



**HAL**  
open science

# DEVELOPPEMENT D'UN FOUR MICRO-ONDES MONOMODE ET FRITTAGE DE POUDRES CERAMIQUE ET METALLIQUE

S. Charmond

► **To cite this version:**

S. Charmond. DEVELOPPEMENT D'UN FOUR MICRO-ONDES MONOMODE ET FRITTAGE DE POUDRES CERAMIQUE ET METALLIQUE. Mécanique [physics.med-ph]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2009. Français. NNT : . tel-00579922

**HAL Id: tel-00579922**

**<https://theses.hal.science/tel-00579922>**

Submitted on 25 Mar 2011

**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.

**INSTITUT POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE**

*N° attribué par la bibliothèque*

|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|\_|

**THESE**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'Institut Polytechnique de Grenoble**

*Spécialité : "Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie"*

préparée au laboratoire *Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés (SIMAP)*

dans le cadre de l'**Ecole Doctorale**

*"Ingénierie – Matériaux, Mécanique, Energétique, Environnement, Procédés, Production"*

présentée et soutenue publiquement

par

**Sylvain CHARMOND**

le mardi 15 décembre 2009

**DEVELOPPEMENT D'UN FOUR MICRO-ONDES MONOMODE  
ET FRITTAGE DE POUDRES CERAMIQUE ET METALLIQUE**

**DIRECTEURS DE THESE**

**M. Claude Paul CARRY & M. Didier BOUVARD**

**JURY**

M. Patrice GOEURIOT  
M. Guillaume BERNARD-GRANGER  
M. Sylvain MARINEL  
M. Claude Paul CARRY  
M. Didier BOUVARD  
M. Lionel BONNEAU  
M. Sébastien VAUCHER

Président  
Rapporteur  
Rapporteur  
Directeur de thèse  
Directeur de thèse  
Examineur  
Examineur



*Je dédie ce mémoire à mon grand-père, René CHARMOND,  
un homme doté d'une forte personnalité, exemplaire de générosité et de courage,  
qui aurait été si heureux et si fier de voir l'aboutissement de ce travail.*





## REMERCIEMENTS

Cette thèse de doctorat s'est déroulée entre octobre 2006 et décembre 2009 au laboratoire de Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés, UMR 5266 CNRS/Grenoble INP/UJF. Ce travail de recherche sur le frittage micro-ondes a pu être effectué grâce au Bonus Qualité Recherche attribué par le Conseil Scientifique de Grenoble INP dans le cadre de sa politique de soutien à des projets sur des thèmes émergents.

Je commencerai tout d'abord par remercier les porteurs de ce projet, M. Jean-Marc CHAIX, ex-directeur du laboratoire LTPCM, M. Didier BOUVARD, ex-directeur du laboratoire GPM2, sans qui cette thèse n'aurait pas vu le jour. Je les remercie également, ainsi que M. Michel PONS, actuel directeur du laboratoire SIMaP, pour leur accueil et les moyens mis à ma disposition pour la réalisation de ces travaux.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Paul CARRY, Professeur à l'UJF, et à Didier BOUVARD, Professeur à Grenoble INP, qui ont su encadrer cette thèse avec une grande disponibilité, un soutien constant, des conseils éclairés et un optimisme fou !!! Des qualités bien nécessaires pour tenir le cap durant ces trois années "d'exploration" du frittage micro-ondes. Les degrés à la fois d'humour et d'autodérision de chacun ont été des éléments importants durant ces trois années d'une collaboration fort agréable. Enfin, je veux rendre hommage à leur patience et leur important travail de relecture des derniers mois ... week-ends compris !

Pour leur lecture attentive et leur analyse critique de ce mémoire de thèse, ainsi que l'honneur qu'ils m'ont fait de prendre part à mon jury de thèse, je souhaite exprimer toute ma gratitude à Messieurs Patrice GOEURIOT, Guillaume BERNARD-GRANGER, Sylvain MARINEL, Lionel BONNEAU et Sébastien VAUCHER.

Un immense merci à toutes les personnes ayant partagé mon quotidien et ayant contribué de près ou de loin à ces travaux :

- l'assistance technique : Alain DOMEYNE, Gilles BOUTET, Jean-Louis CHEMIN, Jean-Jacques FRANCIOSI, Pierre CHOLAT, Rachel MARTIN et Charles JOSSEROND pour leur aide précieuse lors de la conception du four micro-ondes, la maintenance des équipements, les nombreux dépannages ou tout simplement pour leur salut amical et nos nombreux échanges.

- l'équipe du CMTC, et tout particulièrement Frédéric CHARLOT, Francine ROUSSEL et Stéphane COINDEAU pour m'avoir fait bénéficier de leur expertise en caractérisation, et surtout pour leur professionnalisme et leur grande gentillesse.

- Amélie MOREAU, stagiaire-ingénieur SIMaP/Schneider-Electric, pour avoir tenté, avec persévérance et parfois pertes et fracas (!), de chauffer par micro-ondes ses matériaux et pour avoir ainsi contribué à la mise au point du four ...

- Gabriela VILAS BOAS ORNELAS, étudiante PHELMA, pour son étude sur le frittage micro-ondes d'une poudre de ZnO.

- le groupe d'étudiants de PHELMA formé par Guillaume PERRIN, Florian LEBRUN et Charles MEURICHE pour leur contribution importante à l'instrumentation et à la régulation du four micro-ondes.

- les sympathiques et dévoués agents des services administratifs du laboratoire SIMaP, de l'école PHELMA (ex-ENSEEG) et de l'Ecole Doctorale I-MEP<sup>2</sup>, en particulier Nathalie LOMBARDO "qu'est-ce qu'on a pu rigoler en regardant la nomenclature de l'INPG... merci pour ton aide, ta disponibilité et ta gentillesse!", mais aussi Nadine THIEBLEMONT, Jacqueline CUOQ et Augustine ALESSIO pour leur amabilité... même lors des demandes urgentes!

- l'ensemble du personnel du laboratoire SIMaP, de l'école PHELMA (ex-ENSEEG) et du CIES.

- les équipes d'enseignants m'ayant accueilli avec sympathie, apporté d'utiles conseils et accompagné au cours de mon monitorat : Jean-Michel MISSIAEN (merci d'avoir accepté d'être mon tuteur et pour le temps que tu as passé à rédiger consciencieusement chaque rapport annuel pour le CIES...), Sandrine BRICE-PROFETA, Muriel VERON, Annie ANTONI-ZDZIOBEK, Bernard BONNET, Yves BRECHET, Luc SALVO, Michel DUPEUX, Kader ZAIDAT, Nicolas SERGENT, Richard BRESSOUX, Fabien VOLPI, Grégory BERTHOME, Alain DENOYELLE, Marian CHATENET, Karine GUILLY, Muriel MERENDA, Vincent FRISTOT, Patrice PETITCLAIR, etc ...

Et enfin les derniers mais pas les moindres, je pense à tous les collègues du SIMaP et d'ailleurs, ainsi qu'à la famille qui ont agrémenté cette tranche de vie d'une bonne dose de bonheur mais aussi d'encouragements me permettant de relever chacun de mes défis. Derrière les quelques portraits, rappels d'anecdotes ou traits de caractère se cache à chaque fois une personne que j'ai été très heureux de rencontrer et que je remercie avant tout chaleureusement pour son écoute, ses conseils et son soutien :

- les collègues du bureau 109 ou "l'équipe du 109" :

Mon copain Jean-Jo, "arrête de faire le scientifique mec, espèce de rigolo!", merci pour tes nombreux coups de mains, pour ton soutien tout au long de ces 3 années partagées, pour nos longues et enrichissantes discussions scientifiques et aussi non-scientifiques autour d'un café, d'un thé, d'une bière, d'une cigarette, d'un dilatomètre, d'un four micro-ondes, sur un télésiège, en haut de la piste des Roberts à se dire "trop bien, on y retourne ou pas?" et surtout pour les nombreuses et franches rigolades!

Mon ami turc, Emre, "un type inclassable, unique, un brin excentrique...", merci pour tout ce que tu as apporté avec toi de Turquie, et je ne parle pas uniquement des magnets d'Izmir, de ton drôle d'œil de bonne aventure, des loukoums et autres délices de Turquie. Tu t'es formidablement bien intégré parmi nous grâce à ta volonté, ta curiosité et une certaine jeunesse "t'inquiètes, tu ne fais pas ton âge vieux!". C'est également avec un immense bonheur que tu as été un compagnon de frittage mais aussi de voyage en Turquie, en Californie et au Maroc.

"Les Cocottes du 109 !" :

Lilie, Miss METEO, un sens de l'humour devenu, avec la force du temps, à toute épreuve! Même si j'ai dû pour cela essayer de nombreuses balles... Côté cuisine, tu partages le Fouet d'Or avec Val, dans la catégorie "Mais il est encore trop bon ce gâteau!", pour tes galettes des rois, tes fondants au chocolat et tes brownies et aussi ceux que tu faisais pour ce flémard de Jean-Jo, "T'achètes les ingrédients? Tiens, je te file ma CB avec le code."

Cécé, "la gentille Industrielle", un sens de l'humour très développé aussi, mais faut pas pousser quand même! Heureusement, avec toi je n'ai pas essayé de lancer de seringues! ;-) Je te décerne le Fouet d'Argent, dans la catégorie "Recettes Originales", pour tes gâteaux expérimentaux auxquels nous n'avons pas toujours pu échapper... Mais à qui va être décerné le Fouet d'Or ??? Suspens ...

Jean-Jo, Emre, Lilie et Cécé, c'était avec beaucoup de plaisir et de bonheur que j'ai partagé votre bureau et tous ces moments de notre dure mais surtout heureuse vie de thésard.

- Val, merci d'avoir dépassé ta première impression "Tu ne te rappelles pas? Ma tête de premier de la classe ?!" et d'avoir grandement facilité l'intégration des nouveaux grâce à tes qualités humaines, ton dynamisme, ta bonne humeur quotidienne, tes 1000 idées/s et ... bien entendu ton brin de folie !!!

- Oussama, Mouss, my friend, notre rayon de soleil venu de Tunisie, une gentillesse hors norme derrière un sourire énorme ! Au fait, on se donne rendez-vous avec nos bambins à l'arbre de Noël d'A&D??? :-)

- LE rugbyman : "Dans quel état, je vais encore retrouver mon Guilhem lundi matin...? - Aïe! Ouh... Ah ouai, ils t'ont bien amoché quand même là!" Guilhem, mon éclat de rire du lundi matin, tu vas me manquer!

- Coco, qui n'a pas encore fini de sourire en voyant revenir Guilhem de ces we-rugby... Plus de trois ans ont passé depuis notre très brève conversation pendant un cours de Master, et je te connais heureusement bien moins sauvage et plus bavarde aujourd'hui, grande timide! ;-p Ex-collègue SIMaP et future collègue ERAMET, pour quelques mois au moins et peut-être plus, c'est à toi que je décerne le fameux Fouet d'Or, dans la catégorie "Recettes Originales", pour tes terribles gâteaux "avec une recette au pif" que nous avons toujours mangés avec le sourire ... mais qui ont bien failli nous étouffer !!!! A part ça, je t'adore bien sûr! :-)

- le thésard (parfois oublié ...) du 3<sup>ème</sup> : BenJ, cette fois je ne t'oublierai pas !!! Quelques lignes rien que pour toi et pour m'excuser d'avoir oublié, quelques fois, de t'appeler pour aller manger ou pour le café du matin ... :-) Longue vie à toi JPOC !

- les post-docs (et caféinomanes ...) : en particulier, Sylvain et Gwenaël, et surtout les piliers (de la cafet'?) de l'année 2009, Ben, Seb et Jean-Phi pour leur sympathie, leurs nombreux encouragements et leurs précieux conseils dans la dernière ligne droite, merci les gars!

- les coureurs de fond d'entre 12h et 14h, adeptes de la formule "10 km-douche-sandwich-thé" ... et que certains surprenaient parfois piquer du nez sur leur clavier en début d'après-midi, ils se reconnaîtront...

- les randonneurs :

Yann, que d'années ont passées depuis le Lam', l'internat et les colles à Lalande! Toujours à relever les mêmes défis et malgré nos différents centres d'intérêt et parcours (physique/chimie, Ile de France/Auvergne, prof/ingénieur, UJF/Grenoble INP), notre chemin s'est recroisé avec bonheur dans les environs de Grenoble pour faire une thèse, un œil sur le Taillefer, l'autre sur les sommets de Belledonne !!! Et l'histoire semble recommencer, prof ou ingénieur entre Ile de France et Auvergne !!! Patience, un jour nous reviendrons! A nos nombreuses randonnées, accompagnés de quelques pétillantes blondes, brunes ... mais aussi blanches ou ambrées au fond du sac, sans oublier nos discussions qui nous ont parfois fait perdre le nord magnétique, particulièrement en Chartreuse !!!

Greg, Val "on en aura fait des km dans nos chères montagnes... et avec notre Turc sur le dos !!!"

