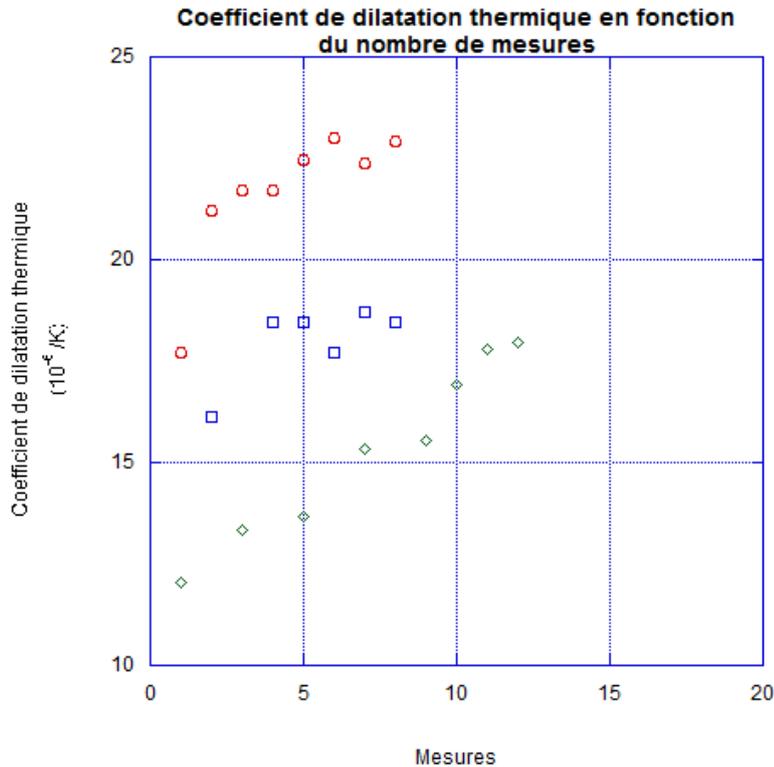


FIGURE 2.25 – Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents et élaborés par frittage par induction et SPS.

- Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres XN100 et fritté durant 80 minutes par induction.
- Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et fritté durant 40 minutes par induction.
- Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et fritté durant 40 minutes par SPS.

Toujours en admettant que la qualité de l'interface fibre/matrice soit effectivement responsable de l'évolution du coefficient de dilatation thermique des matériaux, alors les temps de frittage les plus courts ne doivent pas permettre de réduire fortement le coefficient de dilatation thermique puisqu'ils ne permettent qu'une faible durée de réaction entre fibre et matrice et donc l'obtention d'une faible quantité d'interface chimique. Ceci est effectivement constaté expérimentalement (Fig. 2.26) : l'effet du renfort est bien plus faible dans le cas d'un composite fritté 10 minutes que dans le cas d'un composite fritté une heure.

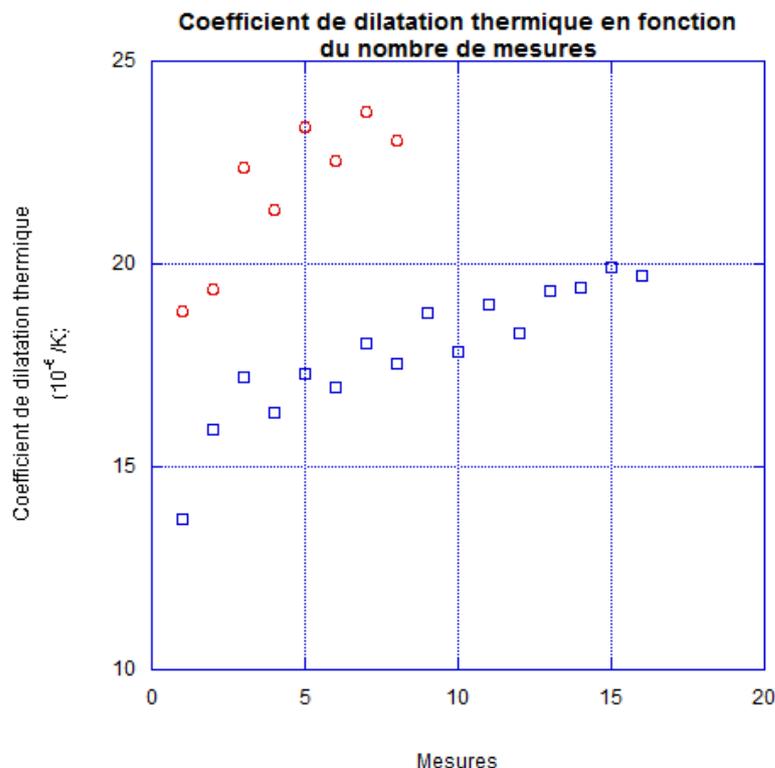


FIGURE 2.26 – Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents et élaborés par SPS.

■ Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et fritté durant 10 minutes par SPS.

■ Evolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour un échantillon Al F3731 renforcé par 30 %_{vol} de fibres CN80C et fritté durant 60 minutes par SPS.

Afin de confirmer l'hypothèse selon laquelle les différences de résultats de coefficient de dilatation thermique s'expliquent par les différences d'interfaces fibres/matrice, une étude des composites par microscopie électronique en transmission a été menée. Des micrographies représentatives de ces interfaces sont présentées figure 2.27.

L'analyse des micrographies présentées figure 2.27 permet effectivement de mettre en évidence des différences microstructurales significatives au niveau des interfaces entre fibre et matrice.

Afin d'expliquer ces microstructures, il est nécessaire de préciser que la poudre d'aluminium est naturellement couverte d'une couche de passivation constituée d'une couche d'alumine amorphe de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Cette couche reste amorphe après avoir subi le frittage par induction (Fig. 2.27 a) mais aussi qu'elle est capable de se déformer afin d'épouser le contour des fibres de carbone sans être brisée. Par contre, dans le cas des échantillons élaborés par SPS, la couche d'alumine est cristallisée comme en témoigne le cliché de diffraction présenté figure 2.27 b. De plus, le fait de pouvoir observer, d'une part, une couche d'alumine fracturée et d'autre part la cristallisation de

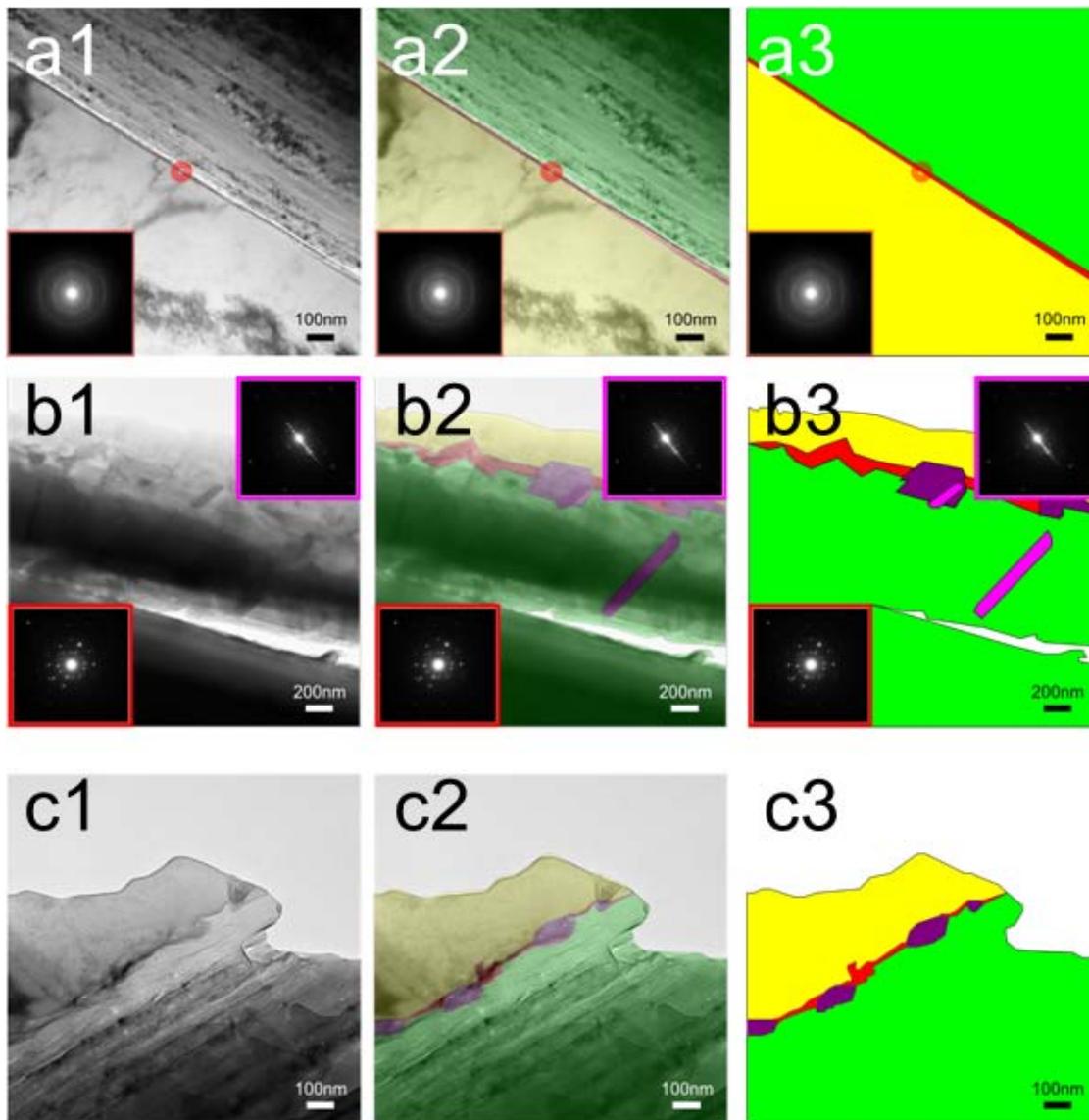


FIGURE 2.27 – Colonne 1 : micrographies d’interfaces fibres/matrice de composites élaborés par induction (a) et par frittage flash (b et c).

Colonne 2 : superposition des micrographies et de leurs représentations schématiques.

Colonne 3 : représentations schématiques des micrographies.

■ Aluminium.

■ Fibre de carbone.

■ Carbure d’aluminium.

■ Alumine.

■ Zone amorphe au niveau de la fracture de la couche d’alumine.

cette couche suggère l’existence de phénomènes locaux impliquant des températures bien supérieures à la température déduite à l’aide du thermocouple régulant l’expérimentation. Il peut être supposé que c’est grâce à ces phénomènes locaux de hautes énergies qu’il peut être observé une cinétique de densification bien plus rapide par la méthode

flash que par le chauffage par induction (cf. 2.3.5 Influence du type de frittage : frittage par induction et frittage flash 70).

De plus, la formation de carbure d'aluminium ainsi que les fractures locales de la couche d'alumine peuvent être expliquées de la manière suivante selon [66] : de l'aluminium liquide serait produit localement grâce au frittage flash et entrerait en contact avec le renfort en carbone au niveau des zones où la couche d'alumine est fracturée puis formerait du carbure d'aluminium.

Enfin, dans le cas de composites élaborés par frittage par induction (Fig. 2.27 a), l'aluminium n'est pas directement en contact avec la fibre de carbone dans l'ensemble des zones ayant été observées. En effet, une fine couche continue d'alumine amorphe est présente et empêche donc toute réaction chimique entre l'aluminium de la matrice et le carbone du renfort. Deux remarques peuvent alors être formulées.

- La présence d'alumine empêche toute réaction chimique entre l'aluminium et le renfort, l'interface est donc mécanique. Or, les composites cuivre/fibres de carbone possèdent eux aussi une interface mécanique, mais le coefficient de dilatation thermique de ces matériaux ne présente une évolution que sur des centaines ou des milliers de cycles thermiques. Cependant, bien que dans les deux cas une interface mécanique soit présente, il s'agit d'une interface métal (cuivre)/carbone dans le cas d'une matrice de cuivre mais d'une interface céramique (alumine)/carbone dans le cas d'une matrice d'aluminium. L'inefficacité de l'interface mécanique dans les composites aluminium/fibre de carbone, par rapport à celle des composites cuivre/fibre de carbone, serait ainsi liée aux différences tribologiques entre une interface céramique/carbone et une interface métal/carbone.
- Malgré le fait que plusieurs zones issues de plusieurs échantillons aient été observées, il n'a pas été mis en évidence expérimentalement de zones où l'alumine est fracturée et donc une interface chimique n'a pas été observée. Il est cependant très probable que de telles zones existent mais en quantité si faibles que la possibilité de leur observation reste très aléatoire.

2.4.4 Conclusion

L'ensemble des résultats des mesures du coefficient de dilatation thermique est récapitulé figure 2.28. En se basant sur les connaissances accumulées sur les composites cuivre/fibres de carbone, il était attendu une interface mécanique forte grâce un frittage efficace des renforts par la matrice d'aluminium. Cependant, les résultats présentés mettent en évidence une évolution du coefficient de dilatation thermique qui ne peut pas être expliquée à l'aide de la seule évolution d'une interface mécanique. Plus le coefficient de dilatation thermique mesuré est faible et plus grande est la quantité de zones où l'interface fibre/matrice est forte. L'ensemble des paramètres pouvant influencer sur la quantité et la qualité des interfaces aluminium/fibre de carbone sont susceptibles d'avoir une influence sur le coefficient de dilatation thermique du matériaux, ainsi :

- Plus le pourcentage volumique de renfort est grand et plus le coefficient de dilatation thermique peut être abaissé.
- Plus la surface des fibres de carbone est réactive et plus l'interface avec la matrice est forte.
- Le frittage par induction permet l'obtention d'une microstructure où il existe une interphase continue d'alumine entre fibre et matrice. La grande majorité des zones interfaciales ne permet pas l'obtention d'une interface chimique entre l'aluminium

et le renfort en carbone bien qu'une telle interface doit exister en faible quantité même si elle n'a pas été mise en évidence expérimentalement. Au contraire, le frittage flash brise localement la couche d'alumine et peut permettre la création d'une interface chimique entre aluminium et carbone en quantité suffisante et a été observée de manière reproductible.