Emre, les "french goats" ne t'ont pas toujours ménagé mais tu nous as épaté plus d'une fois par tes ressources physiques et mentales. Un sacré montagnard ce zèbre d'Anatolie!

Je pense aussi à Mouss qui n'oubliera pas sa première sortie en raquettes!

- les cyclistes/VTTistes : Greg, GuiGui & Steph, Ten & Nat, Nico & Flo, Lolo & Malika, Jen, Antoine, Ügür & Ahmad, Val & Freddy ... merci pour toutes ces belles sorties partagées autour de Grenoble, le lac de Paladru, en Pays Matheysin, dans le Verdon, en Turquie et en Allemagne.

- le club des métallurgistes passionnés : GuiGui, Nico, Ten, Ian, Lolo... A toutes nos savantes et enrichissantes discussions... dans l'incompréhension, la protestation puis la résignation de nos femmes et compagnes !!!

- les amateurs de raids multisports :

- la fabuleuse équipe des RAIDDOC de l'inoubliable (car abominable?) Raid INPG 2008 Céc, GuiGui, Ten & Nico et nos supportrices !!!

- la fine équipe MAILLONnaise (gros-MAILLON, MAILLON-futé, MAILLON-manquant, MAILLON-rapide et casse-MAILLON) des we rando-raids 2007/2008 de Chambéry et Nice, Nico & EstL, Seb, Alain & Pascale! Merci aussi à Daniel & Corinne pour l'accueil, la préparation mentale et le réconfort d'après course!

- les skieurs/snowboarders :

- JJR, toujours fidèle aux Roberts, je n'oublierai pas ton "j'ai tout lâché sur la fin!".

- Greg, même si ce n'est pas demain la veille que j'enverrai du plâtre comme toi, n'est pas Savoyard qui veut, c'était un plaisir de te suivre sur et en dehors des pistes même si j'ai parfois failli finir dans les arbres!

- Et tous les autres compagnons de glisse de part les Alpes, GuiGui & Steph, JJR & CIM, BenJ, Jean-Marie, Seb, Clairette, Coraly, Audrey, Christophe (freerider pro, impressionnant!) ainsi que Lolo & Isa, Nono & Prégou, Ion & Francky, Arnaud & Charline, Nico & EstL, Alice & Juju (Freerider de V'soull), Claire, à qui je dois beaucoup sur des skis, toi qui dis m'avoir tout appris (ou presque...), je ne l'oublierai jamais ... car tu me le rappelles si souvent !!! ;-p

- les grimpeurs :

Greg, M. le Professeur, merci pour ta patience et pour m'avoir fait partager tes connaissances de techniques de corde et d'escalade ainsi que ta passion de la montagne.

Merci aussi à Val, Tonio, Mike, Emre et Coco qui ont toujours bien tenu la corde quand j'ai lâché prise !!!

- les footballeurs et autres organisateurs des TdF 2007 et 2009 :

Respect aux "Aigles d'Acier", Béchir, Mouss, Ian, etc. Merci aux "Mouches d'Alu" de m'avoir invité dans leur équipe en 2007. Salutations à l'équipe PM/PMD 2009 "la prochaine fois, on s'entraîne les gars!".

- les voyageurs : Greg, mon compagnon de voyage en Turquie, Ügür, Ahmad et leurs amis stambouliotes, ainsi qu'Emre et Riza pour nous avoir accueilli si chaleureusement et pour nous avoir fait découvrir les richesses de leur pays ; enfin, la bande du "California Road Trip 2008", JJR, CIM, Emre et CIR, quel merveilleux voyage au son des Eagles "Welcome to the Hotel California" !!!

- à tous les autres qui ont partagé un premier bureau, une fondue savoyarde, un repas de Noël ou un repas au RU, une galette des rois, un café, une partie de tarot, une soirée crêpes, une sortie ski, un bowling, etc ... Anne, Stéphanie, Fabiola, François, Joris, Marion, Jean-Louis, Cécile ...

A ma famille, je pense bien sûr à mes grands-mères, et surtout mes parents et ma sœur, Christelle, merci de votre confiance et de votre amour, à chaque instant, je ne vous remercierai jamais assez ...

Enfin, à Claire qui, depuis près de 9 ans, partage ma vie, merci pour tes multiples remises en question qui m'ont fait avancer et grandir plus que renoncer et souffrir, merci de ton soutien et de ton écoute car si tu as toujours cru en moi, sache que je n'ai eu confiance en moi qu'à travers toi, jtaS

A notre Princesse ...



# SOMMAIRE

---

INTRODUCTION	p.15
--------------	------

---

CHAPITRE I	p.19
LE CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES	

---

I.A. ORIGINE DES MICRO-ONDES	p.20
<i>I.A.1. LES MICRO-ONDES DANS LE SPECTRE ELECTROMAGNETIQUE</i>	
<i>I.A.2. LES GENERATEURS D'HYPERFREQUENCES</i>	
I.B. PROPAGATION DES MICRO-ONDES	p.23
<i>I.B.1. LA PROPAGATION EN ESPACE LIBRE</i>	
<i>I.B.2. LA PROPAGATION EN GUIDE D'ONDE</i>	
<i>I.B.2.a. Structures permettant la propagation guidée</i>	
<i>I.B.2.b. Modes de propagation</i>	
<i>I.B.2.c. Solution générale de l'équation de propagation</i>	
<i>I.B.2.d. Conditions de propagation</i>	
<i>I.B.2.e. Configuration du champ électromagnétique pour le mode fondamental</i>	
<i>I.B.3. LA REFLEXION A LA SURFACE D'UN CONDUCTEUR</i>	
I.C. TRANSFERT DES MICRO-ONDES A LA MATIERE	p.37
<i>I.C.1. LES CAVITES ELECTROMAGNETIQUES</i>	
<i>I.C.2. LES CAVITES MULTIMODES</i>	
<i>I.C.3. LES CAVITES MONOMODES RESONANTES</i>	
I.D. PRINCIPE DU CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES :	
INTERACTIONS MICRO-ONDES / MATERIAU	p.41
<i>I.D.1. ASPECTS MACROSCOPIQUES</i>	
<i>I.D.2. POLARISATION &amp; PHENOMENE DE RELAXATION</i>	
<i>I.D.2.a. Polarisation</i>	
<i>I.D.2.b. Relaxation</i>	
<i>I.D.3. ASPECTS MICROSCOPIQUES</i>	
<i>I.D.3.a. Contributions du champ électrique</i>	
<i>I.D.3.b. Contributions du champ magnétique</i>	
<i>I.D.4. PUISSANCE DISSIPÉE &amp; PROFONDEUR DE PENETRATION</i>	
<i>I.D.4.a. Cas du champ électrique</i>	
<i>I.D.4.b. Cas du champ magnétique</i>	
I.E. SPECIFICITES DU CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES	p.58
<i>I.E.1. ASPECTS ENERGETIQUES</i>	
<i>I.E.2. TRANSFERTS THERMIQUES ET CHAMP DE TEMPERATURE</i>	

---

CHAPITRE II	p.63
DEVELOPPEMENT D'UNE CAVITE MICRO-ONDES MONOMODE RESONANTE INSTRUMENTEE	

---

II.A. CARACTERISTIQUES GENERALES DU FOUR MICRO-ONDES	p.64
<i>II.A.1. LA SOURCE ELECTROMAGNETIQUE</i>	
<i>II.A.1.a. Générateur haute tension et magnétron</i>	
<i>II.A.1.b. Antenne et bride de guide d'onde</i>	
<i>II.A.1.c. Circulateur + Charge adaptée = Isolateur</i>	
<i>II.A.2. LA CAVITE MONOMODE RESONANTE</i>	
<i>II.A.2.a. Guide d'onde et iris de couplage</i>	



<i>II.A.2.b. Cavité centrale</i>	
<i>II.A.2.c. Piston court-circuit mobile</i>	
<i>II.A.2.d. Modes de résonance possibles</i>	
<b>II.B. DEVELOPPEMENTS TECHNIQUES DE LA CAVITE</b>	<b>p.72</b>
<i>II.B.1. DETERMINATION DE LA TEMPERATURE DES MATERIAUX</i>	
<i>II.B.1.a. Mesures de la température dans une cavité micro-ondes ?</i>	
<i>II.B.1.b. Introduction à la thermographie</i>	
<i>II.B.1.c. Techniques de mesure thermographique</i>	
<i>II.B.1.d. Caractéristiques techniques principales</i>	
<i>II.B.2. ENVIRONNEMENT DE L'ECHANTILLON</i>	
<i>II.B.2.a. Atmosphère de frittage</i>	
<i>II.B.2.b. Positionnement de l'échantillon et du suscepteur</i>	
<i>II.B.2.c. Une seule cavité, plusieurs modes de chauffage</i>	
<i>II.B.2.d. Emplacement de la caméra IR</i>	
<b>II.C. INSTRUMENTATION</b>	<b>p.88</b>
<i>II.C.1. ACQUISITION DES DONNEES</i>	
<i>II.C.2. PROCEDURE DE REGULATION DU FOUR</i>	
<b>II.D. MODELISATION 3D PAR ELEMENTS FINIS DU FRITTAGE MICRO-ONDES DE ZIRCONES DANS UNE CAVITE MONOMODE</b>	<b>p.90</b>
<i>II.D.1. DESCRIPTION GENERALE</i>	
<i>II.D.1.a. La cavité monomode modèle</i>	
<i>II.D.1.b. Le code de calcul : COMSOL Multiphysics</i>	
<i>II.D.1.c. La résolution du calcul pas à pas</i>	
<i>II.D.1.d. Les paramètres du procédé et des matériaux</i>	
<i>II.D.2. RESULTATS DES CALCULS</i>	
<i>II.D.2.a. Perturbation du champ électrique par un diélectrique</i>	
<i>II.D.2.b. Distribution de température dans l'échantillon</i>	
<i>II.D.2.c. Distribution du champ électrique avec un suscepteur</i>	
<i>II.D.2.d. Perturbation du champ électrique par les cheminées, l'échantillon et son support</i>	
<i>II.D.3. CONCLUSIONS</i>	
<hr/>	
<b>CHAPITRE III</b>	<b>p.103</b>
<b>MATERIAUX ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES</b>	
-	
<b>MISE AU POINT D'UNE PROCEDURE DE PILOTAGE D'UN CYCLE THERMIQUE EN FRITTAGE MICRO-ONDES</b>	
<hr/>	
<b>III.A. MATERIAUX : ORIGINES, PROPRIETES, APPLICATIONS</b>	<b>p.104</b>
<i>III.A.1. ZIRCONES</i>	
<i>III.A.2. NICKEL</i>	
<b>III.B. CARACTERISATION DES POUDRES / DES MATERIAUX FRITES</b>	<b>p.110</b>
<i>III.B.1. LES POUDRES</i>	
<i>III.B.1.a. Zircones yttrées à 2% molaire - 2Y-TZP</i>	
<i>III.B.1.b. Nickel pur</i>	
<i>III.B.2. LES MATERIAUX FRITES</i>	
<i>III.B.2.a. Masse volumique géométrique</i>	
<i>III.B.2.b. Masse volumique par immersion</i>	
<i>III.B.3. CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE</i>	
<i>III.B.3.a. Techniques céramographiques et métallographiques</i>	
<i>III.B.3.b. Observations microstructurales</i>	
<i>III.B.3.c. Limite de l'attaque thermique</i>	
<b>III.C. MISE EN FORME DES POUDRES &amp; FRITTAGE</b>	<b>p.120</b>

<i>III.C.1. COMPACTION</i>	
<i>III.C.1.a. Compaction en matrice simple et double effet</i>	
<i>III.C.1.b. Compaction isostatique à froid</i>	
<i>III.C.2. DELIANTAGE</i>	
<i>III.C.3. PROCEDURE D'ETUDE DU FRITTAGE CONVENTIONNEL</i>	
<i>III.C.4. PROCEDURE D'ETUDE DU FRITTAGE MICRO-ONDES</i>	
<i>III.C.4.a. Détermination de la température par thermographie IR</i>	
<i>III.C.4.b. Paramètres contrôlant le chauffage</i>	
<i>III.C.4.c. Optimisation de la procédure de chauffage</i>	

---

CHAPITRE IV	p.141
ETUDE COMPARATIVE	
FRITTAGE MICRO-ONDES FRITTAGE CONVENTIONNEL	
D'UNE POUDRE CERAMIQUE - zircone yttrée	
ET D'UNE POUDRE METALLIQUE - nickel pur	

---

PREAMBULE	p.142
quelques rappels sur le frittage "naturel" en phase solide	

---

<b>A. LES FORCES MOTRICES DU FRITTAGE</b>	p.142
<i>A.1. LA FORCE MOTRICE GLOBALE</i>	
<i>A.2. LES FORCES MOTRICES LOCALES</i>	
<i>A.2.a. Contraintes exercées aux interfaces</i>	
<i>A.2.b. Contraintes exercées sur les lignes triples</i>	
<b>B. APPROCHE MICROSCOPIQUE DU FRITTAGE</b>	p.146
<i>B.1. STADE INITIAL : FORMATION ET CROISSANCE DES PONTS ENTRE PARTICULES</i>	
<i>B.2. STADE INTERMEDIAIRE : ELIMINATION DE LA POROSITE OUVERTE</i>	
<i>B.3. STADE FINALE : ELIMINATION DE LA POROSITE OUVERTE</i>	

---

PARTIE I	p.149
FRITTAGE D'UNE POUDRE CERAMIQUE : LA ZIRCONE YTTRIEE 2Y-TZP	

---

<b>IV-I.A. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	p.149
<i>IV-I.A.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL</i>	
<i>IV-I.A.2. LE FRITTAGE MICRO-ONDES</i>	
<i>IV-I.A.2.a. Dispositifs de chauffage dans des cavités multimodes</i>	
<i>IV-I.A.2.b. Dispositifs de chauffage dans des cavités monomodes</i>	
<i>IV-I.A.2.c. Les principaux résultats ...</i>	
<b>IV-I.B. FRITTAGE DE COMPRIMES DE ZIRCONE 2Y-TZP : RESULTATS</b>	p.161
<i>IV-I.B.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL</i>	
<i>IV-I.B.2. LE FRITTAGE MICRO-ONDES DIRECT</i>	
<i>IV-I.B.2.a. Analyse des essais</i>	
<i>IV-I.B.2.b. Observations microstructurales et densification</i>	
<i>IV-I.B.3. LE FRITTAGE MICRO-ONDES HYBRIDE</i>	
<i>IV-I.B.3.a. Analyse des essais</i>	
<i>IV-I.B.3.b. Observations microstructurales et densification</i>	
<b>IV-I.C. DISCUSSION</b>	p.173
<i>IV-I.C.1. EFFET DU CHAUFFAGE MICRO-ONDES SUR LA DENSIFICATION</i>	

<i>IV-I.C.2. EFFET DU CHAUFFAGE MICRO-ONDES SUR LA MICROSTRUCTURE</i>	
<b>IV-I.D. CONCLUSIONS</b>	p.179
<hr/>	
<b>PARTIE II</b>	p.181
<b>FRITTAGE D'UNE POUDRE METALLIQUE : LE NICKEL</b>	
<hr/>	
<b>IV-II.A. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	p.181
<i>IV-II.A.1. LE CHAUFFAGE DE METAUX PAR MICRO-ONDES : UNE HERESIE ?</i>	
<i>IV-II.A.2. MISE EN EVIDENCE DU CHAUFFAGE DE POUDRES METALLIQUES SOUS CHAMPS MAGNETIQUE ET ELECTRIQUE</i>	
<i>IV-II.A.3. ELABORATION PAR CHAUFFAGE MICRO-ONDES DE PIECES METALLIQUES FRITTEES</i>	
<i>IV-II.A.4. DES EFFETS SPECIFIQUES AUX MICRO-ONDES ?</i>	
<b>IV-II.B. FRITTAGE DE COMPRIMES DE NICKEL PUR : RESULTATS</b>	p.185
<i>IV-II.B.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL</i>	
<i>IV-II.B.2. LE CHAUFFAGE MICRO-ONDES SOUS CHAMP MAGNETIQUE</i>	
<i>IV-II.B.3. LE CHAUFFAGE MICRO-ONDES SOUS CHAMP ELECTRIQUE</i>	
<i>IV-II.B.4. OBSERVATIONS MICROSTRUCTURALES</i>	
<b>IV-II.C. CONCLUSIONS</b>	p.193
<hr/>	
<b>CONCLUSION GENERALE</b>	p.195
<hr/>	
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>	p.199
<hr/>	
<b>ANNEXE</b>	p.207
<hr/>	

## INTRODUCTION

Historiquement, la première application des hyperfréquences, appelées à l'époque ondes ultra-courtes, centi- ou décimétriques, date des années 1930 avec la mise au point d'un détecteur d'obstacles à l'origine pour le transport maritime. Pour l'anecdote, en 1935, le paquebot "Normandie" est le premier navire au monde à être équipé d'un tel dispositif permettant la détection d'icebergs et de bateaux à plusieurs kilomètres. Puis le déclenchement du second conflit mondial fut à l'origine d'efforts de guerre considérables dans le domaine des hyperfréquences, avec des applications militaires telles que la défense antiaérienne, pour aboutir à la technologie des détecteurs radar actuels. Dans les années d'après guerre, les recherches se sont poursuivies dans le domaine des télécommunications et se sont accompagnées du développement de générateurs et de détecteurs d'hyperfréquences toujours plus puissants, sans soupçonner que cette quête allait être à l'origine d'une découverte fortuite qui allait donner naissance à une nouvelle technique de chauffage ...

La petite histoire raconte que cette découverte a été faite dans les années 50 par des ingénieurs de l'entreprise américaine d'équipement militaire Raytheon Corp. qui travaillaient sur la conception de générateurs d'hyperfréquences plus performants pour améliorer la qualité des radars. Ces derniers constatèrent que les magnétrons permettaient de se réchauffer les doigts, avant que certains ne découvrent rapidement qu'il était aussi possible de réchauffer diverses denrées alimentaires. De ces travaux de recherche étaient nés non seulement le premier magnétron fonctionnant de manière continu mais aussi le chauffage par micro-ondes. Il faudra attendre quelques années avant que cette technologie soit transposée d'un point de vue technique et économique aux procédés de chauffage que l'on connaît aujourd'hui.

Depuis une soixantaine d'années, la technologie des hyperfréquences n'a cessé d'être étudiée et développée pour déboucher sur de nouvelles applications dans des secteurs aussi divers que la détection et les communications qui sont bien entendu les applications historiques, mais aussi sur les procédés de chauffage par micro-ondes utilisés pour les synthèses chimiques, l'agroalimentaire, le séchage du bois, la vulcanisation des élastomères, le secteur médical ... Mais ce sont surtout les années 80 qui ont marqué l'avènement et la démocratisation du chauffage micro-ondes avec l'apparition des fours micro-ondes de cuisine. Rapidité, simplicité et économie d'énergie ont fait le succès de cette technologie par rapport aux modes de cuisson traditionnels. L'énergie micro-ondes a largement investi les cuisines mais l'application de ce mode de chauffage aux procédés d'élaboration des matériaux a connu un essor moins spectaculaire.

L'intérêt pour le chauffage par micro-ondes dans l'industrie céramique remonte aux années 60, alors que les économies d'énergie et de temps étaient déjà une préoccupation importante, avec des applications basses températures comme le séchage ou la prise des ciments et des applications hautes températures comme le frittage, mais aussi la fusion d'oxydes réfractaires et même la clinkérisation [BER 76] [COL79].

Dès la fin des années 1980, de nombreux travaux ont montré que la plupart des poudres céramiques pouvaient être chauffées et même frittées par micro-ondes. Mieux, ce mode de chauffage original permettrait le développement de microstructures plus fines et plus uniformes [SUT89] [PAR91] [TIA91] [JAN92] [CLA96] que le frittage conventionnel. Il semble que les effets combinés d'une température de frittage basse et d'un temps de frittage court réduisent significativement les cinétiques de croissance des grains lors du frittage.

Par ailleurs, de nombreux auteurs [JAN92] [NIG96] [NIG97] [UPA01] [WAN06] [BIN 08] ont rapporté également une accélération apparente des cinétiques de densification à basse température, un phénomène qu'ils ont tenté d'attribuer à des effets "non thermiques" induits par le champ électromagnétique sur les phénomènes de transport de la matière. Ces résultats prometteurs ont été à l'origine d'un nouvel engouement des fritteurs pour le chauffage par micro-ondes. De multiples solutions technologiques ont alors été mises en œuvre avec différentes fréquences micro-ondes, des cavités multimodes ou monomode, des chauffages avec ou sans suscepteur, différentes géométries de suscepteurs, afin d'explorer toutes les potentialités de ce mode d'élaboration.

Cependant, la multitude de résultats parfois spectaculaires obtenus sur une grande variété de matériaux ne s'accompagna pas d'une aussi spectaculaire avancée de la compréhension des interactions entre le champ électromagnétique et les matériaux qui favoriseraient la densification et limiteraient la croissance des grains. La première raison est liée aux techniques de mesure de la température et leurs incertitudes, dues notamment aux spécificités du chauffage par micro-ondes (gradients thermiques inverses), qui ont souvent remis en cause l'ampleur des effets bénéfiques du chauffage micro-ondes. Ensuite, la comparaison directe entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel demeure controversée en raison des difficultés de maîtrise d'un cycle de frittage dans un four micro-ondes. Or, cette comparaison est une des clefs permettant une meilleure compréhension et évaluation des spécificités du chauffage micro-ondes dans le domaine des matériaux.

Enfin, la possibilité de chauffer et de fritter des poudres métalliques [ROY 99] [AGR 00] [CHE 01] [CHE 02] par chauffage micro-ondes constitue la nouveauté la plus surprenante dans ce domaine, car en principe les métaux massifs réfléchissent les micro-ondes. Ces

résultats ouvrent de nouveaux champs d'applications au frittage micro-ondes de poudres métalliques, bien que des efforts considérables restent à faire pour comprendre les mécanismes de chauffage.

Les travaux menés jusqu'à présent sur le frittage micro-ondes d'une multitude de matériaux laissent supposer des effets spécifiques et favorables du champ électromagnétique sur les cinétiques des mécanismes de densification. Néanmoins, une certaine perplexité vis-à-vis de ce procédé versatile demeure dans une partie de la communauté scientifique et chez les industriels essentiellement en raison du manque de connaissance et de compréhension de cette technique de chauffage. C'est pourquoi au laboratoire SIMAP nous nous sommes intéressés au frittage micro-ondes dans le but d'acquérir une compétence scientifique et technique sur ce type de frittage rapide.

La démarche adoptée consiste à réaliser dans un premier temps des expériences sur des matériaux et des géométries "modèles" avec un suivi à l'échelle macroscopique et à l'échelle microstructurale. Les matériaux choisis sont une poudre céramique de zirconium yttrée (2%mol) et une poudre métallique de nickel pur, deux poudres dont nous connaissons les cinétiques de densification et de développement microstructural en frittage conventionnel. Ensuite, des associations de ces deux matériaux sous forme de matériaux composites, multicouches ou à gradient peuvent être envisagées comme c'est le cas par exemple dans les piles à combustible ou les aubes de turbine. Ainsi, une bonne compréhension du frittage micro-ondes de ces matériaux pourra servir à l'avenir de base pour des études sur des systèmes de matériaux plus complexes tels que des cermets Ni/ZrO<sub>2</sub>.

Ce manuscrit est constitué de quatre chapitres dont voici le contenu :

Le chapitre I s'intéresse à la propagation des micro-ondes, de la source électromagnétique jusqu'aux cavités multimodes et monomodes. D'autre part, sont exposés les mécanismes de chauffage propres au chauffage par micro-ondes qui résultent des interactions entre les composantes électrique ou magnétique et les matériaux ainsi que ses spécificités thermiques.

Le chapitre II s'applique à décrire les caractéristiques de notre cavité monomode et des modes de résonance autorisés ainsi que les améliorations apportées à la conception de la cavité afin de disposer de plusieurs modes d'élaboration -frittage micro-ondes avec ou sans suscepteur et sous atmosphère contrôlée- et d'avoir un meilleur suivi de la température des échantillons en utilisant une caméra thermique IR. Par ailleurs, la présentation de résultats de la modélisation du frittage micro-ondes dans ce type de cavité apporte de nouveaux éléments pour la compréhension des interactions entre le champ électromagnétique et les matériaux (échantillons, suscepteur, supports).

Le chapitre III présente d'une part les caractéristiques des poudres, les techniques de mise en forme, de frittage et de caractérisations des matériaux frittés et d'autre part la mise au point et la justification d'un protocole original de pilotage en température du frittage micro-ondes dans une cavité monomode.

Le chapitre IV présente les résultats d'études comparatives entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel d'une poudre céramique (zircone yttrée 2Y-TZP) et d'une poudre métallique (nickel pur). Ces résultats sont analysés et interprétés en termes d'influence du champ électromagnétique sur les mécanismes de densification et de développement microstructural de ces matériaux.

## CHAPITRE I

### LE CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES



Dans ce chapitre consacré au chauffage par micro-ondes, nous allons tout d'abord nous intéresser à la propagation des micro-ondes, de la source électromagnétique jusqu'aux cavités multimodes et monomodes. Puis, nous exposerons les mécanismes de chauffage propres au chauffage par micro-ondes qui résultent des interactions entre les composantes électrique ou magnétique et les matériaux ainsi que ses spécificités thermiques.