- Les temps de frittage longs sont à privilégier afin de permettre la formation d'une interface chimique forte. Dans le cas particulier du frittage flash, des cristaux de carbure d'aluminium peuvent être formés. De part leurs présences, ces cristaux témoignent d'une interface forte entre fibre et matrice et assurent ainsi un excellent transfert de contrainte de la matrice vers les renforts. Cependant, ces cristaux de carbures d'aluminium sont fragiles et ne sont pas présents en quantité suffisante pour ne pas se briser sous l'effet des contraintes thermomécaniques engendrées lors des mesures du coefficient de dilatation thermique. D'où un effet de plus en plus faible des renforts et donc un coefficient de dilatation thermique du composite évoluant petit à petit vers celui de la matrice.

Les meilleurs résultats ont été obtenus pour des composites Al F3731 renforcés par 30 %_{vol} de fibres CN80C frittés sous charge à 600 °C par frittage flash pour des durées de 20 à 60 minutes. Cependant, quel que soit le type et la durée de frittage et quelle que soit la qualité du renfort utilisé, tous les échantillons finissent par évoluer vers un coefficient de dilatation thermique proche de celui de la matrice pour un nombre de cycle thermique limité. Des travaux dédiés spécifiquement à l'interface fibre/matrice sont donc à entreprendre afin d'augmenter la quantité de zones où l'interface fibre/matrice est forte ce qui permettra une meilleure répartition des contraintes dans l'ensemble des renforts et ainsi augmentera la fiabilité du matériau face aux cycles thermiques.

Frittage par induction				
Renfort	Durée de frittage (minutes)	Coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}/K$)		
		Mesure 1	Mesures 2 à 8	Mesures 9 et plus
20 % XN100	40	24	24	x
	80	24	24	x
	120	23	24	x
	160	23	24	x
30 % XN100	40	x	x	x
	80	18	21-23	x
	120	21	21-23	x
	160	17	20-22	x
20 % CN80C	10	x	x	x
	20	23	24	x
	40	21	21-24	x
	60	18	16-23	x
30 % CN80C	10	19	19-21	x
	20	22	23-24	x
	40	x	16-19	x
	60	x	21-24	x
Frittage flash				
20 % CN80C	10	24	24	x
	20	23	23-24	x
	40	18	19-20	20-21
	60	20	22-23	x
30 % CN80C	10	19	19-24	x
	20	13	15-19	19-21
	40	12	13-15	16-24
	60	14	15-18	18-20

FIGURE 2.28 – Récapitulatif des mesures de coefficient de dilatation thermique.

2.5 Conclusion

Deux objectifs ont été poursuivis au cours de ce chapitre : obtenir une diffusivité thermique plus élevée que celle de l'aluminium ($90 \text{ mm}^2/\text{s}$) et un coefficient de di-

latation thermique proche de $10 \times 10^{-6} /K$ par frittage sous charge uniaxiale d'une poudre composite Al/fibres de carbone. Les meilleurs résultats mesurés sont une diffusivité thermique de l'ordre de $100 \text{ mm}^2/s$ et un coefficient de dilatation thermique d'environ $12 - 13 \times 10^{-6} /K$. Cependant ces mesures correspondent à des échantillons renforcés par deux types différents de fibres de carbone ne permettant pas encore d'optimiser à la fois diffusivité thermique et coefficient de dilatation thermique.

Afin d'atteindre ces objectifs, de nombreux paramètres expérimentaux pouvant avoir une influence sur la diffusivité thermique et sur le coefficient de dilatation thermique des matériaux synthétisés ont été mis en évidence et analysés.

Ainsi, il a été démontré que le transfert de propriétés entre renforts et matrice ne répond pas aux mêmes critères en fonction de la propriété étudiée. La diffusivité thermique des composites synthétisés dépend essentiellement l'absence de résistances de contact. La première cause de résistances étant la présence de porosités, il est possible de contrôler ce paramètre en optimisant la densité relative du matériau. Dans ces conditions, seule une interface mécanique entre matrice et renforts est nécessaire. Au contraire, dans le cas du coefficient de dilatation thermique du matériau, une interface chimique entre l'aluminium et les fibres de carbone est le critère déterminant l'efficacité du transfert de contraintes mécaniques. Il en résulte qu'un renfort parfaitement graphité permettra l'obtention de bonnes propriétés thermiques mais n'aura que peu d'impact sur le coefficient de dilatation thermique du matériau car sa faible réactivité ne permet pas de réactions chimiques à l'interface avec la matrice. Par contre, un renfort présentant un taux de défauts plus important permettra une meilleure accroche entre renfort et matrice mais les propriétés thermiques intrinsèques d'un tel renfort étant plus faibles, celles du composite le seront aussi.

Concernant la méthode de frittage, il a été montré que le frittage par induction aboutit à une microstructure où l'aluminium est séparé des fibres de carbone par une couche continue d'alumine alors que le frittage flash permet de briser localement cette couche autorisant ainsi un contact direct entre aluminium et carbone pouvant conduire à la formation de cristaux de carbure d'aluminium, cela grâce à des phénomènes locaux de hautes énergies. Enfin, les mesures de diffusivité thermique effectuées n'ont pas permis de mettre en évidence un effet relatif à ces différences microstructurales entre les deux méthodes de frittage. Par contre ces différences d'interface ont un impact sur les valeurs du coefficient de dilatation thermique des matériaux qui sont alors plus faibles par frittage flash que par frittage par induction.

Au cours du chapitre 1 *Modélisation* p. 25, deux types de matériaux ont été modélisés, à savoir Al30Cplan et Al30Cextrude. Le chapitre 2 *Frittage sous charge uniaxiale de composites aluminium/fibres de carbone* p. 53 a été consacré à une famille de matériaux élaborée par frittage sous charge dont les propriétés peuvent être semblables à celles de Al30Cplan. Le chapitre actuel va être consacré à des matériaux élaborés par extrusion et donc dont les propriétés seront à rapprocher de celles de Al30Cextrude (1 *Modélisation* p. 29).

Alors que le frittage sous charge uniaxiale avait pour but d'orienter les fibres de carbone dans un plan, l'objectif de l'étape d'extrusion est d'aligner les fibres selon un axe afin d'obtenir des propriétés optimisées selon une seule dimension. En effet, la mise en forme par extrusion implique une orientation privilégiée des renforts et des grains [67–72] et cela même pour des particules ayant un faible rapport de forme [73].

3.1 Généralités

Le procédé d'extrusion – aussi dénommé filage – consiste à faire traverser une filière à un échantillon et cela au moyen d'une pression (à ne pas confondre avec le tréfilage qui consiste aussi à faire traverser une filière mais au moyen d'une traction). Les échantillons extrudés sont dénommés « profilés » et peuvent être creux ou pleins en fonction de la méthode d'extrusion utilisée. En optimisant les filières et d'une manière plus générale les conditions d'extrusion [68,69,74–79], il devient possible d'éviter ou du moins de minimiser la présence de défauts et d'obtenir ainsi des profilés de géométrie plus ou moins complexe (Fig. 3.1). Les protocoles sont caractérisés par :

- la géométrie de la filière ;
- le rapport (R) des surfaces avant et après extrusion ;
- la vitesse ou la pression d'extrusion ;
- la température d'extrusion.



FIGURE 3.1 – Exemple de profilés commerciaux d'aluminium.

Un grand nombre de produits peut être mis en forme par extrusion : métaux, céramiques ou encore polymères. Ainsi en fonction des applications, les géométries mises en jeu, les rapports, vitesse ou pression et températures seront très variables. Dans le cadre de cette étude, seule des méthodes permettant la mise en forme de l'aluminium seront décrites.

D'une manière générale, l'extrusion permet d'obtenir des densités relatives proches de 100%. De plus, concernant les matériaux composites, la mise en forme par extrusion permet d'optimiser l'homogénéité de la répartition des renforts [67, 70, 80–88]. Ce procédé est généralement utilisé pour améliorer les propriétés mécaniques des matériaux, et en particulier, augmenter la dureté en augmentant la densité de dislocations et en affinant la taille des grains [67, 69, 71, 72, 81–83, 86–97]. En ce qui concerne l'outillage, de très fortes contraintes sont concentrées sur les filières qui doivent en conséquence avoir une géométrie appropriée et être usinés dans des aciers durs sans pour autant être trop cassant afin de garantir une durée de vie élevée [68, 69, 72, 74–76, 98–102].

3.1.1 Extrusion directe

L'extrusion directe est le procédé de filage le plus répandu dans le monde industriel. Le principe est très simple, il s'agit de réduire la section d'un échantillon et éventuellement de modifier sa géométrie en le poussant au travers d'une filière. Les montages de laboratoire sont généralement montés à la verticale ce qui minimise l'encombrement mais limite la taille de la pièce extrudée à la distance du montage par rapport au sol. Les extrudeuses industrielles sont conçues pour travailler à l'horizontale afin de pouvoir obtenir des pièces de très grandes longueurs (dizaines de mètres). Deux types de filage direct peuvent être distingués : le filage avec chemisage (Fig. 3.2) et le filage lubrifié (Fig. 3.3).

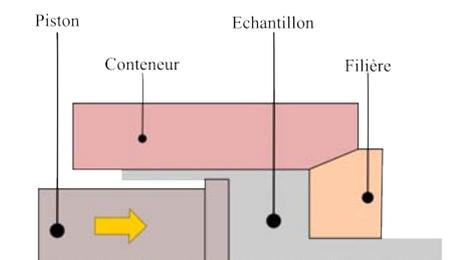


FIGURE 3.2 – Schéma du filage direct chemisé.

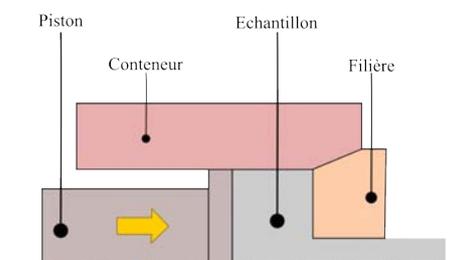


FIGURE 3.3 – Schéma du filage direct lubrifié.

Le filage avec chemisage

Le conteneur est dimensionné de manière à avoir 1 à 2 *mm* de jeu par rapport au pilon servant à pousser l'échantillon. Ce jeu volontaire permet de former une chemise régulière (Fig. 3.2) permettant d'une part d'obtenir un état de surface de qualité tout en facilitant le coulisement du pilon au cours du procédé, cependant du fait de ce jeu, cette méthode ne sera pas adaptée à la mise en forme de pièces ayant des tolérances dimensionnelles faibles. Le principal avantage de ce procédé est d'éviter toutes pollutions de la surface des produits filés. Par contre, ce processus nécessite une dépense d'énergie plus élevée que pour des procédés de filage avec lubrifiant ou de filage inverse (ces procédés seront détaillés en 3.1.1 Le filage lubrifié p. 91 et 3.1.2 Extrusion inverse p. 91) afin de vaincre les frottements billeterie-conteneur. De plus, la vitesse d'écoulement du métal n'est pas la même dans toutes les zones du matériau et varie au cours du filage. Ainsi le centre de la billeterie file plus vite que la périphérie ce qui peut se traduire par un défaut appelé « tubage » ou « invagination » (Fig. 3.4). Pour éviter ce défaut, il suffit d'arrêter le filage afin de laisser un culot à l'échantillon. En fonction des alliages et des conditions d'élaboration, ce culot peut représenter jusqu'à 15 % de la longueur initiale de l'échantillon.



FIGURE 3.4 – Défaut d'invagination sur un profilé d'aluminium.

Le filage lubrifié

Ici la billeterie est ajustée au conteneur (Fig. 3.3). Ce dernier (ou bien la billeterie) est lubrifié ce qui permet de très fortement réduire les frottements. La quasi absence de frottements – comparé au filage avec chemisage – permet un écoulement frontal de l'échantillon. Il n'y a donc pas de phénomène de « tubage » avec ce procédé et les pressions d'extrusion sont plus faibles. Cependant l'emploi d'un lubrifiant implique une phase de nettoyage qui peut être gênante d'un point de vue industriel.

3.1.2 Extrusion inverse

Dans le cas de l'extrusion inverse (auss appelé filage indirect), la billeterie et son conteneur sont fixes tandis que la filière est mobile (Fig. 3.5) [103]. De ce fait, les frottements sont éliminés puisque la billeterie est fixe par rapport au conteneur. L'effort est alors comparable à celui du filage direct lubrifié. La pression de filage n'est plus une fonction de la longueur de la billeterie et la partie centrale de la billeterie file à la même vitesse que la périphérie [84, 103]. La longueur maximale de l'échantillon n'est donc plus limitée par la pression de l'extrudeuse, cependant le montage est limité par la stabilité de la tige de

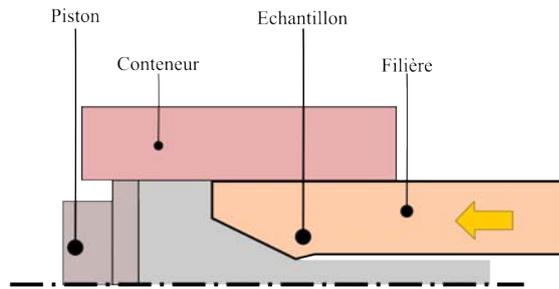
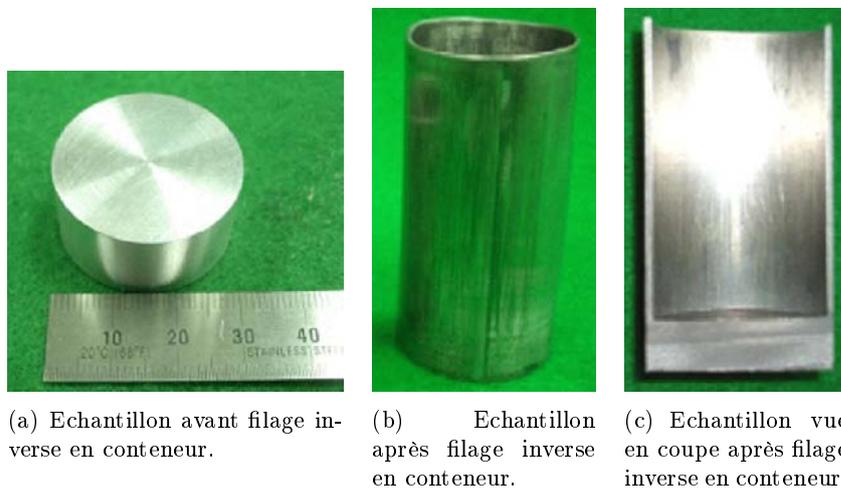


FIGURE 3.5 – Principe du filage indirect.

la filière et donc par sa résistance au flambage. De plus, toutes les formes pouvant être obtenues par filage direct ne sont pas forcément possibles en filage inverse.