## I.A. ORIGINE DES MICRO-ONDES

### I.A.1. LES MICRO-ONDES DANS LE SPECTRE ELECTROMAGNETIQUE

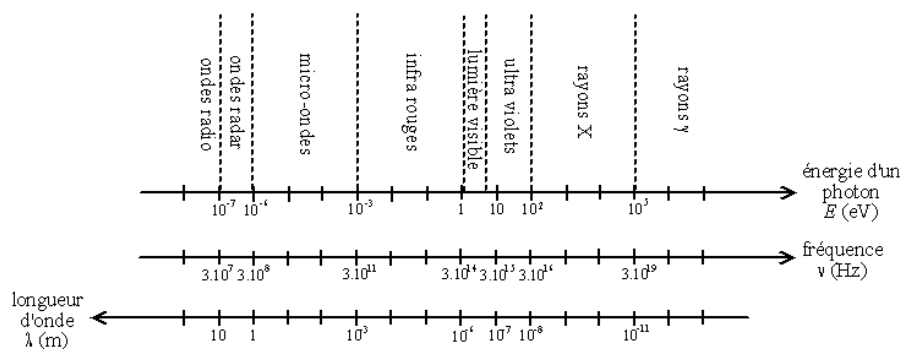
[COM 96]

Le spectre électromagnétique est la décomposition du rayonnement électromagnétique selon ses différentes composantes en termes de fréquence, d'énergie des photons ou encore de longueur d'onde associée. Ces trois grandeurs, fréquence ( $\nu$  ou  $f$ ), énergie ( $E$ ) ou longueur d'onde ( $\lambda$ ), sont liées deux à deux par la constante de Planck  $h$  et la vitesse de la lumière  $c$  :

$$E = h.\nu \quad \text{Equation 1}$$

$$c = \lambda.\nu \quad \text{Equation 2}$$

Ce spectre (Figure 1) est divisé arbitrairement en différents domaines, appelées bandes, identifiés par les méthodes utilisées pour produire ou détecter le rayonnement. Il n'existe aucune différence fondamentale entre le rayonnement des différentes bandes du spectre électromagnétique. Celui-ci s'étend des ondes radio aux rayons X et  $\gamma$ , en passant par la bande des micro-ondes, appelées aussi hyperfréquences.



**Figure 1 : Spectre électromagnétique**

Les micro-ondes sont des ondes électromagnétiques de longueurs d'onde intermédiaires entre l'infrarouge et les ondes de radiodiffusion. En termes de fréquence, ce domaine s'étend de 300 MHz à 300 GHz, soit des longueurs d'onde comprises entre 1 m et 1 mm. Contrairement à la lumière visible, exception faite des lasers, les micro-ondes sont des ondes cohérentes et polarisées, régies également par les lois de l'optique et pouvant être transmises, absorbées ou réfléchies selon le type de matériau rencontré.

Le domaine des micro-ondes peut être divisé en bandes par décades de fréquence :

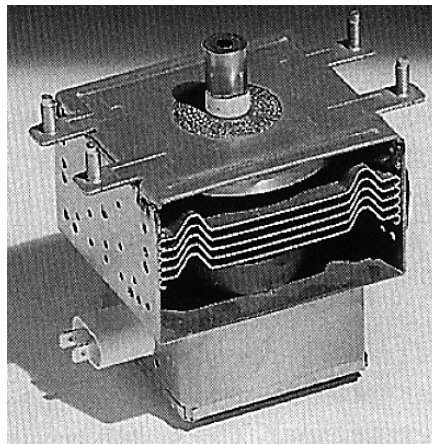
- de 0,3 à 3 GHz → UHF (Ultra-Hautes Fréquences – ondes décimétriques)
- de 3 à 30 GHz → SHF (Supra-Hautes Fréquences – ondes centimétriques)
- de 30 à 300 GHz → EHF (Extra-Hautes Fréquences – ondes millimétriques)

Les hyperfréquences sont gérées par des organismes internationaux de télécommunications (Federal Communications Commission). La plupart de ces fréquences sont en effet réservées pour les communications et les radars. Suivant les régions du monde, ces organismes attribuent cependant des domaines de fréquence pour des applications Industrielles, Scientifiques et Médicales (ISM). Par exemple, la bande 2400-2500 MHz a connu un essor considérable grâce à l'apparition du four micro-ondes domestique (2,45 GHz). Mais ce n'est pas la seule bande de fréquences pouvant être utilisée pour des applications de chauffage par micro-ondes. Ainsi quelques fours micro-ondes industriels fonctionnant à d'autres fréquences ont été développés : 915 MHz [KAT 92], 28 GHz [JAN 88], 30 GHz [SAN 00], 35 GHz [FLI 00], 60 GHz [MIY 97], 83 GHz [SAN 00]. Le choix d'une fréquence plutôt qu'une autre est basé essentiellement sur le coût et la dimension de la cavité, ainsi que sur des contraintes d'homogénéité du champ électromagnétique. Pour une cavité identique, le champ sera beaucoup plus homogène avec une fréquence plus élevée, mais ceci implique un surcoût important au niveau du générateur de micro-ondes.

### 1.A.2. LES GENERATEURS D'HYPERFREQUENCES

[HEL 01]

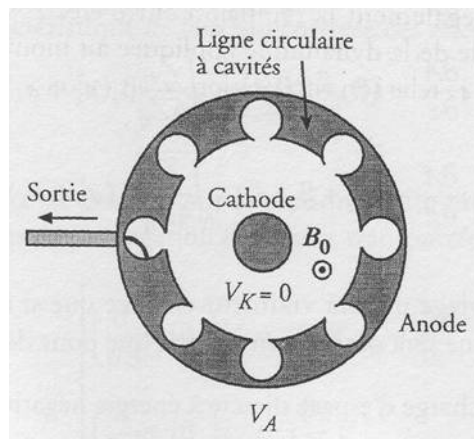
La génération d'hyperfréquences fait appel à des tubes spéciaux mettant en œuvre des résonateurs volumiques parmi lesquels le gyrotron et le magnétron. Le gyrotron trouve des applications dans des gammes de fréquences supérieures à 28 GHz. En-deçà de cette fréquence, on utilise un magnétron pour générer des micro-ondes avec des puissances de l'ordre de quelques kilowatts. Ainsi, pour la majorité des applications de chauffage par micro-ondes de matériaux avec une fréquence de travail de 2,45 GHz, et c'est aussi le cas de notre étude, le choix d'un magnétron s'impose. La Figure 2 représente un magnétron de four micro-ondes domestique.



**Figure 2 : Magnétron à 2,45 GHz de 1,2 kW**

Une description rapide du magnétron consisterait à dire que c'est un tube électronique (tron) baigné dans un champ magnétique (magn), d'où son nom... Pour être plus précis, il appartient au type des tubes à champs croisés qui mettent en œuvre un champ électrique et un champ magnétique statiques et orthogonaux.

Le magnétron est conçu pour auto-osciller à une fréquence choisie (2,45 GHz dans notre cas). Ce tube oscillateur à ligne résonante circulaire s'apparente à une diode sous vide de construction coaxiale illustrée sur la Figure 3.



**Figure 3 : Représentation d'un magnétron à 8 cavités [HEL 01]**

La ligne résonante circulaire est généralement constituée de 8, 10 ou 12 petits circuits oscillants couplés en parallèles (cavités creusées dans l'anode). Le fonctionnement du magnétron repose sur le couplage d'une harmonique d'espace (mode) transportée par la ligne circulaire et périodique avec une onde de charge d'espace transportée par les électrons créés dans le tube.

Au centre du tube, une cathode, chauffée indirectement ou directement (dans le cas où le filament est la cathode) par un filament de tungstène qui est parcouru par un courant,

émet des électrons. L'anode, portée à un potentiel positif, attire les électrons émis par la cathode. Or, le champ magnétique qui est parallèle à l'axe du cylindre, et donc perpendiculaire au champ électrique radial, donne aux électrons une trajectoire parabolique dans un plan de section droite. Ce mouvement des électrons dans l'espace d'interaction est donc contrôlé par la différence de potentiel de plusieurs kV entre la cathode et l'anode et par le champ magnétique créé par des aimants permanents ou des électro-aimants (tubes à champs croisés). Les électrons qui tangent les cavités de l'anode sont accélérés ou ralentis par la présence de ces cavités disposées de manière périodique, et les paquets d'électrons ainsi formés entraînent leur oscillation : il y a auto-oscillation.

Ce parcours des électrons se fait à une fréquence liée à la géométrie et à la périodicité des cavités creusées dans l'anode. La charge d'espace ainsi créée oscille entre anode et cathode, et le contrôle de la tension permet l'émission d'une onde à puissance et fréquence fixes. Une antenne de couplage permet d'émettre un rayonnement électromagnétique (micro-ondes) à partir de l'oscillation des charges (courants électriques) : l'énergie électrique est convertie en énergie électromagnétique. Cette antenne, entourée d'une céramique pour le maintien du vide, est plongée dans un guide d'ondes, via une transition magnétron/guide dont les dimensions sont imposées par le constructeur. La puissance micro-onde est ainsi disponible sur une bride de guide d'ondes à la sortie de cette transition.

## I.B. PROPAGATION DES MICRO-ONDES

### I.B.1. LA PROPAGATION EN ESPACE LIBRE

[GAR 87] [BRE 97]

Avant d'aborder la propagation des micro-ondes dans les guides d'ondes, rappelons dans un premier temps les équations de Maxwell qui lient le champ électromagnétique ( $\vec{E}, \vec{B}$ ) aux sources, c'est-à-dire les charges électriques ( $\rho$ ) et les densités de courants ( $\vec{J}$ ) dans le cas général.

$$\text{loi de Maxwell-flux : } \operatorname{div} \vec{B} = 0$$

Équation 3

$$\text{loi de Maxwell-Gauss : } \operatorname{div} \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0}$$

Équation 4

$$\text{loi de Maxwell-Faraday : } \operatorname{rot} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad \text{Équation 5}$$

$$\text{loi de Maxwell-Ampère : } \operatorname{rot} \vec{B} = \mu_0 \vec{J} + \varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad \text{Équation 6}$$

avec les grandeurs caractéristiques suivantes :

- grandeurs électriques :

$\vec{E}$ , le champ électrique ( $V.m^{-1}$ )

$\varepsilon_0 = \frac{1}{36\pi} \cdot 10^{-9}$ , la permittivité diélectrique du vide ( $F.m^{-1}$ )

$\vec{D}$ , l'induction électrique ( $C.m^{-2}$ ) définie telle que :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E} \quad \text{Équation 7}$$

$\rho$ , la densité volumique de charges électriques ( $C.m^{-3}$ )

$\sigma$ , la conductivité du milieu ( $\Omega^{-1}.m^{-1}$ )

- grandeurs magnétiques :

$\vec{H}$ , le champ magnétique ou excitation magnétique ( $A.m^{-1}$ )

$\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$ , la perméabilité magnétique du vide ( $H.m^{-1}$ )

$\vec{B}$ , l'induction magnétique ( $T$ ) définie telle que :

$$\vec{B} = \mu_0 \cdot \vec{H} \quad \text{Équation 8}$$

$\vec{J}$ , la densité volumique de courant ( $A.m^{-3}$ )

Les équations Maxwell-Flux, assurant la conservation du flux magnétique, et Maxwell-Faraday, traduisant le phénomène d'induction, sont indépendantes des charges et des courants électriques, sources du champ. Les équations Maxwell-Gauss et Maxwell-Ampère lient le champ électromagnétique à ses sources.

Dans le vide, charges et courants sont nuls, les flux des champs électrique et magnétique sont conservatifs :

$$\operatorname{div} \vec{B} = 0 \quad \text{Équation 9}$$

$$\operatorname{div} \vec{E} = 0 \quad \text{Équation 10}$$

D'autre part les évolutions spatiales et temporelles des champs électrique et magnétique sont liées par les équations couplées :

$$r\vec{\text{rot}}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t} \quad \text{Équation 11}$$

$$r\vec{\text{rot}}\vec{B} = \varepsilon_0\mu_0 \frac{\partial\vec{E}}{\partial t} \quad \text{Équation 12}$$

Ce couplage des évolutions spatiale et temporelle des champs est analogue à celui de la tension et du courant dans une ligne électrique, de la force et de la vitesse dans une corde vibrante, ou de la surpression et de la vitesse dans un fluide. Ce couplage est à l'origine du phénomène de propagation des signaux électromagnétiques, qui peut se faire dans le vide, c'est-à-dire en l'absence de support matériel pour la propagation. Toujours dans le vide, cette propagation est décrite par l'équation de D'Alembert :

$$\Delta\vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2\vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad \text{Équation 13}$$

$$\Delta\vec{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2\vec{B}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad \text{Équation 14}$$

où  $c$  est la vitesse caractéristique de cette propagation définie telle que :

$$c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0\mu_0}} \quad \text{Équation 15}$$

Dans tout autre milieu que le vide, la permittivité  $\varepsilon$  et la perméabilité  $\mu$  sont supérieures aux valeurs  $\varepsilon_0$  et  $\mu_0$  du vide. Néanmoins les relations valables dans le vide peuvent être étendues à un milieu diélectrique, isolant ( $\vec{J} = \vec{0}$ ) et non chargé ( $\rho = 0$ ), linéaire homogène isotrope, dont on néglige les propriétés magnétiques, comme l'air par exemple.