(a) Échantillon avant filage inverse en conteneur.

(b) Échantillon après filage inverse en conteneur.

(c) Échantillon vu en coupe après filage inverse en conteneur.

FIGURE 3.6 – Tube creux obtenu par filage inverse en conteneur. [94]

Une variante du filage inverse est le filage inverse en conteneur. Un poinçon vient écraser l'échantillon afin d'en faire un tube creux avec un fond. Cette méthode est utilisée tout particulièrement dans l'armement afin de créer des douilles ou des ogives (Fig. 3.6) [71,94].

3.1.3 L'extrusion angulaire à section constante

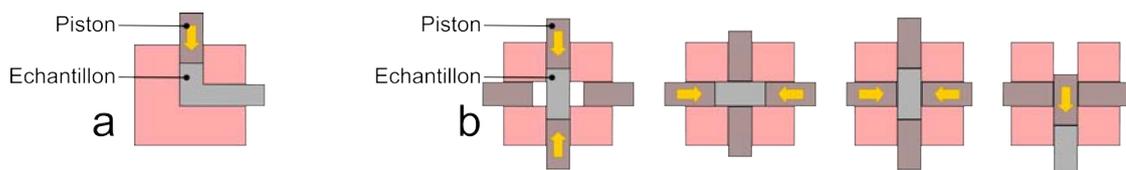


FIGURE 3.7 – Deux exemples de montage d'extrusion angulaire à section constante. a : montage de type « tube coudé ». b : montage permettant plusieurs cycles sans démontage : ici deux cycles sont présentés [93, 104].

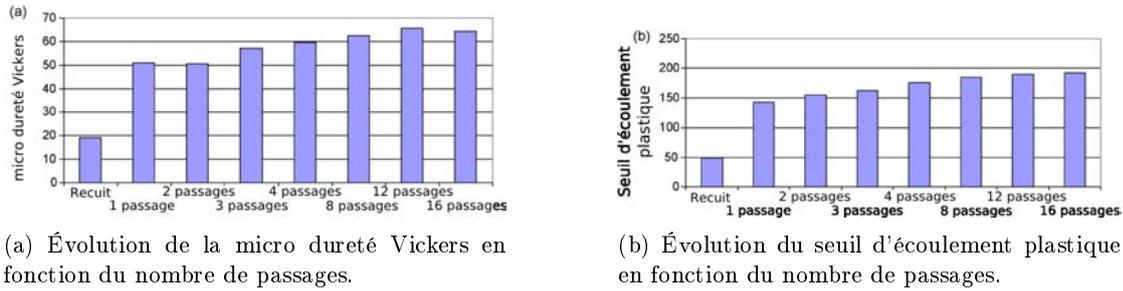


FIGURE 3.8 – Évolution des propriétés par ECAE. [93]

Le procédé d'Extrusion Angulaire à Section Constante (EASC, ou en anglais ECAE pour Equal Channel Angle Extrusion) a été inventé par Vladimir Mironovich SEGAL en 1977 [105] et a évolué en plusieurs variantes (Fig. 3.7). Comme son nom l'indique, la section de l'échantillon reste constante ($R = 1$) au cours du processus ce qui permet d'extruder plusieurs fois un même échantillon. Le but ici n'est pas une mise en forme mais un raffinement de la microstructure de la pièce. Les très fortes contraintes imposées à l'échantillon augmentent la densité de dislocation dans le matériau et entraînent ainsi la formation de nombreux sous joints de grains [85,93,95,104]. Les propriétés mécaniques de l'échantillon extrudé vont ainsi varier au fur et à mesure du nombre d'extrusions jusqu'à ce qu'à ce que la structure ne puisse plus être affinée (Fig. 3.8) [93]. Des propriétés de superplasticité peuvent être obtenues grâce aux tailles de grains submicroniques qui peuvent être atteintes [93,104]. Afin d'obtenir une structure la plus fine possible, ce type d'extrusion est généralement employé à froid avec des presses de fortes puissances.

3.2 Extrusion de composites Al F3731-20%_{vol}CN80C

La méthode d'extrusion utilisée ici est l'extrusion directe lubrifiée. La lubrification n'a jamais porté sur les échantillons, mais sur l'outillage seulement. Le lubrifiant utilisé a été du graphite systématiquement appliqué sur l'ensemble de l'outillage avant chaque expérimentation. Les échantillons extrudés ont tous été préparés dans les mêmes conditions :

1. *préparation de la poudre composite* :
mélange, sous argon pendant 5 minutes, de la poudre d'aluminium F3731 et de 20%_{vol} de fibres de carbone CN80C préalablement déliantées 1 h à 400 °C sous air puis coupées (grille de 0,5 mm) ;
2. *paramètres de frittage* :
la poudre composite est frittée 20 minutes à 600 °C par induction et sous une charge uniaxiale de 50 MPa ; un cylindre massif de 60 mm de diamètre et d'environ 8 mm d'épaisseur est obtenu ;
3. *paramètres d'extrusion* :
l'échantillon massif est découpé en un parallélépipède ($\approx 35\text{ mm} \times 7\text{ mm} \times 40\text{ mm}$) (Fig. 3.9, ajusté à l'outillage puis extrudé (Fig. 3.10) à une vitesse de 1 mm/s et à une température de 400 °C sous air.

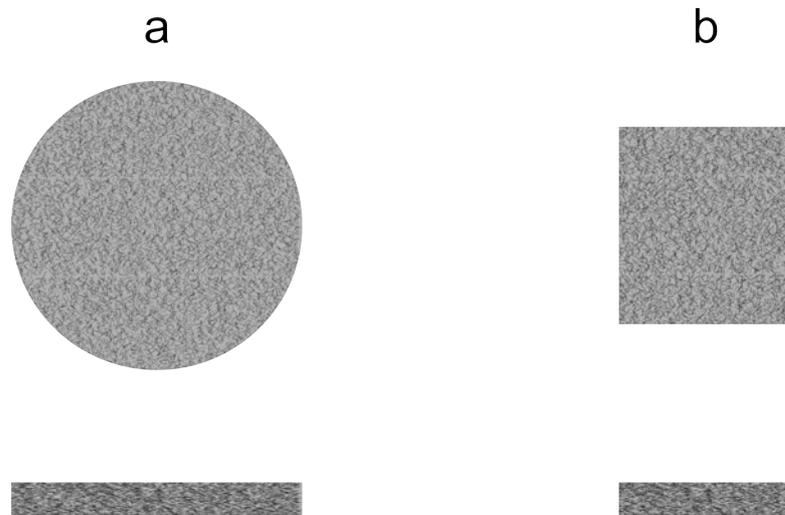


FIGURE 3.9 – Schémas de :
 a : échantillon composite après frittage ; en haut vue de dessus, en bas vue de côté.
 b : le même échantillon après avoir été découpé afin de correspondre aux dimensions de l'outillage d'extrusion ; en haut vue de dessus, en bas vue de côté.

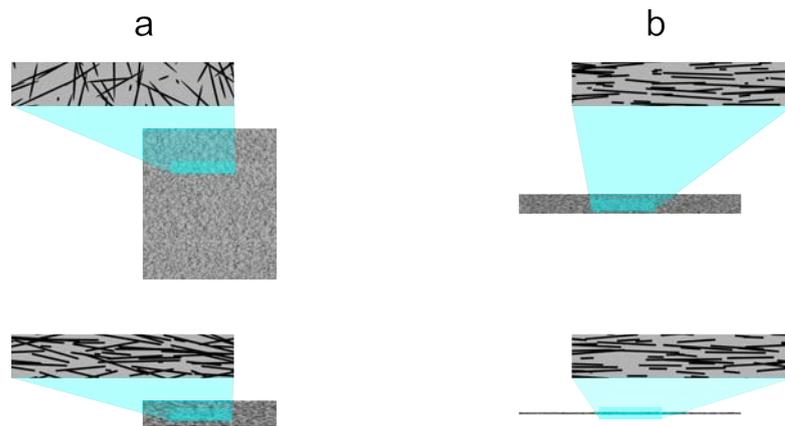


FIGURE 3.10 – Schémas de :
 a : échantillon composite après frittage ; en haut vue de dessus, en bas vue de côté.
 b : le même échantillon après extrusion.

A l'issue de ce protocole, le composite qui avait été densifié par frittage sous charge devrait subir une réorientation des renforts au sein de la matrice. Les fibres qui étaient orientées préférentiellement selon le plan $(y; z)$ (étape 2)(Fig. 3.11, zone ■) sont alors potentiellement réorientées selon l'axe z (c'est-à-dire selon l'axe d'extrusion) après avoir été extrudées (étape 3)(Fig. 3.10, Fig. 3.11, zone ■). Afin de valider cette possible réorganisation des renforts, quatre filières, dont les caractéristiques sont les suivantes, ont été utilisées (Fig. 3.11) :

n° de filière	Dimensions entré	Dimensions sortie	rapport
1	35 mm × 7 mm	35 mm × 5 mm	1,4
2	35 mm × 7 mm	35 mm × 3 mm	2,3
3	35 mm × 7 mm	7 mm × 7 mm	5,0
4	35 mm × 7 mm	7 mm × 3 mm	11,6

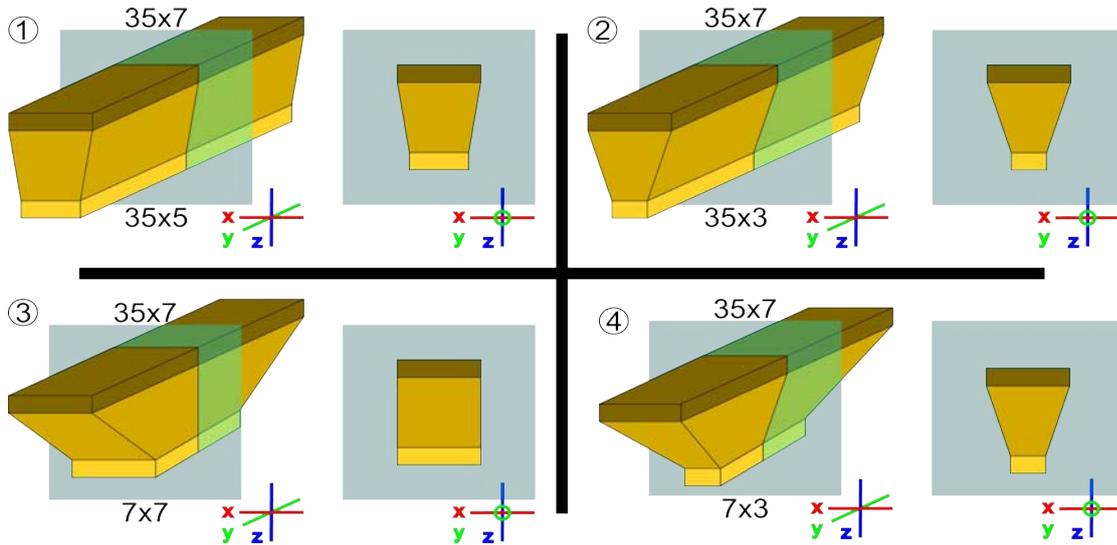


FIGURE 3.11 – Schémas de l'évolution de la géométrie des échantillons en fonction de la filière d'extrusion (dimensions en millimètres) et vues en coupes.

- Echantillon avant la filière.
- Echantillon dans la filière.
- Echantillon après la filière.

Les échantillons extrudés ont été découpés selon le plan de coupe présenté figure 3.11 et observés par microscopie électronique à balayage. Les micrographies obtenues vont être présentées et discutées en fonction des filières utilisées.

3.2.1 Filière 1, 35 mm × 7 mm → 35 mm × 5 mm

Des micrographies prises en différentes zones d'un échantillon ayant été extrudés à l'aide de la filière 1 sont présentées figure 3.12. Bien que les micrographies c, d et e aient été prises dans des zones de l'échantillon situées respectivement avant, dans et après la filière, il n'est pas observé de différences significatives. Les fibres de carbone qui étaient orientées selon le plan ($y; z$) (micrographie c) n'ont pas été réorientées selon l'axe z (micrographies d et e). La réduction d'épaisseur de l'échantillon de 7 mm à 5 mm (soit $R = 1,4$) n'est pas suffisante pour réorganiser significativement les fibres de carbone au sein de l'échantillon. Il sera tout de même noté une réorientation partielle des fibres de carbone suivant l'axe d'extrusion à l'extrême périphérie de l'échantillon (micrographies a et b).

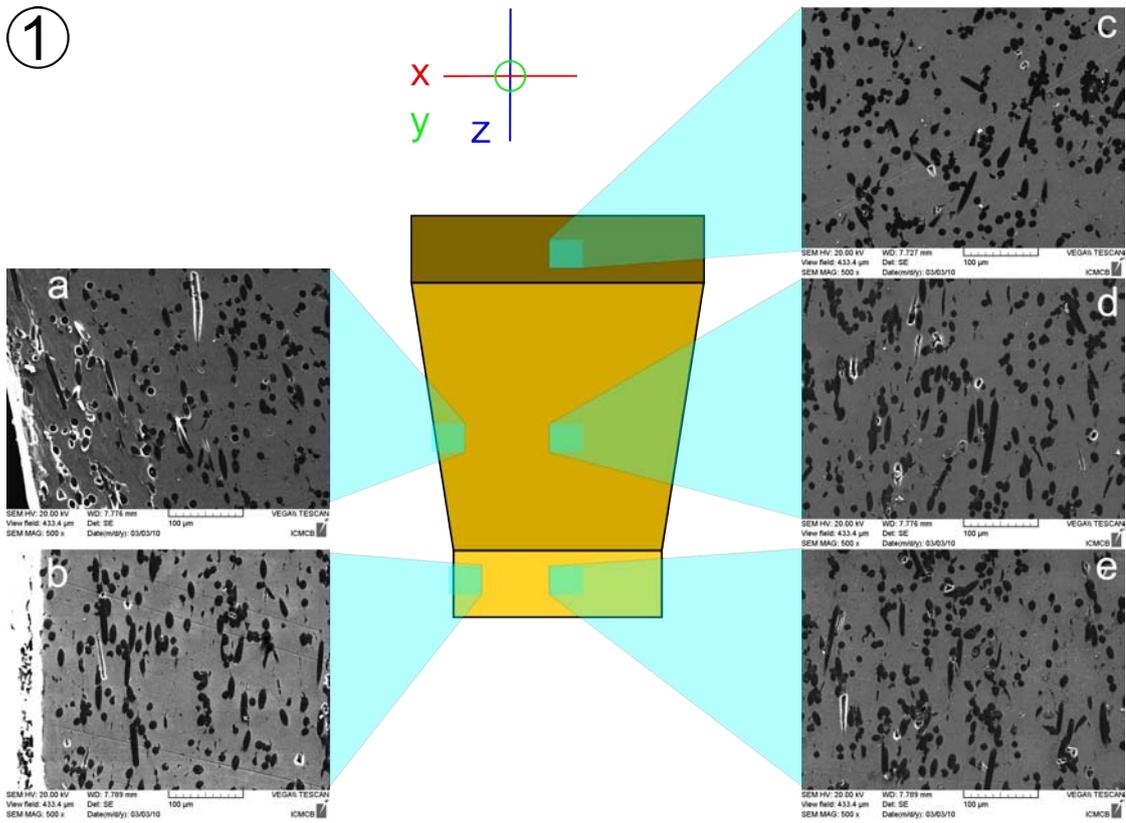


FIGURE 3.12 – Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 1.