Dans le cas le plus général, les ondes électromagnétiques peuvent se propager dans les trois directions de l'espace : c'est la propagation libre. Cependant, à une distance suffisante de son émetteur, une onde électromagnétique peut être assimilée à une onde plane. Une onde est dite plane si, à un instant donné, la grandeur caractérisant l'onde qui se propage est la même en tous les points d'un plan perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde. Une onde plane progressive (OPP) est une onde plane qui se propage dans une direction et un sens bien déterminés. Ces quelques définitions

permettent de caractériser le champ électromagnétique. En effet, si on cherche un champ électromagnétique :

(i) satisfaisant aux équations de propagation sous la forme d'une onde plane progressive (OPP) selon une direction parallèle à l'axe (Oz) définie par le vecteur unitaire  $\vec{u}$  et

(ii) vérifiant les équations de Maxwell,

alors ce champ électromagnétique est transverse :

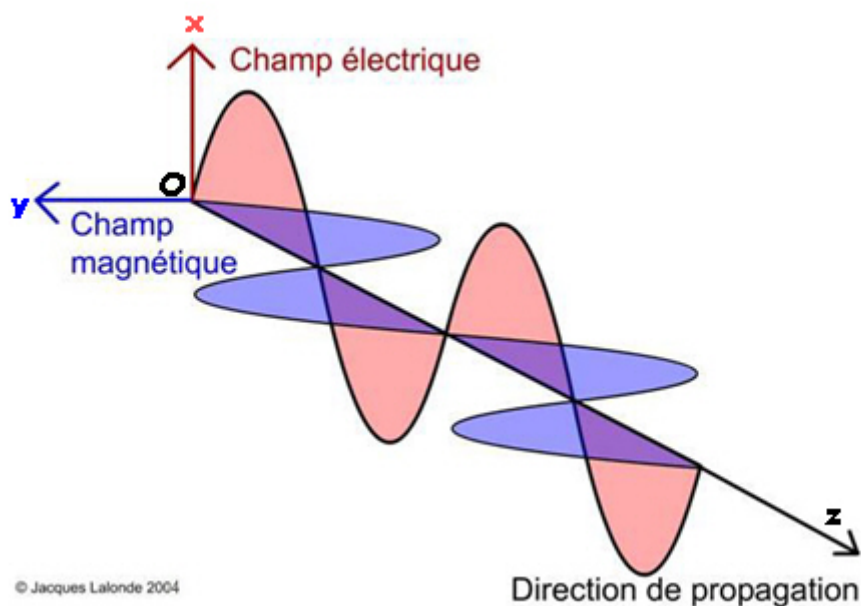
$$\vec{u} \cdot \vec{E} = 0 \quad \text{Équation 16}$$

$$\vec{u} \cdot \vec{B} = 0 \quad \text{Équation 17}$$

Par ailleurs le champ magnétique est lié au champ électrique de l'onde par la relation de structure :

$$\vec{B} = \frac{\vec{u} \wedge \vec{E}}{c} \Leftrightarrow \vec{E} = -c \cdot \vec{u} \wedge \vec{B} \quad \text{Équation 18}$$

On en déduit que les champs électrique  $\vec{E}$  et magnétique  $\vec{B}$  sont perpendiculaires entre eux et à la direction de propagation : le trièdre  $(\vec{E}, \vec{B}, \vec{u})$  est trirectangle et direct. Cette onde électromagnétique, représentée sur la Figure 4, est aussi appelée onde TEM (Transverse Electric-Magnétique).



**Figure 4 : Propagation en espace libre d'une onde plane progressive électromagnétique**

Dans le cas des micro-ondes, les ondes électromagnétiques sont également de forme sinusoïdale et pour une fréquence fixe (2,45 GHz par exemple), cela correspond à un cas particulier d'OPP dite monochromatique. L'amplitude d'une onde plane progressive monochromatique (OPPM) se propageant dans une direction parallèle à l'axe (Oz) dans le sens des z croissants peut se noter en notation complexe sous la forme :

$$\underline{\psi}(x,t) = \psi_0 e^{j(\omega t - kz + \phi_0)} \quad \text{Équation 19}$$

Elle est caractérisée par sa pulsation  $\omega$  ( $rad.s^{-1}$ ) et son vecteur d'onde  $\vec{k} = k\vec{u}$  ( $m^{-1}$ ).

Elle possède deux périodes :

- une période temporelle :

$$T = \frac{2\pi}{\omega} \quad \text{Équation 20}$$

- une période spatiale, autrement dit la longueur d'onde :

$$\lambda = \frac{2\pi}{k} \quad \text{Équation 21}$$

Sa vitesse de propagation est égale à la vitesse de propagation de sa phase :

$$V_\phi = \frac{\omega}{k} \quad \text{Équation 22}$$

Ainsi, dans le cas particulier de notre OPPM électromagnétique, on peut écrire le champ électrique en notation complexe sous la forme :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{j(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{u})} \quad \text{Équation 23}$$

Par ailleurs, le champ magnétique d'une OPPM électromagnétique est lié au champ électrique par la relation de structure :

$$\vec{B} = \frac{\vec{k} \wedge \vec{E}}{\omega} \quad \text{Équation 24}$$

Enfin, l'équation de propagation impose une relation, qui lie  $\omega$  et  $k$ , appelée relation de dispersion :

$$k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} = \omega^2 \cdot \epsilon_0 \cdot \mu_0 \quad (\text{dans le vide}) \quad \text{Équation 25}$$



Le trièdre  $(\vec{E}, \vec{B}, \vec{k})$  d'une OPPM dans le vide est donc aussi trirectangle et direct. Cette relation est applicable aussi dans les milieux matériels à condition que les ondes soient planes, progressives et monochromatiques.

Dans le vide et à la fréquence de 2,45 GHz, l'onde électromagnétique a une période temporelle de  $4,08 \cdot 10^{-10}$  s et une longueur d'onde de 122,36 mm.

### I.B.2. LA PROPAGATION EN GUIDE D'ONDE

[COL 79] [COM 96] [GAR 97]

#### I.B.2.a. Structures permettant la propagation guidée

Il existe un grand nombre de structures, appelées lignes (bifilaires, coaxiales, à bandes, à fentes ou fibres optiques) ou guides d'ondes (diélectriques ou métalliques), qui permettent la propagation guidée de signaux électromagnétiques. Ainsi, les guides d'ondes sont aux cavités ce que les lignes de transmission sont aux télécommunications et aux circuits électroniques.

Pour des fréquences micro-ondes comprises entre 1 et 90 GHz, la propagation des ondes se fait dans des guides d'ondes pour lesquels les dimensions transversales (section) sont de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde. Ces guides d'ondes sont des tuyaux métalliques, de section cylindrique ou rectangulaire remplis en général par de l'air. Les parois conductrices engendrent des réflexions multiples de l'onde qui imposent une certaine distribution des champs à l'intérieur du guide et des courants de conduction à la surface de ses parois. Leurs pertes sont très faibles car l'air, dont les propriétés isolantes sont remarquables, est utilisé comme diélectrique et que les parois conductrices causent de très faibles pertes par effet Joule.

#### I.B.2.b. Modes de propagation

Dans un guide d'onde, suite aux réflexions multiples sur les parois, la propagation d'une onde peut se faire selon deux modes fondamentaux de polarisation :

- le mode TE (Transverse Electrique) : le champ électrique est perpendiculaire à la direction de propagation et le champ magnétique se trouve alors dans le plan perpendiculaire au champ électrique.

- le mode TM (Transverse Magnétique) : le champ magnétique est perpendiculaire à la direction de propagation et le champ électrique se trouve alors dans le plan perpendiculaire au champ magnétique.

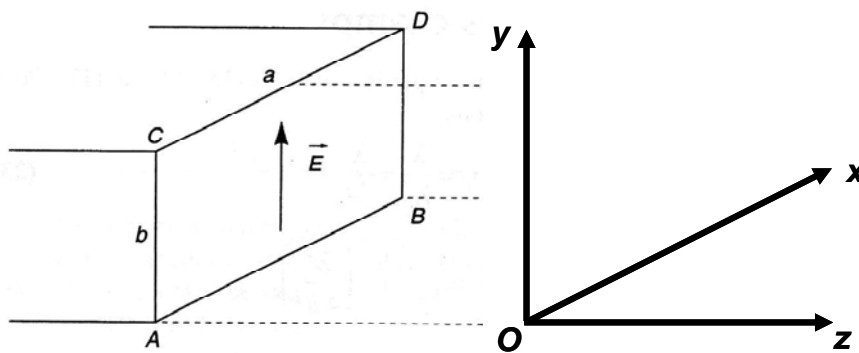
Ainsi, tout régime peut être considéré comme la superposition de deux ondes :

- une onde TE (onde H) : onde plane dont le champ  $\vec{E}$  est perpendiculaire à la direction de propagation et pour laquelle  $\underline{E}_z = 0$  ; le champ  $\vec{H}$  est alors dans le plan perpendiculaire au champ  $\vec{E}$  et  $\underline{H}_z \neq 0$ .

- une onde TM (onde E) : onde plane dont le champ  $\vec{H}$  est perpendiculaire à la direction de propagation et pour laquelle  $\underline{H}_z = 0$  ; le champ  $\vec{E}$  est alors dans le plan perpendiculaire au champ  $\vec{H}$  et  $\underline{E}_z \neq 0$ .

1.B.2.c. Solution générale de l'équation de propagation

Bien qu'il existe de nombreux autres types de guides d'ondes, notre étude se restreindra à la propagation d'une onde électromagnétique dans les guides d'ondes métalliques de section rectangulaire. Cette propagation est possible si le champ électrique de l'onde incidente est parallèle aux faces sur lesquelles cette onde va se réfléchir successivement. On exclura l'étude des modes de propagation des ondes TM pour s'intéresser aux modes de propagation de type Transverse Electric (Figure 5).



**Figure 5 : Section ABCD d'un guide d'onde rectangulaire [COM 96]**

a désigne le grand côté de la section selon (Ox)

b désigne le petit côté de la section selon (Oy)

(Oz) est la direction de propagation

Pour les ondes TE, la fonction génératrice  $\underline{H}_z$  est déterminée à partir de l'équation de propagation de la composante longitudinale (parallèle à (Oz)) :

$$\Delta_t \underline{H}_z + k_c^2 \underline{H}_z = 0$$

Équation 26

en tenant compte de la condition imposée à  $H_z$  sur les parois métalliques du guide :

$$\partial H_z / \partial n = 0 \quad \text{Équation 27}$$

$k_c$  est appelée constante de propagation à la coupure et est définie Equation 33.

Les parois du guide étant parallèles à la direction de propagation (Oz), cette condition se démontre à partir de  $\text{rot} \vec{H} = j\omega\epsilon \vec{E}$  en tenant compte de  $E_T = 0$  ( $E_T = \vec{E} \cdot \vec{x}$ ) et  $H_N = 0$  ( $H_N = \vec{H} \cdot \vec{y}$ ).

L'équation de propagation sur  $H_z$  n'admet de solutions que pour une suite de valeurs discrètes de  $k_c$ , appelées valeurs propres. Les ondes correspondant à ces valeurs de  $k_c$  sont appelées "modes de propagation". En effet, le calcul de la solution générale de la propagation en guide d'ondes rectangulaires se ramène à la détermination des modes TE (ou TM) pouvant exister dans ce guide. Ainsi, la fonction génératrice solution de l'équation de propagation guidée que l'on obtient est :

$$\underline{H}_z(x, y) = H_0 \cos\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cos\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \quad \text{Équation 28}$$

On peut ainsi obtenir par simplification des équations de Maxwell les composantes transversales du champ des ondes TE :

$$\underline{E}_x(x, y) = H_0 \frac{j\omega\mu}{k_c^2} \cdot \frac{n\pi}{b} \cdot \cos\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cdot \sin\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \quad \text{Équation 29}$$

$$\underline{E}_y(x, z) = -H_0 \frac{j\omega\mu}{k_c^2} \cdot \frac{m\pi}{a} \cdot \sin\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cdot \cos\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \quad \text{Équation 30}$$

$$\underline{H}_x(x, y) = H_0 \frac{\gamma}{k_c^2} \cdot \frac{m\pi}{a} \cdot \sin\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cdot \cos\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \quad \text{Équation 31}$$

$$\underline{H}_y(x, y) = H_0 \frac{\gamma}{k_c^2} \cdot \frac{n\pi}{b} \cdot \cos\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cdot \sin\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \quad \text{Équation 32}$$

avec m et n, deux entiers naturels arbitraires ( $m, n \in \mathbb{N}$ ).

Il existe une valeur propre de  $(k_c)_{mn}$  pour chaque paire d'entiers naturels (m,n) tel que :

$$(k_c)_{mn} = \frac{2\pi}{(\lambda_c)_{mn}} = \sqrt{\left(\frac{m\pi}{a}\right)^2 + \left(\frac{n\pi}{b}\right)^2} \quad \text{Équation 33}$$

et à chacune de ces valeurs propres correspond une solution particulière pour les champs électrique et magnétique.

### 1.B.2.d. Conditions de propagation

On peut définir le paramètre de propagation complexe par la relation :

$$\gamma = \sqrt{k_c^2 - \omega^2 \varepsilon \mu} \quad \text{Équation 34}$$

Dans cette relation, pour un milieu diélectrique comme l'air dont les pertes sont négligeables  $\omega^2 \varepsilon \mu$  est (réel) positif et dans le type de guide d'onde considéré,  $k_c^2$  est positif. On définit la fréquence  $f$ , telle que  $f = \frac{\omega}{2\pi}$

Trois cas sont alors possibles :

$$\text{- si } k_c^2 > \omega^2 \varepsilon \mu \Leftrightarrow f < \frac{k_c}{2\pi\sqrt{\varepsilon\mu}}, \text{ alors } \gamma^2 > 0 \Rightarrow \gamma = \alpha \text{ est réel.}$$

Par conséquent, l'onde TE est de la forme :

$$\underline{h}_z = \underline{H}_z(x, y)e^{-\alpha z} e^{j\omega t} \quad \text{Équation 35}$$

C'est une onde dont l'amplitude diminue exponentiellement : elle est dite évanescente, il n'y a pas de propagation.

$$\text{- si } k_c^2 < \omega^2 \varepsilon \mu \Leftrightarrow f > \frac{k_c}{2\pi\sqrt{\varepsilon\mu}}, \text{ alors } \gamma^2 < 0 \Rightarrow \gamma = j\beta \text{ est imaginaire.}$$

Par conséquent, l'onde TE est de la forme :

$$\underline{h}_z = \underline{H}_z(x, y)e^{j(\omega t - \beta z)} \quad \text{Équation 36}$$

Cette expression caractérise une onde qui se propage sans atténuation le long de l'axe (Oz) si on néglige les pertes dans le diélectrique et les pertes ohmiques dans les parois du guide.

N.B. : Lorsqu'il y a transmission de l'onde et propagation dans un matériau avec pertes diélectriques (ou magnétiques), il faut représenter le phénomène par un paramètre de propagation complexe  $\gamma = \alpha + j\beta$  car  $\varepsilon$  (ou  $\mu$ ) est complexe et il faut aussi multiplier par un terme en  $e^{-\alpha z}$  l'expression de  $\underline{h}_z$ .

On peut définir la vitesse de phase de l'onde par :

$$V_p = \frac{\omega}{\beta} \quad \text{Équation 37}$$

et la longueur d'onde guidée par :

$$\lambda_g = \frac{2\pi}{\beta} \quad \text{Équation 38}$$

- si  $k_c^2 = \omega^2 \varepsilon \mu \Leftrightarrow f = \frac{k_c}{2\pi \sqrt{\varepsilon \mu}} = f_c$ , alors  $f_c$  apparaît comme une valeur limite, dite fréquence de coupure, entre un régime où il n'y a pas propagation et un régime où il y a propagation. La longueur d'onde associée  $\lambda_c$  est appelée longueur d'onde de coupure. Le calcul de  $\lambda_c$  ne fait intervenir que  $k_c$ , valeur propre de l'équation de propagation dans le guide.  $k_c$  ainsi que  $\lambda_c$  ne dépendent que de la géométrie et des dimensions du guide d'onde étudié et sont indépendantes du diélectrique contenu dans le guide :

$$(\lambda_c)_{mn} = \frac{2\pi}{k_c} = \frac{2}{\sqrt{\left(\frac{m}{a}\right)^2 + \left(\frac{n}{b}\right)^2}} \quad \text{Équation 39}$$

Finalement, la relation  $k_c^2 = \omega^2 \varepsilon \mu - \beta^2$ , peut s'écrire :

$$\left(\frac{2\pi}{\lambda_c}\right)^2 = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^2 - \left(\frac{2\pi}{\lambda_g}\right)^2 \quad \text{Équation 40}$$

d'où la relation fondamentale de la propagation guidée :

$$\left(\frac{1}{\lambda}\right)^2 = \left(\frac{1}{\lambda_c}\right)^2 + \left(\frac{1}{\lambda_g}\right)^2 \quad \text{Équation 41}$$

*1.B.2.e. Configuration du champ électromagnétique pour le mode fondamental*

On appelle mode fondamental, le mode ayant la longueur d'onde de coupure la plus grande. Ainsi, pour les modes TE<sub>mn</sub> en guide d'onde rectangulaire, le mode fondamental est le mode TE<sub>10</sub> qui se propage avec un champ électrique polarisé verticalement. La longueur d'onde de coupure de ce mode est  $(\lambda_c)_{10} = 2a$ .

Le mode fondamental est particulièrement intéressant car il peut être excité seul contrairement aux modes d'ordre supérieur. Cette répartition monomodale des champs permet de contrôler la configuration spatiale des composantes électrique et magnétique ainsi que la répartition d'énergie dans le guide d'ondes.

$$\underline{E}_x = 0 \quad \text{Équation 42}$$

$$\underline{E}_y = jE \sin\left(\frac{\pi x}{a}\right) \cdot e^{-jk_g z} \quad \text{Équation 43}$$

$$\underline{E}_z = 0 \quad \text{Équation 44}$$

$$\underline{H}_x = jH \frac{\lambda}{\lambda_g} \sin\left(\frac{\pi x}{a}\right) \cdot e^{-jk_g z} \quad \text{Équation 45}$$

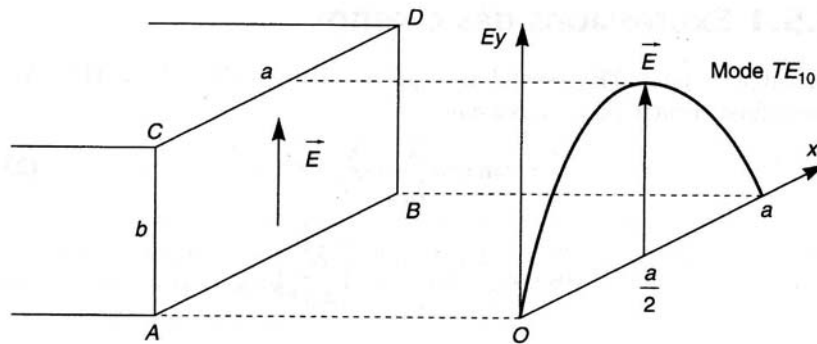
$$\underline{H}_y = 0 \quad \text{Équation 46}$$

$$\underline{H}_z = -H \frac{\lambda}{\lambda_c} \cos\left(\frac{\pi x}{a}\right) \cdot e^{-jk_g z} \quad \text{Équation 47}$$

Le champ magnétique, qui a deux composantes orthogonales et déphasées de 90°, est à polarisation elliptique dans un plan perpendiculaire à la direction du champ électrique. Dans un plan de section transversale du guide, tel que ABCD, le champ électrique reste parallèle aux côtés AC et BD puisqu'il n'a qu'une composante  $E_y$ . L'expression de la valeur efficace du champ électrique est :

$$(E_y)_{eff} = \frac{E_y}{\sqrt{2}} = \frac{E}{\sqrt{2}} \left| \sin \frac{\pi x}{a} \right| \quad \text{Équation 48}$$

Cette valeur est indépendante de  $y$ . De plus, comme  $0 \leq x \leq a$ , le profil de  $E$  sur la section est une demi-sinusoïde avec minima nuls pour  $x = 0$  et  $x = a$  et maximum pour  $x = a/2$ . C'est la coupe transversale du champ  $\vec{E}$  caractéristique du mode fondamental (Figure 6).



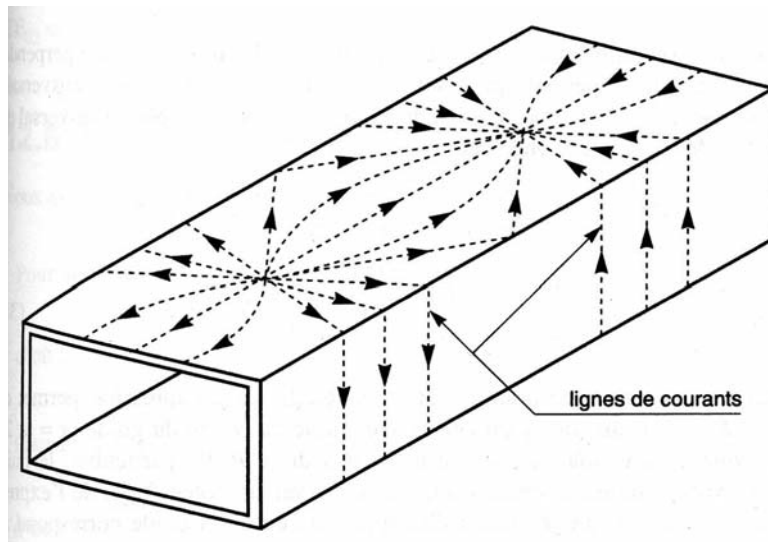
**Figure 6 : Variation transversale de  $E_y$  pour le mode fondamental  $TE_{10}$  [COM 96]**

Les lignes de courant sur les faces du guide d'ondes se calculent à partir de l'expression de la densité surfacique de courant électrique :

$$\vec{J}_s = \vec{n} \wedge \vec{H} \quad \text{Équation 49}$$

où  $\vec{n}$  est la normale à une face du guide et  $\vec{H} = \vec{H}_x + \vec{H}_z$ .

Leur répartition sur les faces du guide est représentée sur la Figure 7 dans laquelle le côté  $a//Ox$  est placé horizontalement tandis que le côté  $b//Oy$  est vertical. Ces lignes sont verticales sur les faces latérales et parallèles à l'axe des  $z$  uniquement au milieu des faces inférieure et supérieure. On ne peut donc usiner des fentes dans le guide que selon ces deux directions sans en perturber gravement le fonctionnement (rayonnement hors du guide).



**Figure 7 : Lignes de courants sur les faces d'un guide rectangulaire [COM 96]**

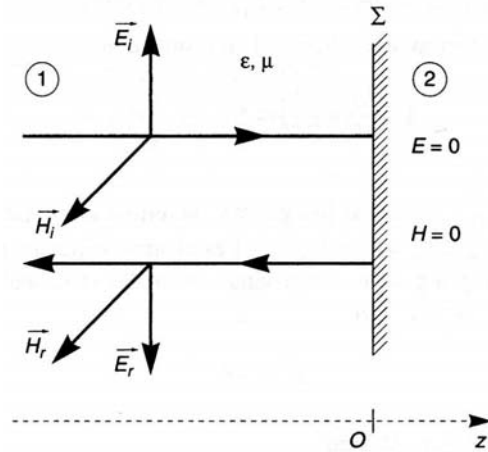
I.B.3. LA REFLEXION A LA SURFACE D'UN CONDUCTEUR  
[COM 96]

Après avoir étudié la propagation guidée d'une onde électromagnétique, il est intéressant de présenter le cas de la réflexion d'une onde électromagnétique sous incidence normale à la surface d'un conducteur parfait (Figure 8). Le résultat de cette réflexion permet de comprendre la formation des ondes stationnaires, notamment dans les cavités monomodes lorsqu'il y a réflexion sur la surface conductrice d'un piston court-circuit (cf. I.C.3.) placée perpendiculairement à la direction de propagation de l'onde.

Le milieu (1) est un diélectrique caractérisé par  $\varepsilon$  et  $\mu$ . Le milieu (2) est un conducteur parfait à l'intérieur duquel le champ électromagnétique est nul.  $\Sigma$  est l'interface entre ces deux milieux. L'onde plane incidente  $(\vec{E}_i, \vec{H}_i)$  se propage selon (Oz) dans une direction normale au plan  $\Sigma$  et donne naissance à une onde plane réfléchie  $(\vec{E}_r, \vec{H}_r)$  qui se propage perpendiculairement à cette même surface. Le trièdre formé par les vecteurs  $(\vec{E}_i, \vec{H}_i, \vec{z})$  ainsi que celui formé par les vecteurs  $(\vec{E}_r, \vec{H}_r, -\vec{z})$  doivent être directs.  $(\vec{E}_i, \vec{H}_i)$  et  $(\vec{E}_r, \vec{H}_r)$  sont aussi liés par les conditions aux limites à l'interface diélectrique-conducteur imposées par le plan conducteur  $\Sigma$  :

- (i) la composante tangentielle du champ électrique est nulle :  $E_T = 0$  ;
- (ii) la composante normale du champ magnétique est nulle :  $H_N = 0$ .