- Echantillon avant la filière.
- Echantillon dans la filière.
- Echantillon après la filière.

3.2.2 Filière 2, $35 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \rightarrow 35 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$

Des micrographies présentées en différentes zones d'un échantillon ayant été extrudés à l'aide de la filière 2 sont présentées figure 3.13. De même que pour la filière 1, il s'agit ici aussi de réduire l'épaisseur de l'échantillon de 7 mm à 3 mm (soit $R = 2,3$). Cependant, alors que la filière 1 ne permettait pas une réorientation des renforts, mis à part en périphérie de l'échantillon, il peut être constaté ici une réorientation progressive des renforts aussi bien à la périphérie (micrographies a et b) qu'au cœur de l'échantillon (micrographie d et e). Ainsi les fibres qui étaient orientées préférentiellement selon le plan $(y; z)$ (micrographie c) sont – en partie – réorientées selon l'axe z grâce au procédé d'extrusion.

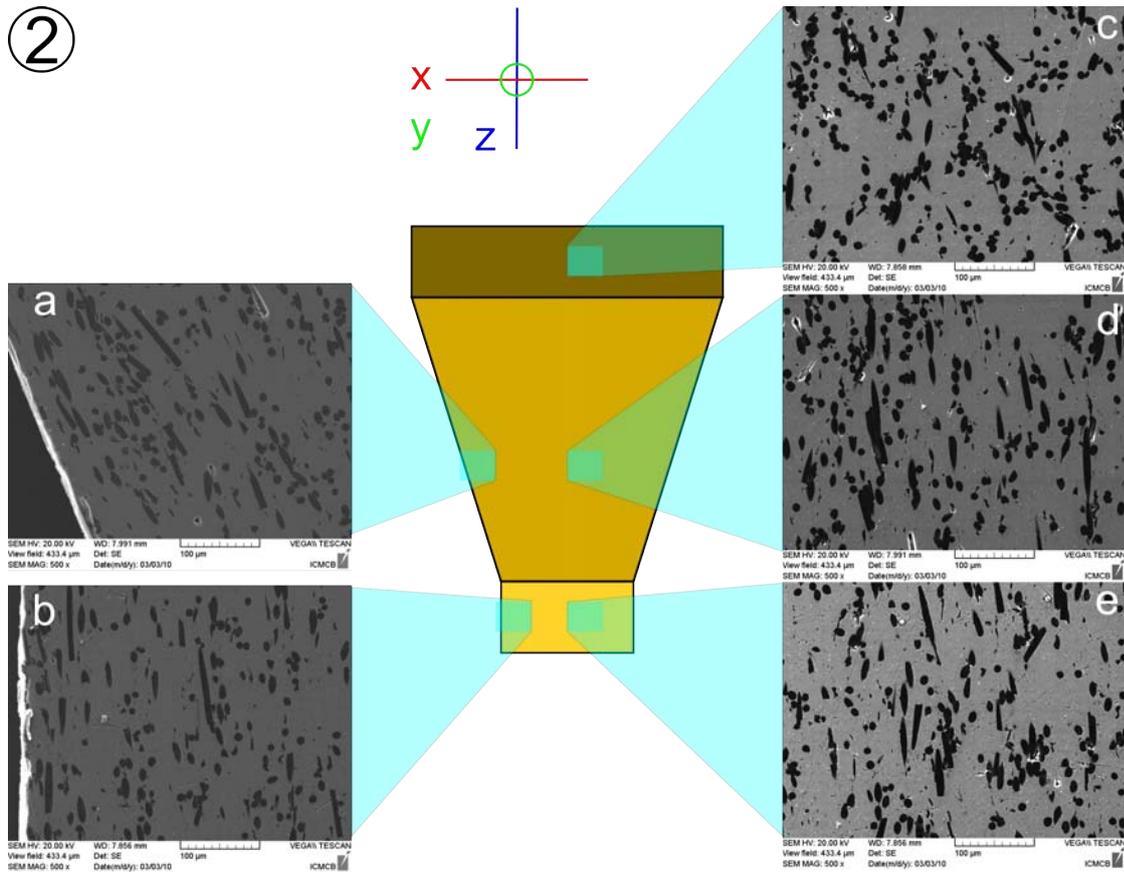


FIGURE 3.13 – Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 2.

- Echantillon avant la filière.
- Echantillon dans la filière.
- Echantillon après la filière.

3.2.3 Filière 3, 35 mm × 7 mm → 7 mm × 7 mm

Des micrographies présent en différentes zones d'un échantillon ayant été extrudés à l'aide de la filière 3 sont présentées figure 3.14. Contrairement aux filières précédentes qui permettaient une réduction de l'épaisseur de l'échantillon, il s'agit ici de réduire la largeur de la billette qui passe ainsi de 35 mm à 7 mm (soit $R = 5,0$). Il peut être observé une orientation privilégiée des fibres de carbone dans le plan ($y; z$) avant extrusion (micrographie a) puis une réorientation des renforts lors de la traversée de la filière (micrographie b) selon l'axe d'extrusion (z). Ainsi, une fois le composite extrudé, les fibres de carbone ont nettement tendance à être orientées de manière privilégiée selon la direction z .

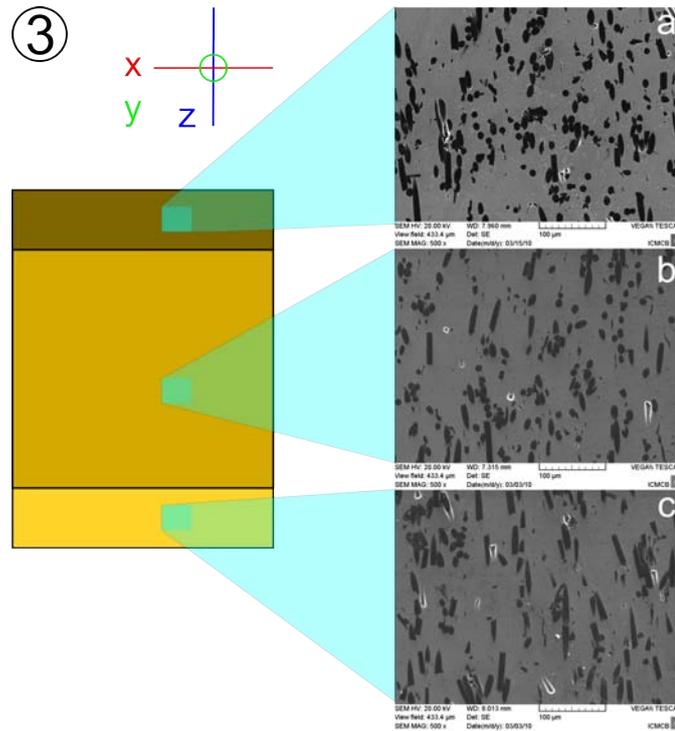


FIGURE 3.14 – Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 3.

- Echantillon avant la filière.
- Echantillon dans la filière.
- Echantillon après la filière.

3.2.4 Filière 4, $35 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \rightarrow 7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$

Des micrographies prises en différentes zones d'un échantillon ayant été extrudés à l'aide de la filière 4 sont présentées figure 3.15. Alors que les trois premières filières imposaient une réduction d'épaisseur (filière 1 et 2) ou d'épaisseur (filière 3), la filière 4 permet la réduction simultanée de ces deux dimensions. La section de l'échantillon est ainsi réduite de $35 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ à $7 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ ($R = 11,6$). Les fibres de carbone orientées au préalable dans le plan ($y; z$) (micrographie a) sont réorientées de manière très efficace grâce à cette filière (micrographie b). Après extrusion, l'ensemble des fibres est ainsi parfaitement orienté selon l'axe z .

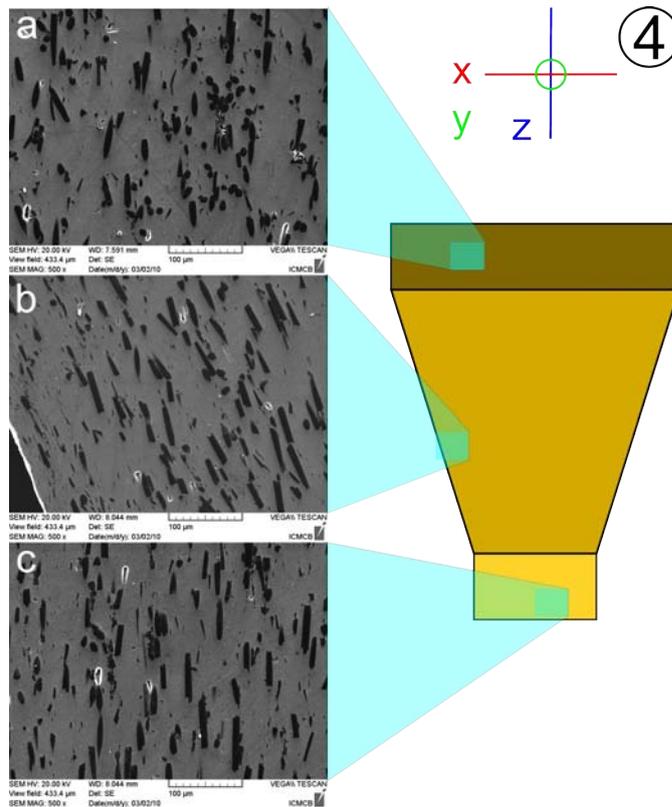


FIGURE 3.15 – Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 4.

- Echantillon avant la filière.
- Echantillon dans la filière.
- Echantillon après la filière.

3.2.5 Influence du rapport d'extrusion, orientation des renforts et propriétés thermomécaniques

Par comparaison des micrographies présentées figures 3.12, 3.13, 3.14 et 3.15, il peut être constaté que plus le rapport d'extrusion est important et plus efficace est la réorientation des renforts [67, 68, 73]. Les renforts suivent l'écoulement de la matrice au travers de la filière. Il en résulte une efficacité accrue lorsque le rapport est important, c'est-à-dire lorsque les lignes de flux de matière convergent vers une surface faible. Ainsi les filières 1 et 2 dont les rapports sont les plus faibles (respectivement 1,4 et 2,3) n'ont pas ou peu d'effet sur la répartition des renforts dans le matériau. Au contraire, les filières 3 et 4 ayant les plus forts rapports (respectivement 5,0 et 11,6) permettent une modification importante de l'alignement des renforts au sein du matériau.

Pour des raisons géométriques, seules les propriétés thermomécaniques (diffusivité thermique et coefficient de dilatation thermique) des échantillons extrudés à partir de la filière 3 ($R = 5,0$) ont pu être mesurées. Elles sont à comparer avec celles mesurées avant extrusion, soit :

	Avant extrusion	Après extrusion
Diffusivité thermique (mm^2/s)	70,4	86,6
Coefficient de dilatation thermique ($10^{-6}/K$)	$\approx 23 - 24$	$\approx 19 \rightarrow 24$

Remarque : les propriétés avant extrusion ont été mesurées dans le plan contenant les fibres de carbone (plan perpendiculaire à l'axe de compression) tandis que les propriétés après extrusion ont été mesurées selon l'axe contenant les fibres de carbone (selon l'axe d'extrusion).

Le fait qu'il soit mesuré conjointement une augmentation de la diffusivité thermique et une baisse du coefficient de dilatation thermique démontre que la réorientation des renforts affecte directement les propriétés thermomécaniques. Cependant ces améliorations sont à nuancer :

- Le coefficient de dilatation thermique ne se maintient pas à une valeur de $19 \times 10^{-6} /K$. Cette valeur n'est atteinte que lors de la première mesure (et est donc influencée par le phénomène de relaxation des contraintes thermomécaniques suggéré précédemment (cf. 2.4 Cycles thermiques et mesures du coefficient d'expansion thermique 74 et [64,65])) et évolue rapidement vers $\approx 23 - 24 \times 10^{-6} /K$ lors des mesures suivantes. Ce résultat met donc en évidence une interface fibre/matrice trop faible pour résister aux contraintes thermomécaniques nécessaires aux mesures du coefficient de dilatation thermique.
- La valeur de diffusivité thermique bien que plus élevée qu'avant l'extrusion est relativement faible comparée à la valeur théorique attendue qui est de $\approx 106 mm^2/s$ (selon la méthode de calcul et les approximations déjà utilisée aux chapitres précédents), soit une diffusivité thermique relative de $\approx 81\%$. Cependant la valeur théorique implique de nombreuses hypothèses et en particulier que :
 1. les fibres de carbone soient parfaitement alignées selon l'axe d'extrusion ;
 2. les fibres de carbone aient la diffusivité thermique théorique données par le fabricant.

Or, expérimentalement, si les fibres de carbone ont bien tendance à être alignées selon l'axe z , leur l'orientation reste imparfaite avec le rapport utilisé ici ($R = 5$). De plus, du fait de la méthode de préparation de la poudre composite (découpe des fibres), la diffusivité thermique réelle est inférieure à celle donnée par le fabricant. Afin d'améliorer ces résultats et tout particulièrement afin d'abaisser le coefficient de dilatation thermique du composite, plusieurs pistes peuvent être envisagées :

- augmenter le rapport d'extrusion et améliorer ainsi l'alignement des fibres ;
- modifier l'interface fibre/matrice afin d'optimiser l'accroche des renforts.