**Figure 8. Orientation des composantes du champ électromagnétique incident (i) et réfléchi (r) avant et après réflexion sur une paroi conductrice sous incidence normale [COM 96]**

Ainsi,

$$\vec{E}_i + \vec{E}_r = \vec{0} \Leftrightarrow \vec{E}_r = -\vec{E}_i \quad \text{Équation 50}$$

et

$$\vec{H}_r = \vec{H}_i \quad \text{Équation 51}$$

L'état électromagnétique en un point d'abscisse  $z$  du diélectrique résulte de la superposition des champs de l'onde incidente et de l'onde réfléchie :

$$\vec{e}(z, t) = -2j\vec{E}_i \sin(kz)e^{j\omega t} = 2\vec{E}_i \cos(kz - \frac{\pi}{2})e^{j(\omega t - \frac{\pi}{2})} \quad \text{Équation 52}$$

$$\vec{h}(z, t) = 2\vec{H}_i \cos(kz)e^{j\omega t} \quad \text{Équation 53}$$

Les champs électrique et magnétique sont constamment en quadrature dans le temps et dans l'espace. Il existe donc dans le milieu diélectrique un régime d'ondes stationnaires :

- dans le plan  $\Sigma$  ( $z=0$ ) et dans tous les plans situés à  $p \cdot \frac{\lambda}{2}$  de  $\Sigma$ ,  $p \in \mathbb{N}$ , le champ

électrique est nul (nœud de  $\vec{E}$ ) et l'amplitude du champ magnétique est maximale (ventre de  $\vec{H}$ ) ;

- dans tous les plans situés à  $(2p + 1) \frac{\lambda}{4}$ , l'amplitude du champ électrique est maximale

(ventre de  $\vec{E}$ ) et l'amplitude du champ magnétique est nul (nœud de  $\vec{H}$ ).

## I.C. TRANSFERT DES MICRO-ONDES A LA MATIERE

### I.C.1. LES CAVITES ELECTROMAGNETIQUES

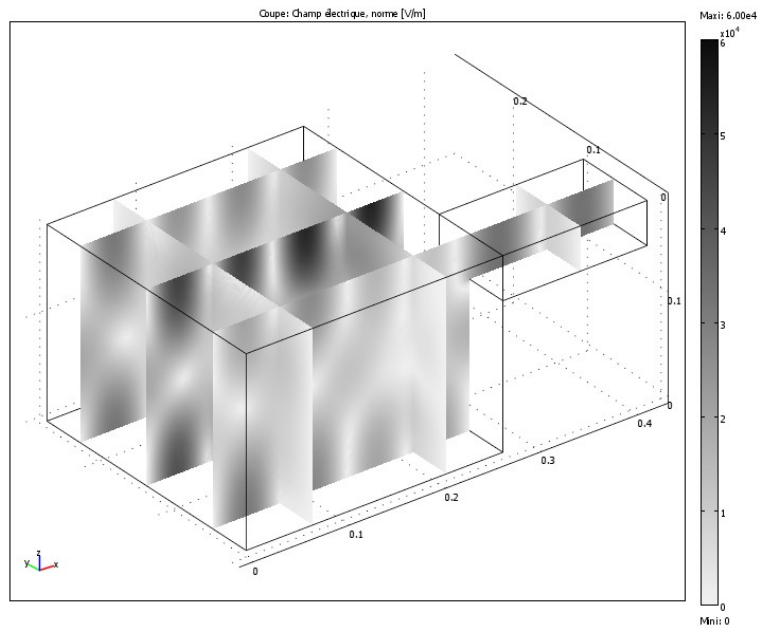
Une cavité électromagnétique, ou applicateur, est un volume vide ou rempli d'un diélectrique, limité par des parois de type électrique (interface avec un conducteur) ou de type magnétique (interface avec un diélectrique à haute permittivité). Dans le premier cas, il s'agit d'une cavité métallique et dans le second cas d'un résonateur diélectrique. Les cavités ont généralement une forme cylindrique à section rectangulaire ou circulaire. Les cavités métalliques peuvent ainsi être obtenues en fermant des guides d'ondes rectangulaires ou circulaires par des plaques métalliques perpendiculaires à l'axe longitudinal du guide.

L'applicateur doit permettre un transfert efficace de l'énergie électromagnétique émise par le générateur et transportée via le guide d'onde vers le matériau à chauffer. La conception et le choix du type d'applicateurs dépendent :

- (i) du matériau à chauffer : nature, propriétés, géométrie, volume
- (ii) des caractéristiques de l'onde : fréquence et puissance

### I.C.2. LES CAVITES MULTIMODES

L'exemple le plus largement répandu de cavité multimode est le four micro-ondes domestique fonctionnant à 2,45 GHz. Une cavité multimode est une enceinte métallique fermée, typiquement d'un volume de quelques litres. Un guide d'onde transmet les micro-ondes générées par le magnétron jusqu'à la cavité. Les dimensions de cette cavité sont très supérieures à celles du guide d'onde, et par conséquent à la longueur d'onde de travail. Lors de leur entrée dans la cavité, les ondes passent alors d'une propagation guidée à une propagation libre : les ondes se propagent dans toutes les directions de l'espace jusqu'à leur réflexion contre les parois métalliques. Ces réflexions multiples des micro-ondes sur les parois de la cavité conduisent à la superposition d'ondes incidentes et réfléchies et à la formation d'ondes stationnaires. Ceci rend la configuration spatiale du champ électromagnétique complexe car il y a coexistence de différents modes de propagation, d'où le terme de multimode. La Figure 9 est le résultat de la modélisation de la distribution du champ électromagnétique à l'intérieur d'une cavité que nous avons obtenu par un calcul en éléments finis avec le logiciel COMSOL Multiphysics. On peut remarquer que la distribution du champ électrique est inhomogène à l'échelle de la cavité, avec la présence de zones de forte (zones sombres) ou de faible (zones claires) amplitude du champ électrique.



**Figure 9 : Modélisation de l'amplitude du champ électrique (V/m) en régime permanent pour une puissance incidente de 500 W dans une cavité multimode**

Le volume et le positionnement des pièces à chauffer deviennent alors critiques car l'uniformité et l'efficacité du chauffage vont dépendre de leur localisation par rapport au champ électromagnétique. Pour pallier cet inconvénient, on peut utiliser soit un brasseur électromagnétique (hélice métallique tournante) permettant d'homogénéiser "statistiquement" le champ électromagnétique dans l'espace de la cavité, soit un système faisant tourner les pièces à chauffer pour permettre d'homogénéiser "temporellement" l'énergie absorbée par les matériaux, soit les deux systèmes simultanément. Finalement, ce type de cavité est très répandu car il présente l'avantage de pouvoir recevoir des pièces d'assez grandes dimensions.

### 1.C.3. LES CAVITES MONOMODES RESONANTES

[GAR 87] [COM 96]

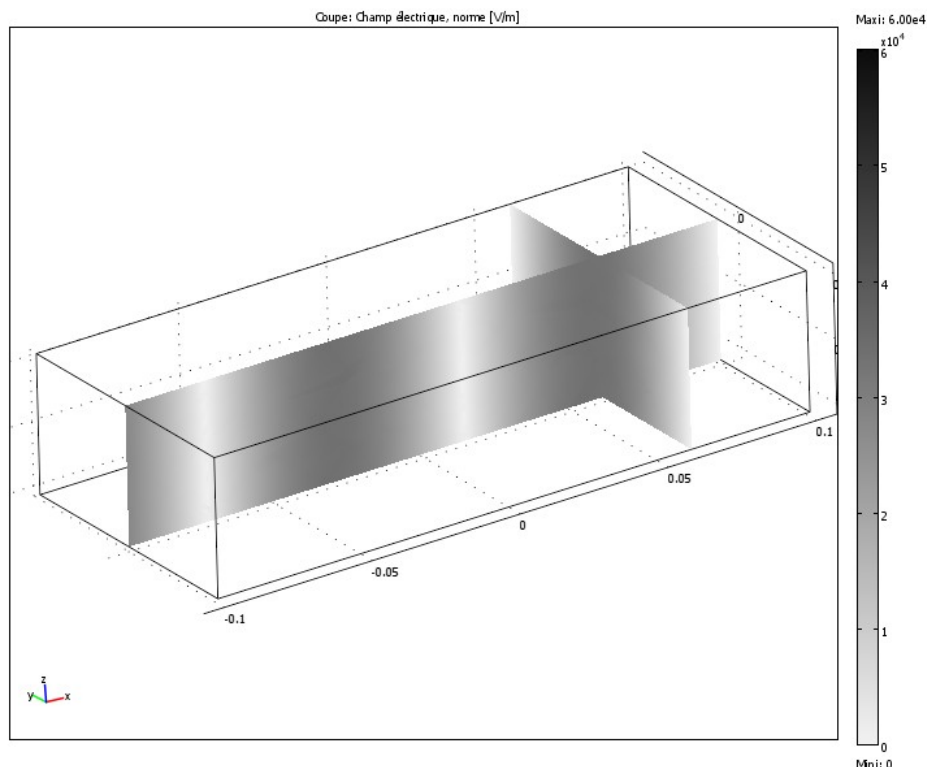
Dans le cas où les dimensions des pièces à chauffer sont plus petites, on pourra utiliser une cavité monomode résonante. Par sa conception, une cavité monomode est un volume diélectrique délimité par des surfaces conductrices qui ne permet qu'un seul mode de propagation du champ électromagnétique. Un mode correspond à une configuration de type  $TE_{mn}$  ou  $TM_{mn}$  comme cela est le cas pour les guides d'ondes. D'autre part, les modes de résonance possibles sont appelés modes propres et notés  $TE_{mnp}$  (ou  $TM_{mnp}$ ). Les indices  $m$  et  $n$  dépendent de l'ordre du mode TE (ou TM) considéré tandis que l'indice  $p$  détermine la longueur de la cavité pour le mode de résonance. Si la

fréquence  $f$ , c'est-à-dire  $\lambda_g$ , est imposée, la distance entre les deux plaques de court-circuit doit être telle que :

$$z = p \cdot \frac{\lambda_g}{2} \quad \text{Equation 54}$$

Ainsi, à chaque valeur des entiers (mnp) correspond une configuration spatiale des champs. Autrement dit, connaissant m, n et p, la configuration du champ est parfaitement déterminée et ceci est le principal intérêt de ce type de cavité.

Dans une cavité parfaite, on suppose qu'il n'y a pas de pertes dues à des charges ou à des courants de surface. Dans ce cas, si la cavité est fermée à une extrémité par une paroi conductrice perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde incidente, l'onde incidente se réfléchit sur cette paroi et donne naissance à une onde réfléchie. La superposition des ondes incidente et réfléchie donne naissance à une onde stationnaire où les positions des maxima du champ électrique sont parfaitement déterminées et distantes de  $\lambda_g/2$  (cf. I.B.3.). La Figure 10 montre la configuration du champ électrique résultant de cette superposition de l'onde incidente et de l'onde réfléchie pour le mode  $TE_{10p}$ .



**Figure 10 : Modélisation de l'amplitude du champ électrique (V/m) en régime permanent pour une puissance incidente de 500 W dans une cavité monomode (non résonante)**

On peut remarquer que le champ électrique est indépendant de la hauteur de la cavité. De plus, à ces maxima du champ électrique correspondent des minima du champ magnétique. Ainsi un maximum du champ électrique est distant de  $\lambda_g/4$  d'un maximum du champ magnétique. Cette séparation des extrema des champs électrique et magnétique est le principal intérêt d'une cavité monomode.

Par ailleurs, si on suppose maintenant que cette cavité est fermée à l'autre extrémité par une paroi conductrice, réfléchissante et laissant entrer l'onde incidente dans la cavité, telle que la distance entre les deux parois est égale à  $p \cdot \frac{\lambda_g}{2}$ , l'amplitude de l'onde stationnaire augmente théoriquement jusqu'à l'infini : c'est la résonance. L'énergie incidente est totalement emmagasinée ou "piégée" dans la cavité. L'amplitude du champ dans la cavité devient alors très supérieure au champ d'excitation. Ceci constitue la caractéristique d'une cavité résonante. Le phénomène de résonance n'a pas pu être mis en évidence dans la cavité monomode représentée sur la Figure 10 car il n'est pas possible de modéliser le comportement de l'iris. Ainsi, la simulation numérique donne le résultat d'une seule superposition de l'onde incidente et de l'onde réfléchie. Dans les calculs, l'augmentation de l'amplitude du champ s'obtient par une augmentation de la puissance de l'onde incidente, et non par un phénomène de résonance dans la cavité.

Dans la pratique, une cavité monomode et résonante est un applicateur non parfait. Premièrement, les parois conductrices de l'applicateur sont constituées d'un métal conducteur non parfait, ce qui engendre des pertes ohmiques. Ensuite, la cavité est fermée à une extrémité par une paroi conductrice réfléchissante appelée piston court-circuit et est reliée côté magnétron au guide d'ondes par l'intermédiaire d'éléments de couplage comme un iris ou des vis plongeantes. Ces liaisons entre le guide d'ondes, la cavité et le piston court-circuit mais aussi les ouvertures dans la cavité permettant l'introduction des échantillons sont à l'origine d'un autre type de pertes appelées pertes par rayonnement. Enfin, les pertes diélectriques (environnement à l'intérieur de la cavité), négligeables quand la cavité est remplie d'air, ne le sont plus lorsqu'on introduit des diélectriques dans l'applicateur (tube en quartz, porte-échantillon, suscepteur, matériau à chauffer, etc...).