D'un point de vue expérimental, la modification du rapport d'extrusion n'est pas un obstacle : il s'agit seulement de modifier la filière à utiliser.

Concernant l'interface aluminium/carbone, il a été démontré au cours du chapitre précédent que la formation d'une couche d'alumine continue entre fibre et matrice est un obstacle à l'accroche de la matrice sur la fibre. Le montage expérimental ayant été utilisé ici utilise un système de chauffage par coquille chauffante qui ne permet pas *a priori* de briser la couche d'alumine. Cependant, la méthode de frittage flash (*Spark Plasma Sintering*) vient d'être très récemment adaptée à un montage d'extrusion (dénommé *Spark Plasma Extrusion*) ce qui permet d'envisager une piste d'amélioration des interfaces fibres/matrice. De plus, il peut être envisagé de traiter thermiquement les échantillons après extrusion afin de favoriser la

germination de carbure d'aluminium créant ainsi une interface chimique entre fibre et matrice. Cependant la durée et la température du traitement thermique devront être ajustées de manière à pouvoir réduire le coefficient de dilatation thermique du composite tout en limitant au maximum la baisse de diffusivité thermique induite par la création de carbure d'aluminium.

Enfin, il peut être envisagé d'ajouter un élément d'alliage (tel que du magnésium) capable de limiter la formation de la couche d'alumine. L'avantage d'un tel alliage est qu'il permet *a priori* l'obtention d'une interface plus réactive entre l'aluminium et les fibres de carbone. La limite de cette approche est que l'apport d'un élément d'addition réduit la conductivité thermique de la matrice.

3.3 Conclusion

La mise en forme par extrusion directe permet - sous réserve que le rapport d'extrusion soit élevé - d'orienter préférentiellement selon un axe les fibres de carbone au sein de la matrice d'aluminium. Grâce à cette réorganisation structurale, une diffusivité thermique de l'ordre de $85 \text{ mm}^2/\text{s}$ a été mesurée selon l'axe d'extrusion contre environ $70 \text{ mm}^2/\text{s}$ avant réorientation des renforts. Le procédé d'extrusion pourra donc être utilisé efficacement pour obtenir des matériaux présentant une forte anisotropie thermique. Par contre, l'efficacité du procédé vis-à-vis du coefficient de dilatation thermique du matériau est moindre. Bien que les fibres de carbone soient réorientées, le coefficient de dilatation thermique du composite reste équivalent à celui de la matrice. L'effet du renfort est donc négligeable, il n'y a donc pas d'interface chimique entre fibre et matrice mais seulement une interface mécanique. Il est donc probable que le procédé d'extrusion soit plus adapté à des composites à matrice d'aluminium allié ou bien de cuivre (une interface mécanique étant suffisante sur ce dernier pour obtenir un effet sur le coefficient de dilatation thermique et sur la diffusivité thermique) qu'aux composites à matrice aluminium étudiés ici.

Conclusion

Les nombreux modes de défaillances des modules utilisés en électronique de puissance, qui ont été passés en revue en [Introduction](#) p. 9, mettent en évidence la nécessité d'une part de dissiper le plus efficacement possible la chaleur produite par les puces électroniques et d'autre part de limiter au maximum les contraintes de cisaillement au sein des assemblages.

En se basant sur les simulations par éléments finis réalisées au chapitre 1 [Modélisation](#) p. 25, il a été montré qu'élaborer une semelle dans un matériau présentant un coefficient de dilatation thermique de l'ordre de $10 \times 10^{-6} /K$ permet de limiter au maximum les contraintes thermomécaniques dans module électronique. Afin d'élaborer un tel matériau tout en ayant une diffusivité thermique élevée, il a été décidé d'élaborer un matériau composite à matrice d'aluminium et renforcé par des fibres de carbone. La matrice d'aluminium permet un excellent transfert thermique grâce à une diffusivité thermique élevée ($90 \text{ mm}^2/s$, soit une conductivité thermique de $200 \text{ W/m} \times K$) tout en présentant une masse volumique très faible ($2,7 \text{ g/cm}^3$) et donc idéale pour des applications embarquées. Cependant le coefficient de dilatation thermique de ce métal est très élevé ($24 \times 10^{-6} /K$) par rapport à l'objectif de $10 \times 10^{-6} /K$. Les fibres de carbones présentent quant à elles une masse volumique encore plus faible ($2,2 \text{ g/cm}^3$), tout en ayant une conductivité thermique pouvant atteindre $900 \text{ W/m} \times K$ et un coefficient de dilatation thermique négatif ($-1 \times 10^{-6} /K$).

À partir des connaissances acquises sur les composites cuivre/fibre de carbone ([2.4.1 Composites cuivre/fibres de carbone](#) p. 75), il a été déduit qu'en créant une interface mécanique, par frettage des fibres par la matrice, un excellent transfert des propriétés thermiques et mécaniques pourrait avoir lieu entre l'aluminium et les fibres de carbone. Il a été démontré que bien qu'une interface mécanique soit suffisante pour transférer efficacement un flux de chaleur ([2.3 Influence de divers paramètres expérimentaux sur la diffusivité thermique des matériaux](#) p. 60), une telle interface n'est pas suffisamment forte pour permettre aux renforts de contraindre la matrice et donc de réduire le coefficient de dilatation thermique du composite ([2.4 Cycles thermiques et mesures du coefficient d'expansion thermique](#) p. 74). Il est ainsi nécessaire de créer une interface plus forte, c'est-à-dire une interface chimique par la formation d'un carbure d'aluminium afin de lier la matrice d'aluminium aux renforts de carbone. De plus, il a été montré que grâce à des phénomènes locaux de haute énergie, la méthode de frittage flash permet l'obtention d'une microstructure plus riche en carbure d'aluminium que par frittage par induction

(2.4.3 Renforts CN80C : comparaison du frittage par induction et du frittage flash p. 80) et permet donc l'obtention d'une interface plus forte. Les coefficients de dilatation thermique les plus faibles ont ainsi été mesurés pour des échantillons élaborés par frittage flash. Par contre, les deux méthodes sont équivalentes concernant la diffusivité thermique des échantillons.

Enfin, dans une dernière partie (3.10 Echantillon avant et après extrusion p. 94), les échantillons ont été mis en forme par extrusion directe à chaud. Cette méthode a permis l'orientation des fibres de carbone selon un axe et à donc permis d'augmenter la diffusivité thermique du matériau dans une direction privilégiée. Cependant, l'interface entre fibre et matrice à l'issue de cette mise en forme reste trop faible pour pouvoir supporter des cycles thermiques. Le peu de carbure d'aluminium présent dans la préforme avant extrusion, qui permet une liaison forte entre la matrice avec les fibres, est probablement brisé lors des déformations plastiques nécessaire à l'extrusion. Cette dégradation de l'interface chimique serait la cause de l'inaptitude à obtenir un coefficient de dilatation thermique plus faible du composite extrudé par rapport à celui de la matrice d'aluminium. Cependant, cette méthode devrait permettre de meilleurs résultats en employant une matrice de cuivre où une interface chimique n'est pas nécessaire.

Deuxième partie

Annexes

.1 Mesure de la densité relative à l'aide de la méthode d'ARCHIMÈDE

Le frittage d'une poudre consiste à donner une tenue mécanique à une poudre en la chauffant (sans avoir recours à la fusion). Le matériau qui était pulvérulent devient ainsi un matériau massif. Dans le cas de notre étude, toute porosité devra être évitée afin de garantir les meilleures propriétés thermiques, un frittage sera considéré étant parfaitement efficace si la porosité du matériau fritté est nulle. Il est donc important de connaître la quantité de porosité présente dans les échantillons. Pour cela, la méthode d'ARCHIMÈDE est utilisée. Il s'agit de déterminer la masse volumique d'un matériau à partir de sa pesée à sec puis immergé dans un liquide (généralement de l'eau) en utilisant la relation suivante :

$$\rho_{exp} = \left(\frac{m_{sec}}{m_{sec} - m_{immerge}} \right) \times \rho_{liq}$$

avec :

ρ_{exp}	masse volumique expérimentale de l'échantillon	(g/cm^3)
m_{sec}	masse de l'échantillon sec	(g)
$m_{immerge}$	masse de l'échantillon immergé	(g)
ρ_{liq}	masse volumique du liquide	(g/cm^3)

Dans le cadre de ces travaux, le liquide utilisé est de l'eau. A température ambiante, la masse volumique de l'eau peut être approximée à $1 g/cm^3$. D'où la formule simplifiée :

$$\rho_{exp} = \left(\frac{m_{sec}}{m_{sec} - m_{immerge}} \right)$$

La densité relative (exprimée ici en pourcent) est donnée par $d_{relative} = \frac{\rho_{exp}}{\rho_{th}} \times 100$ où ρ_{th} est la masse volumique théorique du matériau. $d_{relative}$ sera donc égal à 100% pour un échantillon exempt de porosité.

Le pourcentage de porosité P peut être déduit de la densité relative à l'aide de :

$$P = (100 - d_{relative})$$

L'efficacité du frittage pourra donc être évaluée à l'aide, au choix, de la densité relative ou bien du pourcentage de porosité du matériau.

.2 Mesure de la diffusivité thermique

La mesure de la diffusivité thermique, aussi bien dans l'industrie qu'à l'échelle du laboratoire, est réalisée de manière courante à l'aide de la méthode flash. Cette méthode consiste à envoyer une impulsion d'énergie sur la face d'un échantillon plat et de mesurer la variation de température de la face opposée en fonction du temps. L'appareil utilisé ici est « NETZSCH LFA 457 MicroFlash® » produisant une impulsion laser de l'ordre de $300 \mu s$ qui est envoyée sur la face avant d'un échantillon (cylindre de diamètre compris entre $5,8$ et $6,0 \text{ mm}$ et de hauteur comprise entre $2,0$ et $6,0 \text{ mm}$) préalablement recouvert d'une fine couche de graphite qui permet d'absorber efficacement le rayonnement. L'énergie ainsi transférée à l'échantillon est d'environ 3 J . La variation de température de la face arrière de l'échantillon est déduite à l'aide d'un capteur infrarouge. À partir de ce signal et à l'aide d'algorithmes, prenant en compte des paramètres tels que l'énergie dissipée par les côtés de l'échantillon ou encore la forme de l'impulsion laser, il peut être déduit la diffusivité thermique a de l'échantillon exprimée en mm^2/s [106].

La masse volumique ρ de l'échantillon pouvant être mesurée par la méthode d'Archimède (cf. .1 Mesure de la densité relative à l'aide de la méthode d'ARCHIMÈDE p. 107) et le c_p peut être obtenu par loi des mélange selon [107], il peut alors être calculé la conductivité thermique λ du matériau à l'aide de la relation :

$$\lambda = c_p \times \rho \times a.$$

Avec :

λ	la conductivité thermique	$(W/(m \times K))$
c_p	la capacité calorifique massique à pression constante	$(J/(g \times K))$
ρ	la masse volumique	(g/cm^3)
a	la diffusivité thermique	(mm^2/s)

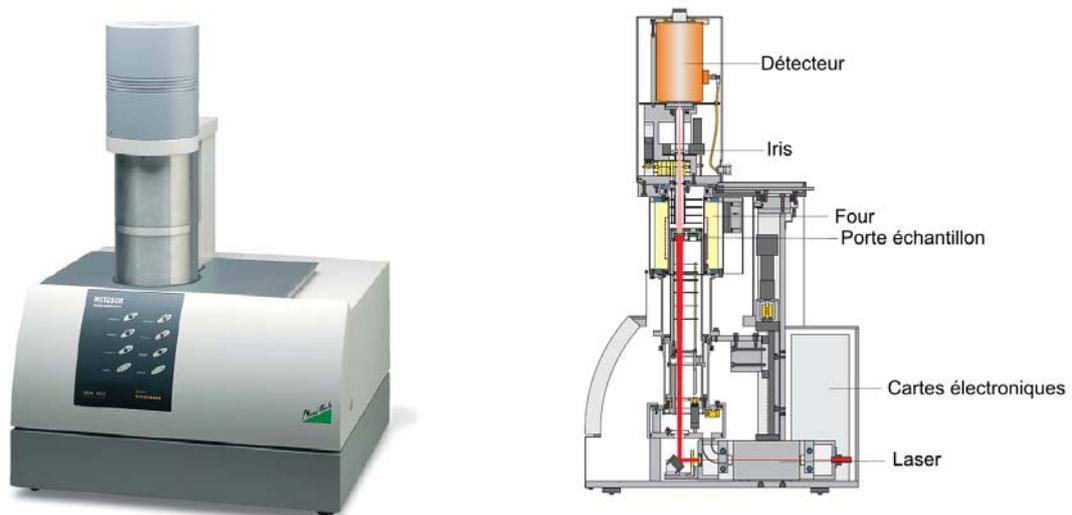


FIGURE 16 – Photographie (à gauche) et schéma (à droite) du diffusivimètre « LFA 457 ».

.3 Mesure du coefficient de dilatation thermique

Le coefficient de dilatation thermique des échantillons a été déterminé à l'aide d'un dilatomètre « NETZSCH DIL 402 PC® » (Fig. 17). L'échantillon est un barreau de 4 à 20 mm de long, placé dans un four et maintenu contre une butée par une tige mobile d'alumine. Cette dernière reste en contact avec l'échantillon durant toute la durée de la mesure. Connaissant en tout instant la température du système, le coefficient de dilatation thermique peut ainsi être déduit à partir de la variation de la position du point de contact entre la tige et l'échantillon, c'est-à-dire à partir de la mesure de l'évolution de la taille de l'échantillon au cours de la mesure. Afin de garantir la meilleure précision, le thermocouple utilisé est placé pratiquement au contact de l'échantillon afin que la température du four et de l'échantillon soient les plus proches possibles.



FIGURE 17 – Dilatomètre « DIL 402 PC ».

.4 Caractérisation de fibres de carbone par microspectrométrie Raman

Le phénomène de diffusion Raman est un phénomène de diffusion inélastique de la lumière par de la matière : un photon d'énergie E_1 est diffusé à une énergie $E_2 = E_1 + E_3$.

- Si E_3 est négatif, le photon diffusé a une énergie inférieure au photon incident, on parle alors de décalage Stokes.
- Si E_3 est positif, le photon diffusé a une énergie supérieure au photon incident, on parle alors de décalage anti-Stokes.
- Si E_3 est nul, le photon diffusé a la même énergie que le photon incident, il ne s'agit donc pas de diffusion inélastique. On parle alors de diffusion élastique ou encore de diffusion Rayleigh.

La spectroscopie Raman consiste à focaliser un faisceau de lumière monochromatique (un laser) sur un échantillon et de mesurer l'intensité du rayonnement diffusé en fonction de sa longueur d'onde. Bien que la majorité du rayonnement collecté soit issu d'une diffusion élastique de la lumière, il est possible de détecter aussi les phénomènes de diffusions inélastiques correspondants aux raies Stokes et anti-Stokes du matériau analysé. Il s'agit donc de mesurer un écart d'énergie entre le rayonnement incident et le rayonnement diffusé.

Les règles de sélection de la spectroscopie Raman appliquées à du graphite n'autorisent qu'une seule et unique transition du premier ordre. Une fibre de carbone dont la structure cristallographique est parfaite aura donc un spectre constitué d'une raie unique dénommée « bande G » et ayant une énergie proche de 1580 cm^{-1} et caractéristique de la symétrie E_{2g} (Fig. 18).

Cependant, dès lors que des défauts cristallographiques seront présents dans la zone sondée (environ $1\ \mu\text{m}^2$ sur une profondeur de $0,1\ \mu\text{m}$ pour du graphite et jusqu'à $1\ \mu\text{m}$ de profondeur pour un échantillon transparent), alors la symétrie du système sera altérée. La structure n'est alors plus infiniment grande sur l'ensemble du volume sondé. Or, le fait de passer à une structure de taille finie autorise l'apparition, vers 1350 cm^{-1} , d'une bande dénommée « bande D » pour « bande de défauts/de désordre », également connue sous le nom anglais « *disorder-induced band* ». De plus, il peut-être remarqué que même pour des graphites ayant été traités thermiquement à très haute température cette bande D existe (Fig. 19).

L'intensité du pic D est d'autant plus importante que la zone de cohérence cristalline est faible comme cela peut être constaté figures 20 et 21 présentant respectivement les spectres mesurés sur un graphite traité thermiquement à $2000\text{ }^\circ\text{C}$ et sur du carbone vitreux. Le rapport des intensités du pic G et du pic D peut donc servir à classer des fibres suivant leur quantité de défauts. Plus précisément, ce rapport est lié à la taille moyenne L où la structure peut être considérée cristallographiquement parfaite par la formule [108] : $L = C \times \frac{I_G}{I_D}$ avec $C = 44$.

Remarque : bien que le rapport des intensités I_G et I_D soit exploité depuis 1970 [59] pour caractériser le taux de désordre dans les carbones graphites, les informations exactes pouvant être exploitées sont encore sujette à débat. Ainsi les réponses aux questions telles que « Est-ce vraiment l'intensité des pics ou l'ensemble des aires correspondantes qui doit être utilisée ? » ou encore « Comment expliquer les différences de taille des cristallites mesurées par diffraction des rayons X et par spectroscopie Raman ? » sont encore sujets à débats [109].

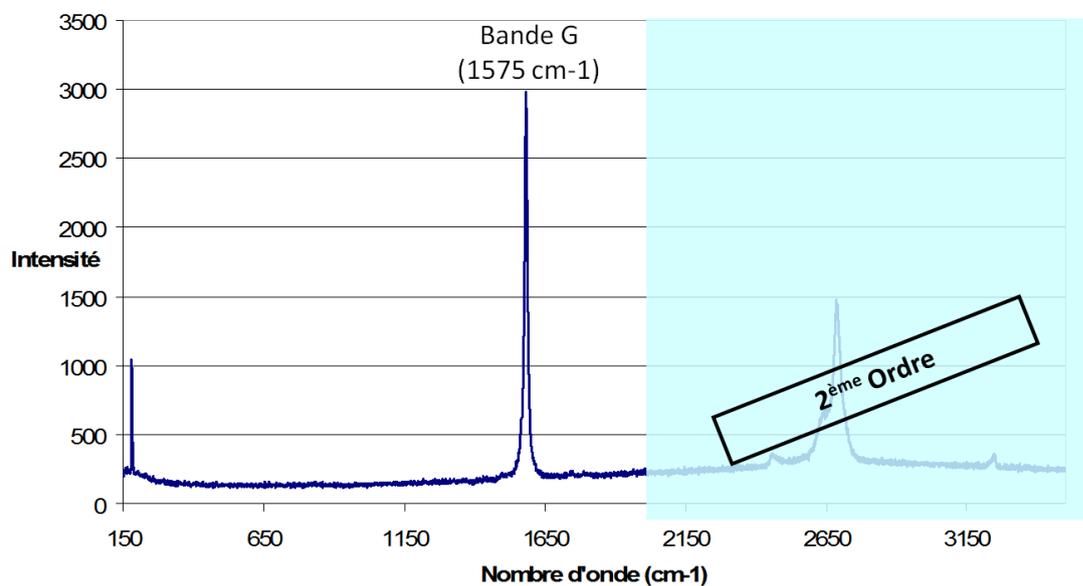


FIGURE 18 – Spectre Raman de carbone « HOPG » (Highly Orientated Pyrolytical Graphite).

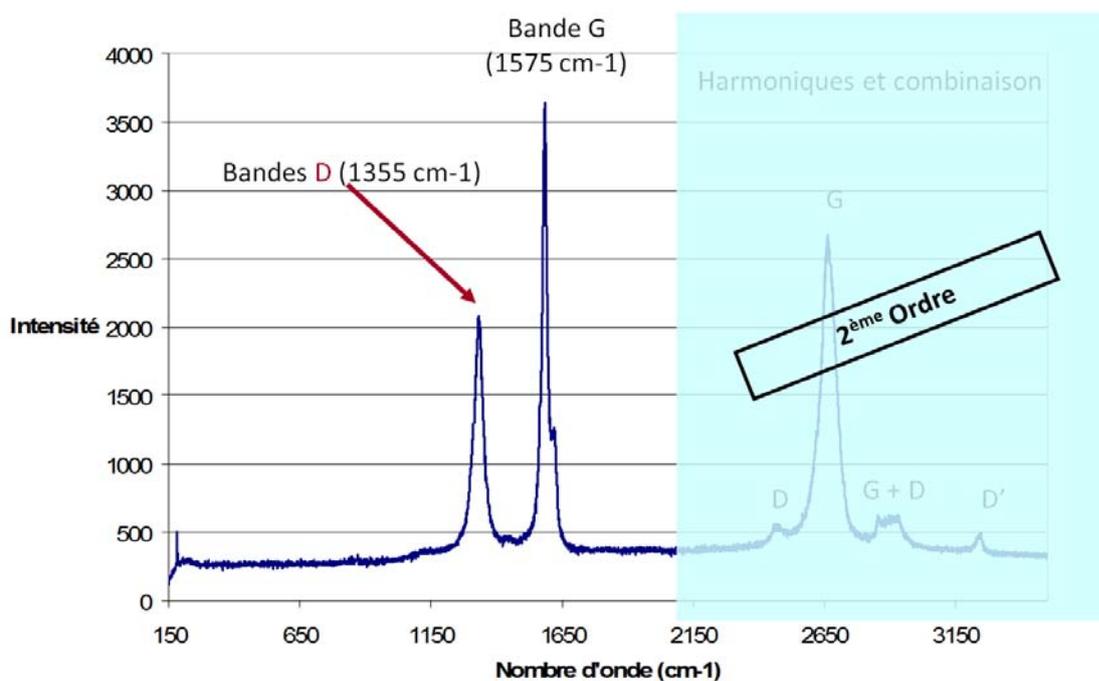


FIGURE 19 – Spectre Raman de carbone graphite traité à 2800 °C.

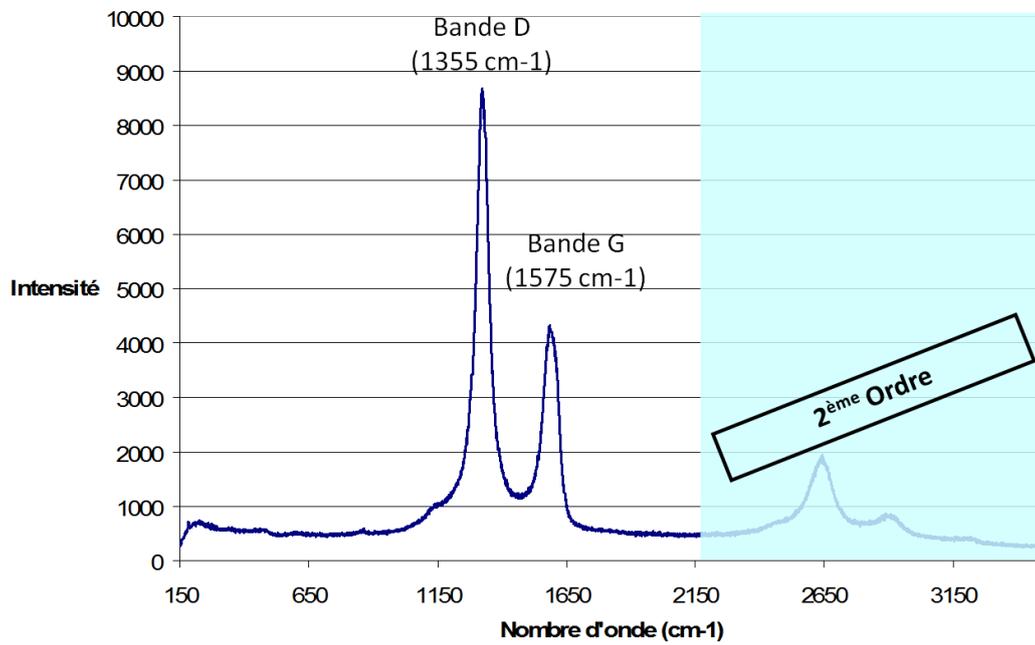


FIGURE 20 – Spectre Raman de carbone graphite traité à 2000 °C.

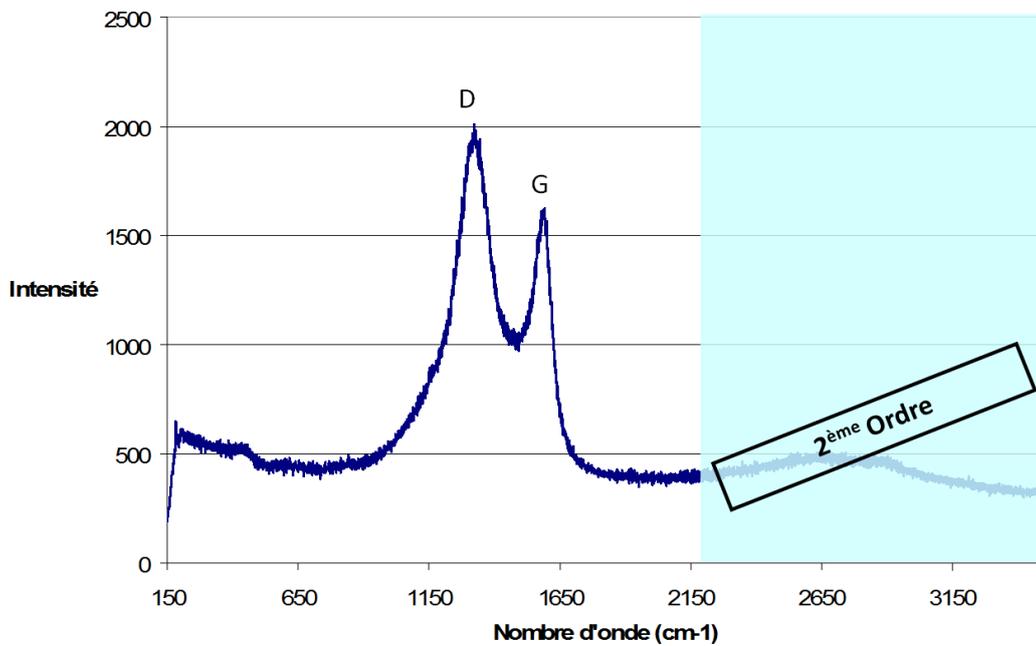


FIGURE 21 – Spectre Raman de carbone vitreux.

Table des figures

1	Schéma d'un module de puissance	10
2	Evolution de la puissance des puces électroniques.	12
3	Evolution du flux de chaleur des puces électroniques.	12
4	Propriétés de Al_2O_3 , AlN et Si_3N_4	13
5	Module de puissance avec connecteurs brasés.	13
6	Propriétés de différents matériaux employés en tant que semelle	15
7	Micrographie du phénomène d'écaillage d'un fil en aluminium	15
8	Evolution de la taille des grains dans un fil de liaison après cyclage thermique	16
9	Exemples de micrographies d'endommagement de fils de liaisons.	16
10	Métallisations ayant subies différentes conditions de cyclage thermique . .	17
11	Protection d'une métallisation par une couche de passivation	17
12	Micrographies de différentes ruptures de céramiques	18
13	Dégradations de brasures	19
14	Propriétés de quelques alliages d'aluminium	21
15	Micrographies de la poudre d'aluminium F3731.	22
1.1	Illustration des différentes étapes d'une modélisation par éléments finis. . .	25
1.2	Propriétés des matériaux de la base de donnée.	27
1.3	Répartition des fibres de carbone au sein de la matrice par élaboration par compression uniaxiale à chaud.	28
1.4	Répartition des fibres de carbone au sein de la matrice par élaboration par extrusion à chaud.	30
1.5	Propriétés des matériaux composites modélisés.	30
1.6	Schéma du montage bidimensionnel utilisé lors des simulations.	32
1.7	Représentation de la carte des températures pour les différents montages.	33
1.8	Contraintes de cisaillement s_{xy} dans la semelle et la brasure 1.	34
1.9	Contraintes de cisaillement s_{xy} dans le DBC.	35
1.10	Contraintes de cisaillement s_{xy} dans la puce et la brasure 2.	36
1.11	Comparaison des montages bi et tridimensionnels.	37
1.12	Schéma du montage tridimensionnel utilisé lors des simulations.	38
1.13	Comparaison des cartes de températures calculées en 2D et en 3D sur un plan de symétrie.	39

TABLE DES FIGURES

1.14	Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l'axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Cu. . .	40
1.15	Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l'axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al. . .	41
1.16	Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l'axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al30Cplan.	42
1.17	Comparaison des contraintes de cisaillement calculées à partir du modèle 2D et sur l'axe de symétrie du modèle 3D pour un drain thermique Al30Cextrude.	43
1.18	Carte des températures des différents montages.	44
1.19	Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement s_{xy} et s_{xz} , dans le drain thermique et la brasure 1, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.	45
1.20	Comparaison de la position du maximum de contraintes de cisaillement entre les simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles dans le drain et la brasure 1.	46
1.21	Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement s_{xy} et s_{xz} , dans le DBC, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.	47
1.22	Comparaison de la position du maximum de contraintes de cisaillement entre les simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles dans le DBC.	48
1.23	Position du maximum de contraintes de cisaillement dans la puce et la brasure 2.	49
1.24	Valeurs absolues des maxima de contrainte de cisaillement s_{xy} et s_{xz} , dans la brasure 2 et le drain, en fonction du coefficient d'expansion thermique des différents matériaux utilisés pour le drain thermique.	50
2.1	Schéma d'un renfort aggloméré	54
2.2	Schéma d'un renfort mal réparti	54
2.3	Micrographies électroniques de fibres de carbone type CN80C.	56
2.4	Micrographies électroniques de fibres de carbone type XN100.	56
2.5	Micrographies électroniques de la poudre d'aluminium F3731.	57
2.6	Micrographies électroniques de fibres CN80C broyées.	58
2.7	Micrographies électroniques d'une poudre composite.	58
2.8	Schéma de fonctionnement de la coupe des fibres de carbone.	61
2.9	Micrographies électroniques de mélanges d'une poudre composite Al F3731 avec 20% _{vol} des fibres de carbone CN80C coupées à 0,50 mm, 0,20 mm et 0,12 mm.	62
2.10	Mise en évidence, par spectroscopie Raman, de l'évolution des défauts dans des fibres de carbone CN80C en fonction de la grille de découpe.	63
2.11	Influence de la coupe des fibres de carbone sur la diffusivité thermique des échantillons.	63
2.12	Influence du temps de frittage sur la densité relative	64
2.13	Influence du temps de frittage sur la diffusivité thermique	65
2.14	Micrographies électroniques de Al F3731-20% _{vol} CN80C frittés à 600 °C et 50 MPa durant 20 et 40minutes	65
2.15	Influence de la température de frittage sur la diffusivité thermique.	67

2.16	Influence de la température de frittage sur la dispersion des résultats . . .	68
2.17	Influence du pourcentage de renfort sur la diffusivité thermique.	70
2.18	Influence du type de frittage sur la diffusivité thermique pour des échantillons Al F3731-20% <i>vol</i> CN80C frittés à 600 °C.	71
2.19	Influence du type de frittage sur la diffusivité thermique pour des échantillons Al F3731-30% <i>vol</i> CN80C frittés à 600 °C.	72
2.20	Micrographies électroniques d'échantillons Al F3731-30% <i>vol</i> CN80C frittés à 600 °C, 60 minutes par induction (gauche) et par SPS (droite).	73
2.21	Micrographies électroniques d'échantillons Al F3731-30% <i>vol</i> CN80C frittés à 600 °C, 20 minutes par induction (gauche) et par SPS (droite).	73
2.22	Cycle de mesure de dilatométrie.	75
2.23	Évolution du coefficient de dilatation thermique en fonction du nombre de mesures pour des échantillons Al F3731 renforcés par 20 et 30 % <i>vol</i> de fibres XN100 et fritté respectivement durant 160 et 80 minutes par induction.	77
2.24	Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents.	80
2.25	Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents et élaborés par frittage par induction et SPS.	81
2.26	Comparaison de l'évolution du coefficient de dilatation thermique de composites Al F3731 renforcés par deux renforts différents et élaborés par frittage par induction et SPS.	82
2.27	Micrographies d'interfaces fibres/matrice de composites élaborés par induction et par frittage flash.	83
2.28	Récapitulatif des mesures de coefficient de dilatation thermique.	86
3.1	Exemple de profilés commerciaux d'aluminium.	90
3.2	Schéma du filage direct chemisé.	90
3.3	Schéma du filage direct lubrifié.	90
3.4	Défaut d'invagination sur un profilé d'aluminium.	91
3.5	Principe du filage indirect.	92
3.6	Tube creux obtenu par filage inverse en conteneur.	92
3.7	exemples de montage d'extrusion angulaire à section constante.	92
3.8	Évolution des propriétés par extrusion angulaire à section constante.	93
3.9	Découpe d'un échantillon	94
3.10	Echantillon avant et après extrusion	94
3.11	Schémas de l'évolution de la géométrie des échantillons en fonction de la filière d'extrusion et vues en coupes.	95
3.12	Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 1.	96
3.13	Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 2.	97
3.14	Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 3.	98
3.15	Schémas de l'évolution de la géométrie d'un échantillon extrudé au travers de la filière 4.	99
16	Diffusivimètre « LFA 457 ».	108
17	Dilatometre « DIL 402PC ».	109

TABLE DES FIGURES

18	Spectre Raman de carbone « HOPG »	111
19	Spectre Raman de carbone graphite traité à 2800 °C.	111
20	Spectre Raman de carbone graphite traité à 2000 °C.	112
21	Spectre Raman de carbone vitreux.	112

Troisième partie

Références bibliographique

- [1] De Forest Lee. Brevet u.s. 841386, 1906.
- [2] De Forest Lee. Brevet u.s. 879532, 1908.
- [3] P.K. Schelling, L. Shi, and K.E. Goodson. Managing heat for electronics. Materials Today, 8(6) :30–35, 2005.
- [4] S.S. Anandan and V. Ramalingam. Thermal management of electronics : A review of literature. Thermal Science, 12(2) :5–25, 2008.
- [5] M. Ciappa. Selected failure mechanisms of modern power modules. Microelectronics Reliability, 42(4-5) :653–667, 2002.
- [6] P.-M. Geffroy, J.-D. Mathias, and J.-F. Silvain. Heat sink material selection in electronic devices by computational approach. Advanced Engineering Materials, 10(4) :400–405, 2008.
- [7] S. Ridout and C. Bailey. Review of methods to predict solder joint reliability under thermo-mechanical cycling. Fatigue and Fracture of Engineering Materials and Structures, 30(5) :400–412, 2007.
- [8] Dasgupta A. Osterman, M. Life expectancies of pb-free sac solder interconnects in electronic hardware. Journal of Materials Science : Materials in Electronics, 18(1-3) :229–236, 2007.
- [9] H. He, R. Fu, D. Wang, X. Song, and M. Jing. A new method for preparation of direct bonding copper substrate on al₂o₃. Materials Letters, 61(19-20) :4131–4133, 2007.
- [10] J. Schulz-Harder. Advantages and new development of direct bonded copper substrates. Microelectronics Reliability, 43(3) :359–365, 2003.
- [11] S. Kim, K.-S. Kim, S.-S. Kim, K. Suganuma, and G. Izuta. Improving the reliability of si die attachment with zn-sn-based high-temperature pb-free solder using a tin diffusion barrier. Journal of Electronic Materials, 38(12) :2668–2675, 2009.
- [12] L. Qi, J. Huang, X. Zhao, and H. Zhang. Effect of thermal-shearing cycling on ag₃sn microstructural coarsening in snagcu solder. Journal of Alloys and Compounds, 469(1-2) :102–107, 2009.
- [13] H. Ma and J.C. Suhling. A review of mechanical properties of lead-free solders for electronic packaging. Journal of Materials Science, 44(5) :1141–1158, 2009.

- [14] E. Herr, T. Frey, R. Schlegel, A. Stuck, and R. Zehringer. Substrate-to-base solder joint reliability in high power igt modules. Microelectronics Reliability, 37(10-11) :1719–1722, 1997.
- [15] R. Wayne Johnson and J. Williams. Sic power device packaging technologies for 300 to 350c applications. Materials Science Forum, 483-485 :785–790, 2005.
- [16] R. Sheikh and G. Govinda-Raju. Electrical and thermal response of layered polyimide films. pages 219–222, 2007. cited By (since 1996) 0.
- [17] S. Logothetidis. Flexible organic electronic devices : Materials, process and applications. Materials Science and Engineering B : Solid-State Materials for Advanced Technology, 152(1-3) :96–104, 2008.
- [18] D.J. Mohan and A.V.R. Reddy. Synthesis, characterization, and investigation of structure-thermal cycloimidization relationship of novel poly(amide amic acid)s to poly(amide imide)s by thermogravimetric analysis. Journal of Polymer Science, Part B : Polymer Physics, 45(21) :2937–2947, 2007.
- [19] C.-T. Su and T.-L. Chiang. Optimizing the ic wire bonding process using a neural networks/genetic algorithms approach. Journal of Intelligent Manufacturing, 14(2) :229–238, 2003.
- [20] H. Xu, C. Liu, V.V. Silberschmidt, and Z. Chen. Growth of intermetallic compounds in thermosonic copper wire bonding on aluminum metallization. Journal of Electronic Materials, 39(1) :124–131, 2010.
- [21] S. Murali, N. Srikanth, Y.M. Wong, and C.J. Vath III. Fundamentals of thermosonic copper wire bonding in microelectronics packaging. Journal of Materials Science, 42(2) :615–623, 2007.
- [22] R. Johannessen, F. Oldervoll, and F. Strisland. High temperature reliability of aluminium wire-bonds to thin film, thick film and low temperature co-fired ceramic (ltcc) substrate metallization. Microelectronics Reliability, 48(10) :1711–1719, 2008.
- [23] H.-K. Kung, Y.-P. Sun, J.-N. Lee, and H.-S. Chen. A method to determine the sweep resistance of wire bonds for microelectronic packaging. Microelectronic Engineering, 85(9) :1902–1909, 2008.
- [24] K.A. Weidenmann, C. Fleck, V. Schulze, and D. Lohe. Materials selection process for compound-extruded aluminium matrix composites. Advanced Engineering Materials, 7(12) :1150–1155, 2005.
- [25] M. Willander, M. Friesel, Q.-U. Wahab, and B. Straumal. Silicon carbide and diamond for high temperature device applications. Journal of Materials Science : Materials in Electronics, 17(1) :1–25, 2006.
- [26] European Commission. Restriction of the use of certain hazardous substances in electrical and electronic equipment, 2007.
- [27] Y.S. Sun and John C. Driscoll. New hybrid power technique utilizing a direct copper to ceramic bond. IEEE Transactions on Electron Devices, ED-23(8) :961–967, 1976.
- [28] J.F. Burgess, C.A. Neugebauer, G. Flanagan, and R.E. Moore. Direct bonding of metals to cermarics and application in electronics. Electrocomponent Sci Technol, 2(4) :233–240, 1976.

- [29] S.H. Cho. Heat dissipation effect of al plate embedded substrate in network system. Microelectronics Reliability, 48(10) :1696–1702, 2008.
- [30] H.P. Degischer. Innovative light metals : Metal matrix composites and foamed aluminium. Materials and Design, 18(4-6) :221–226, 1997.
- [31] A. Veillère. Drains thermiques adaptatifs : cuivre allié/fibres de carbone. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2009.
- [32] C. Vincent. Le composite cuivre nanofibres de carbone. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2008.
- [33] X.-l. Zhou, Y.-h. Dong, X.-z. Hua, Rafi ud dinb, and Z.-g. Ye. Effect of fe on the sintering and thermal properties of mo-cu composites. Materials and Design, 31(3) :1603–1606, 2010.
- [34] X. Zheng, D.G. Cahill, and J.-C. Zhao. Effect of mev ion irradiation on the coefficient of thermal expansion of fe-ni invar alloys : A combinatorial study. Acta Materialia, 58(4) :1236–1241, 2010.
- [35] N. Yang, Zh. Wang, L. Chen, Y. Wang, and Y.B. Zhu. A new process for fabricating w-15 wt.%cu sheet by sintering, cold rolling and re-sintering. International Journal of Refractory Metals and Hard Materials, 28(2) :198–200, 2010.
- [36] Y. Xia, Y.-q. Song, C.-g. Lin, S. Cui, and Z.-z. Fang. Effect of carbide formers on microstructure and thermal conductivity of diamond-cu composites for heat sink materials. Transactions of Nonferrous Metals Society of China (English Edition), 19(5) :1161–1166, 2009.
- [37] T. Schubert, L. Ciupiński, W. Zieliński, A. Michalski, T. Wei, Y. Garbera, and B. Kiebacka. Interfacial characterization of cu/diamond composites prepared by powder metallurgy for heat sink applications. Scripta Materialia, 58(4) :263–266, 2008.
- [38] J.M. Molina, R. Prieto, J. Narciso, and E. Louis. The effect of porosity on the thermal conductivity of al-12 wt.% si/sic composites. Scripta Materialia, 60(7) :582–585, 2009.
- [39] K. Mizuuchi, K. Inoue, Y. Agari, S. Yamada, M. Tanaka, M. Sugioka, T. Takeuchi, J.-I. Tani, M. Kawahara, J.-H. Lee, and Y. Makino. Thermal properties of diamond-particle-dispersed cu-matrix-composites fabricated by spark plasma sintering (sps). Materials Science Forum, 638-642 :2115–2120, 2010.
- [40] B.K. Jasthi, W.J. Arbegast, and S.M. Howard. Thermal expansion coefficient and mechanical properties of friction stir welded invar (fe-36 Journal of Materials Engineering and Performance, 18(7) :925–934, 2009.
- [41] Y. Cui, L. Wang, and J. Ren. Multi-functional sic/al composites for aerospace applications. Chinese Journal of Aeronautics, 21(6) :578–584, 2008.
- [42] K. Chu, C. Jia, X. Liang, H. Chen, H. Guo, F. Yin, and X. Qu. Experimental and modeling study of the thermal conductivity of sic _p/al composites with bimodal size distribution. Journal of Materials Science, 44(16) :4370–4378, 2009.
- [43] Y.-J. Chen and T.-F. Young. Thermal stress and heat transfer characteristics of a cu/diamond/cu heat spreading device. Diamond and Related Materials, 18(2-3) :283–286, 2009.

- [44] J.M. Molina, J. Narciso, L. Weber, A. Mortensen, and E. Louis. Thermal conductivity of al-sic composites with monomodal and bimodal particle size distribution. Materials Science and Engineering A, 480(1-2) :483–488, 2008.
- [45] G.-B. Brook. Smithells light metals handbook. Hardbound.
- [46] G. Dupupet. Techniques de l'ingénieur am5134 - les fibres de carbone, 2008.
- [47] M.-T. Cory. Brevet u.s. 3508871, 1970.
- [48] P. Spiteri. Techniques de l'ingénieur af503 - approche variationnelle pour la méthode des éléments finis, 2002.
- [49] P. Spiteri. Techniques de l'ingénieur af504 - introduction à la méthode des éléments finis, 2002.
- [50] P. Spiteri. Techniques de l'ingénieur af505 - présentation générale de la méthode des éléments finis, 2002.
- [51] ©Comsol Multiphysics. Fluid-structure interaction in aluminium extrusion, 2008.
- [52] D. François, A. Pineau, and A. Zaoui. Comportement mécanique des matériaux, volume 1. Hermes, 1991.
- [53] K.-C. Chang, K. Matsugi, G. Sasaki, and O. Yanagisawa. Effect of fiber surface structure on interfacial reaction between carbon fiber and aluminium. JSME International Journal, Series A : Solid Mechanics and Material Engineering, 48(4) :205–209, 2006.
- [54] D. Bernache-Assolant and J.-P. Bonnet. Techniques de l'ingénieur - af6620 - frittage : aspects physico-chimiques, partie 1 : frittage en phase solide, 2005.
- [55] K. Landry, S. Kalogeropoulou, and N. Eustathopoulos. Wettability of carbon by aluminum and aluminum alloys. Materials Science and Engineering A, 254(1-2) :99–111, 1998.
- [56] J. Rams, A. Urena, M.D. Escalera, and M. Sanchez. Electroless nickel coated short carbon fibres in aluminium matrix composites. Composites Part A : Applied Science and Manufacturing, 38(2) :566–575, 2007.
- [57] C. Estournes. Techniques de l'ingénieur - in56 - mise en forme de matériaux par frittage flash, 2006.
- [58] F.A. Guo, N. Trannoy, and J. Lu. Analysis of thermal properties by scanning thermal microscopy in nanocrystallized iron surface by ultrasonic shot peening. Materials Science and Engineering A, 369(1-2) :36–42, 2004.
- [59] F. Tuinstra and Koenig J.-L. Raman spectrum of graphite. Journal of Chemical Physics, 53(3) :1126–1130, 1970.
- [60] M. Omori. Sintering, consolidation, reaction and crystal growth by the spark plasma system (sps). Materials Science and Engineering A, 287(2) :183–188, 2000.
- [61] Z.-A. Munir and H. Schmalzried. The effect of electric field and pressure on the synthesis and consolidation of materials : A review of the spark plasma sintering method. J. Mater. Sci., 41 :763–777, 1993.
- [62] R.S. Dohedoe, G.D. West, and M.H. Lewis. Spark plasma sintering of ceramics : Understanding temperature distribution enables more realistic comparison with conventional processing. Advances in Applied Ceramics, 104(3) :110–116, 2005.

- [63] R. Yilmaz. Thermal diffusivity measurement of sic fibre reinforced bmas glass ceramic composites exposed mechanical damage. Journal of the European Ceramic Society, 27(2-3) :1223–1228, 2007.
- [64] O. Beffort, F.A. Khalid, L. Weber, P. Ruch, U.E. Klotz, S. Meier, and S. Kleiner. Interface formation in infiltrated al(si)/diamond composites. Diamond and Related Materials, 15(9) :1250–1260, 2006.
- [65] T. Huber, H.P. Degischer, G. Lefranc, and T. Schmitt. Thermal expansion studies on aluminium-matrix composites with different reinforcement architecture of sic particles. Composites Science and Technology, 66(13) :2206–2217, 2006.
- [66] H. Kwon, M. Estili, K. Takagi, T. Miyazaki, and A. Kawasaki. Combination of hot extrusion and spark plasma sintering for producing carbon nanotube reinforced aluminum matrix composites. Carbon, 47(3) :570–577, 2009.
- [67] H.J. Choi, G.B. Kwon, G.Y. Lee, and D.H. Bae. Reinforcement with carbon nanotubes in aluminum matrix composites.
- [68] S.H. Hong, K.H. Chung, and C.H. Lee. Effects of hot extrusion parameters on the tensile properties and microstructures of sicw-2124a1 composites. Materials Science and Engineering A, 206(2) :225–232, 1996.
- [69] C.G. Kang, N.H. Kim, and B.M. Kim. Effect of die shape on the hot extrudability and mechanical properties of 6061 al/al₂o₃ composites. Journal of Materials Processing Technology, 100(1) :53–62, 2000.
- [70] J. Liu, S. Li, A. Fan, and H. Sun. Effect of fibrous orientation on dynamic mechanical properties and susceptibility to adiabatic shear band of tungsten heavy alloy fabricated through hot-hydrostatic extrusion. Materials Science and Engineering A, 487(1-2) :235–242, 2008.
- [71] M. Schikorra, L. Donati, L. Tomesani, and A.E. Tekkaya. Microstructure analysis of aluminum extrusion : Prediction of microstructure on aa6060 alloy. Journal of Materials Processing Technology, 201(1-3) :156–162, 2008.
- [72] G. Xu, S. and Zhao, G. Ren, and X. Ma. Numerical simulation and experimental investigation of pure copper deformation behavior for equal channel angular pressing/extrusion process. Computational Materials Science, 44(2) :247–252, 2008.
- [73] N. Chawla, X. Deng, and D.R.M. Schnell. Thermal expansion anisotropy in extruded sic particle reinforced 2080 aluminum alloy matrix composites. Materials Science and Engineering A, 426(1-2) :314–322, 2006.
- [74] D.-C. Chen, S.-K. Syu, C.-H. Wu, and S.-K. Lin. Investigation into cold extrusion of aluminum billets using three-dimensional finite element method. Journal of Materials Processing Technology, 192-193 :188–193, 2007.
- [75] Y.M. Hwang and C.Y. Shen. Analysis of plastic flow and die design during extrusion of cpu heat sinks. Journal of Materials Processing Technology, 201(1-3) :174–178, 2008.
- [76] C.G. Kang, Y.J. Jung, and H.C. Kwon. Finite element simulation of die design for hot extrusion process of al/cu clad composite and its experimental investigation. Journal of Materials Processing Technology, 124(1-2) :49–56, 2002.
- [77] N.H. Kim, C.G. Kang, and B.M. Kim. Die design optimization for axisymmetric hot extrusion of metal matrix composites. International Journal of Mechanical Sciences, 43(6) :1507–1520, 2001.

- [78] S. Kumar and P. Vijay. Die design and experiments for shaped extrusion under cold and hot condition. Journal of Materials Processing Technology, 190(1-3) :375–381, 2007.
- [79] K. Kuzman, E. Pfeifer, N. Bay, and J. Hunding. Control of material flow in a combined backward can - forward rod extrusion. Journal of Materials Processing Technology, 60(1-4) :141–147, 1996.
- [80] V. Amigo, J.L. Ortiz, and M.D. Salvador. Microstructure and mechanical behavior of 6061al reinforced with silicon nitride particles, processed by powder metallurgy. Scripta Materialia, 42(4) :383–388, 2000.
- [81] L.E.G. Cambronero, E. Sanchez, J.M. Ruiz-Roman, and J.M. Ruiz-Prieto. Mechanical characterisation of aa7015 aluminium alloy reinforced with ceramics. Journal of Materials Processing Technology, 143-144(1) :378–383, 2003.
- [82] C.F. Deng, D.Z. Wang, X.X. Zhang, and A.B. Li. Processing and properties of carbon nanotubes reinforced aluminum composites. Materials Science and Engineering A, 444(1-2) :138–145, 2007.
- [83] C. Deng, X. Zhang, Y. Ma, and D. Wang. Fabrication of aluminum matrix composite reinforced with carbon nanotubes. Rare Metals, 26(5) :450–455, 2007.
- [84] M.I. Flores-Zamora, I. Estrada-Guel, J. Gonzalez-Hernandez, M. Miki-Yoshida, and R. Martinez-Sanchez. Aluminum-graphite composite produced by mechanical milling and hot extrusion. Journal of Alloys and Compounds, 434-435(SPEC. ISS.) :518–521, 2007.
- [85] T.M. Lillo. Enhancing ductility of al6061 + 10 wt.% b4c through equal-channel angular extrusion processing. Materials Science and Engineering A, 410-411 :443–446, 2005.
- [86] J.L. Ortiz, V. Amigo, A. Manzano, and M.A. Perez. Mechanical properties of composites made of an aluminum alloy matrix reinforced with titanium nitride particles, consolidated by powder extrusion. Metallurgical and Materials Transactions B : Process Metallurgy and Materials Processing Science, 38(1) :1–4, 2007.
- [87] R. Rahmani Fard and F. Akhlaghi. Effect of extrusion temperature on the microstructure and porosity of a356-sicp composites. Journal of Materials Processing Technology, 187-188 :433–436, 2007.
- [88] W. Theisen and M. Karlsohn. Hot direct extrusion-a novel method to produce abrasion-resistant metal-matrix composites. Wear, 263(7-12 SPEC. ISS.) :896–904, 2007.
- [89] R. Arpon, J.M. Molina, R.A. Saravanan, C. Garcia-Cordovilla, E. Louis, and J. Narciso. Thermal expansion behaviour of aluminium/sic composites with bimodal particle distributions. Acta Materialia, 51(11) :3145–3156, 2003.
- [90] A. Borrego, J. Ibanez, V. Lopez, M. Lieblich, and G. Gonzalez-Doncel. Influence of extrusion temperature on the aging behavior of 6061al-15vol%sicw composites. Scripta Materialia, 34(3) :471–478, 1996.
- [91] A. Borrego and G. Gonzalez-Doncel. Calorimetric study of 6061-al-15 vol.% sicw pm composites extruded at different temperatures. Materials Science and Engineering A, 245(1) :10–18, 1998.

- [92] H. Ding, L. Liu, S. Kamado, W. Ding, and Y. Kojima. Study of the microstructure, texture and tensile properties of as-extruded az91 magnesium alloy. Journal of Alloys and Compounds, 456(1-2) :400–406, 2008.
- [93] E.A. El-Danaf. Mechanical properties and microstructure evolution of 1050 aluminum severely deformed by ecap to 16 passes. Materials Science and Engineering A, 487(1-2) :189–200, 2008.
- [94] E.-Z. Kim, S.-I. Oh, Y.-S. Lee, and K.-H. Na. Backward can extrusion of ultra-fine-grained bulk al-mg alloy fabricated by cryomilling and hydrostatic extrusion. Journal of Materials Processing Technology, 201(1-3) :163–167, 2008.
- [95] K.J. Kim, D.Y. Yang, and J.W. Yoon. Investigation of microstructure characteristics of commercially pure aluminum during equal channel angular extrusion. Materials Science and Engineering A, 485(1-2) :621–626, 2008.
- [96] I. Ozdemir and K. Onel. Thermal cycling behaviour of an extruded aluminium alloy/sicp composite. Composites Part B : Engineering, 35(5) :379–384, 2004.
- [97] X.J. Wang, K. Wu, H.F. Zhang, W.X. Huang, H. Chang, W.M. Gan, M.Y. Zheng, and D.L. Peng. Effect of hot extrusion on the microstructure of a particulate reinforced magnesium matrix composite. Materials Science and Engineering A, 465(1-2) :78–84, 2007.
- [98] L. Bourithis, V. Gontzes, and G.D. Papadimitriou. Amelioration of die performance for hot brass extrusion : Laboratory and field study. Materials and Design, 29(1) :239–245, 2008.
- [99] W.A. Gordon, C.J. Van Tyne, and Y.H. Moon. A model for an adaptable axisymmetric extrusion die with a bearing length. Journal of Materials Processing Technology, 191(1-3) :11–15, 2007.
- [100] W.A. Gordon, C.J. Van Tyne, and Y.H. Moon. Overview of adaptable die design for extrusions. Journal of Materials Processing Technology, 187-188 :662–667, 2007.
- [101] M.B. Karamis and F. Nair. Effects of reinforcement particle size in mmcs on extrusion die wear. Wear, 265(11-12) :1741–1750, 2008.
- [102] M. Tercelej, A. Smolej, P. Fajfar, and R. Turk. Laboratory assessment of wear on nitrided surfaces of dies for hot extrusion of aluminium. Tribology International, 40(2 SPEC. ISS.) :374–384, 2007.
- [103] M. Bakhshi-Jooybari. A theoretical and experimental study of friction in metal forming by the use of the forward extrusion process, comparaison des pressions d'extrusion. Journal of Materials Processing Technology, 125-126 :369–374, 2002.
- [104] C.-Y. Chou, C.-W. Hsu, S.-L. Lee, K.-W. Wang, and J.-C. Lin. Effects of heat treatments on aa6061 aluminum alloy deformed by cross-channel extrusion. Journal of Materials Processing Technology, 202(1-3) :1–6, 2008.
- [105] Alexandr Vladimirovich Puchko, Valery Alexandrovich Klushin, Georgy Vasilievich Andreev, Eduard Matveevich Gorbunov, Evgeny Markellovich Makushok, Valery Yakovlevich Schukin, and Vladimir Mironovich Segal. Traverse wedge forming machine. United States Patent and Trademark Office Granted Patent, pages –, 1977.
- [106] E. Kaschnitz and R. Ebner. Thermal diffusivity of the aluminum alloy al-17si-4cu (a390) in the solid and liquid states. International Journal of Thermophysics, 28(2) :711–722, 2007.

BIBLIOGRAPHIE

- [107] J.K. Carson and M. Noureldin. Measurements of the thermal diffusivity of linear-medium-density-polyethylene/aluminium composites using a transient comparative method. International Communications in Heat and Mass Transfer, 36(5) :458–461, 2009.
- [108] M.J. Matthews. Origin of dispersive effects of the raman d band in carbon materials. Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics, 59(10) :R6585–R6588, 1999.
- [109] Smarsly B. Gierlinger N. Peterlik H. Paris O. Zickler, G.A. A reconsideration of the relationship between the crystallite size l_a of carbons determined by x-ray diffraction and raman spectroscopy. Carbon, 44(15) :3239–3246, 2006.