Toutes ces différentes pertes dans l'applicateur conduisent à un déplacement de la fréquence de résonance et se traduisent par une petite variation de la longueur d'onde guidée  $\lambda_g$ . Ainsi, l'iris placé dans le guide d'onde réfléchit, au moins partiellement, les ondes réfléchies sur le piston par la cavité lorsque la longueur de la cavité  $L$  est égale à

$L \approx \frac{p \cdot \lambda_g}{2}$ . En régime permanent et à causes des différentes pertes, les réflexions multiples entre le piston et l'iris se traduisent par une augmentation finie de l'amplitude de l'onde stationnaire. Néanmoins les niveaux des champs peuvent être très supérieurs aux champs d'excitation contrairement aux champs dans une cavité multimode, qui eux restent du même ordre de grandeur. Cette caractéristique des cavités monomodes résonantes permet le transfert d'énergie nécessaire pour le traitement de petits échantillons.

## I.D. PRINCIPE DU CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES :

### INTERACTIONS MICRO-ONDES / MATERIAU

#### I.D.1. ASPECTS MACROSCOPIQUES

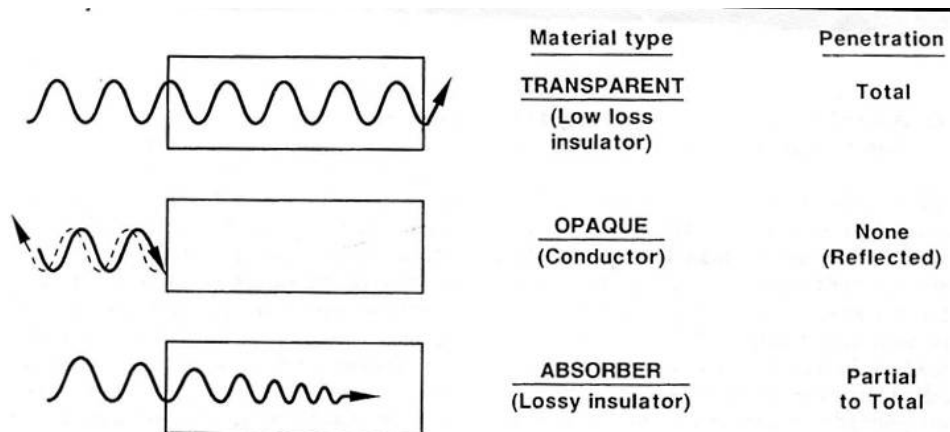
[SUT 89]

La rencontre des micro-ondes et de la matière peut donner lieu à différents types d'interactions, comme le montre la Figure 11 :

(i) l'onde traverse le matériau sans perdre d'énergie : elle est donc intégralement transmise et le matériau est dit transparent ; on parle aussi de matériau à faibles pertes diélectriques/magnétiques. C'est le cas d'une large gamme de matériaux céramiques diélectriques (isolant électrique) tels qu' $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{SiO}_2$  et de la majorité des verres minéraux. Ces matériaux sont pour la plupart transparents aux micro-ondes à température ambiante. Cependant, au-dessus de certaines températures critiques, ces matériaux se mettent à absorber et à coupler efficacement avec les micro-ondes (cf. cas (iii)) ;

(ii) l'onde ne pénètre pas dans le matériau : l'onde est alors réfléchi et le matériau est dit opaque. C'est le cas des matériaux conducteurs et massifs (métaux) ;

(iii) l'onde est absorbée par le matériau : la quantité d'énergie absorbée dépend alors des facteurs de pertes diélectriques et magnétiques et des propriétés de conduction. Ces matériaux à fortes pertes diélectriques/magnétiques sont dits absorbants. C'est le cas d'oxydes tels que  $\text{ZnO}$ ,  $\text{CuO}$ ,  $\text{NiO}$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{Co}_2\text{O}_3$  et d'autres céramiques au-dessus d'une certaine température.



**Figure 11 : Interactions des micro-ondes avec la matière [SUT 89]**

Ce dernier cas est le seul conduisant à un chauffage direct par micro-ondes.

### I.D.2. POLARISATION & PHENOMENE DE RELAXATION

[PIL 93] [THO 99]

#### I.D.2.a. Polarisation

Lorsqu'une perturbation est appliquée à un système en équilibre thermodynamique, le système s'éloigne de ses conditions initiales d'équilibre. Pour un champ électrique par exemple, le matériau se polarise ; si la perturbation est un champ magnétique, le système peut s'aimanter. La réponse à une perturbation de type électrique est un déplacement de charges par différents mécanismes dépendant de la nature du milieu diélectrique et de la fréquence du champ électrique. Dans le cas du chauffage par hyperfréquences (300 MHz à 300 GHz), on distingue alors quatre types de polarisation en fonction de la fréquence:

- la polarisation de charge d'espace ou polarisation Maxwell-Wagner. Cette polarisation est due à des déplacements de charges (électrons de conduction) sur de courtes distances, sous l'action d'un champ électrique. Ces charges vont être arrêtées avant de s'accumuler au niveau de barrières interfaciales. Cette séparation de charges conduit à la polarisation de zones entières du milieu et induit des dipôles dans l'ensemble du matériau.

- la polarisation par orientation dipolaire concerne particulièrement le domaine des micro-ondes. Un cycle d'orientation-réorientation des dipôles existant est engendré par un champ électrique alternatif selon une période égale à celle du champ extérieur. La réorientation des dipôles n'est pas toujours instantanée et peut-être gênée par des chocs interatomiques dus aux mouvements de rotation et de translation des dipôles.

- les polarisations atomique et ionique se produisent dans un domaine de fréquences plus élevées (de 0,3 à 400 THz). Au sein de la même molécule, le champ électrique est à l'origine du déplacement des noyaux atomiques les uns par rapport aux autres. Une absorption importante se produit chaque fois que la fréquence du champ électrique est égale à une fréquence propre associée à une transition possible entre deux états roto-vibrationnels de la molécule : c'est le principe de la spectrométrie d'absorption infrarouge. Dans les solides ioniques, certains modes de vibration du réseau cristallin jouent également un rôle important.

- la polarisation électronique est due au déplacement et à la déformation du nuage électronique (principe de la spectrométrie UV). La masse des électrons étant très faible, les effets d'inertie ne se manifestent que sous l'action de champs électriques de très hautes fréquences ( $10^{14}$  à  $10^{18}$  Hz). Cette déformation des nuages électroniques autour des noyaux atomiques entraîne le décentrage des atomes, induisant ainsi un moment dipolaire atomique.

Si cette perturbation est supprimée, le système revient à son état initial après un certain temps. Autrement dit, dans le cas d'une perturbation électrique, la polarisation décroît jusqu'à s'annuler. On dit qu'il y a relaxation du système.

### 1.D.2.b. Relaxation

La relaxation diélectrique est caractérisée par le temps de relaxation  $\tau$ , temps nécessaire pour que la polarisation atteigne  $e^{-1}$  (soit 36,8%) de sa valeur maximale. Quand des entités moléculaires sont soumises à un champ alternatif, les phénomènes d'absorption diélectrique donnent lieu à des mouvements de rotation et de translation pour des temps compris entre  $10^{-12}$  et  $10^{-9}$  seconde. Le maximum d'absorption d'énergie se situant à des fréquences de l'ordre de l'inverse du temps de relaxation diélectrique, ces fréquences de relaxation se trouvent dans le domaine des hyperfréquences.

La propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu diélectrique correspond à un transfert d'énergie avec un maximum d'absorption se situant aux environs de la fréquence de relaxation diélectrique. La matière peut donc s'échauffer selon différents processus de pertes dépendant de la fréquence d'excitation. Par ailleurs, l'épaisseur de matière qui va s'échauffer (profondeur de pénétration) dépend de cette fréquence (mais aussi des caractéristiques intrinsèques du matériau) : plus la fréquence est basse (longueurs d'ondes grandes), plus l'épaisseur "d'échauffement" est grande.

Il existe un nombre élevé de mécanismes, parfois encore mal connus, permettant au matériau de convertir l'énergie électromagnétique en chaleur ; des descriptions à l'échelle microscopique sont données dans la suite en distinguant les interactions du matériau avec le champ électrique de celles avec le champ magnétique.



### I.D.3. ASPECTS MICROSCOPIQUES

[PIL 93] [THO 99]

#### I.D.3.a. Contributions du champ électrique

Lorsqu'un champ électromagnétique pénètre et se propage dans un matériau diélectrique, il donne lieu à un champ électrique interne qui induit dans le volume affecté des mouvements de rotation de dipôles et de translation des charges liées (électrons de valence, ions) et aussi, dans le cas d'un diélectrique non parfait, des mouvements des charges libres (électrons de conduction). La résistance à ces mouvements induits, due à des forces d'inertie, élastiques et de frottements, engendre des pertes et une atténuation du champ électrique. Ainsi, deux phénomènes sont à l'origine des pertes dans un diélectrique non parfait soumis à un champ électrique alternatif :

- la polarisation diélectrique provoquée par le déplacement simultané de charges liées positives et négatives ;
- la conduction électrique due au déplacement de charges libres de même signe.

Ces pertes diélectriques conduisent au chauffage volumique du matériau par effet Joule.

N.B. : La plupart des oxydes céramiques –exception faite des ferrites– ont des pertes magnétiques quasiment nulles dans le domaine des micro-ondes. L'absorption magnétique de ces matériaux ne contribue pas au chauffage par micro-ondes.

#### **(i) La polarisation diélectrique**

Les pertes par polarisation diélectrique font partie des phénomènes à l'origine de l'échauffement d'un diélectrique. En effet, même si dans un isolant électrique le courant ne peut pas circuler, les charges électriques dites liées sont susceptibles :

- de vibrer (translation) et de s'orienter (rotation) : ce phénomène est appelé polarisation par orientation dipolaire ;
- de se déplacer sur de courtes distances : on parle dans ce cas de conduction statique.

Un milieu est dit polarisé si, dans un élément de volume donné, le barycentre des charges positives et celui des charges négatives ne correspondent pas géométriquement, ce qui forme un dipôle caractérisé par son moment diélectrique. Cette polarisation peut être soit permanente ou soit induite. La polarisation est permanente lorsque les barycentres des charges positives et négatives ne correspondent pas en l'absence d'un champ électrique, comme par exemple le BaTiO<sub>3</sub> en phase quadratique ou encore la molécule d'eau. Dans ce cas, le milieu est dit polaire et possède des dipôles permanents. La polarisation est induite lorsqu'il faut appliquer un champ électrique pour que les barycentres des charges positives et négatives se séparent.

Ainsi, à l'échelle microscopique, on peut définir un vecteur moment dipolaire électrique  $\vec{p}$  entre deux charges électriques +q et -q :

$$\vec{p} = q \cdot \vec{l} \quad (C.m) \quad \text{Équation 55}$$

A l'échelle macroscopique, si on applique un champ électrique  $\vec{E}$  à un milieu diélectrique constitué de N dipôles par m<sup>3</sup>, ces dipôles s'orientent parallèlement au champ électrique et provoquent la polarisation macroscopique  $\vec{P}$  :

$$\vec{P} = \sum_{i=1}^N \vec{p}_i \quad \text{Équation 56}$$

Dans le cas particulier où une seule espèce de dipôles avec un moment dipolaire  $\vec{p}$  est présente, la polarisation du milieu s'écrit simplement :

$$\vec{P} = N \cdot \vec{p} \quad (C.m^{-2}) \quad \text{Équation 57}$$

La polarisation d'un milieu est caractérisée par sa constante diélectrique. Pour de nombreux milieux diélectriques, la relation générale entre vecteur polarisation et vecteur champ électrique est décrite par une expression linéaire de la forme :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \hat{\chi}_e \cdot \vec{E} \quad \text{Équation 58}$$

$\varepsilon_0$  : permittivité diélectrique du vide

$\hat{\chi}_e$  : tenseur de susceptibilité électrique du milieu

Pour des milieux diélectriques isotropes et homogènes, la polarisation est parallèle au champ électrique et la susceptibilité électrique devient un scalaire :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi_e \cdot \vec{E} \quad \text{Équation 59}$$

## (ii) La conduction électrique

Le second phénomène à l'origine de l'échauffement d'un diélectrique non parfait soumis à un champ électrique alternatif est dû à sa conductivité électrique donc au déplacement

de charges libres. La résistivité  $\rho$ , grandeur caractéristique du matériau inverse de la conductivité  $\sigma = 1/\rho$ , est à l'origine d'une valeur de résistance R, propriété du matériau à s'opposer au passage du courant.

$$R = \rho \cdot \frac{l}{s} = \frac{l}{\sigma \cdot s} \quad \text{Équation 60}$$

$\rho$ , résistivité en  $\Omega \cdot m$

$l$ , longueur en m

$s$ , section en  $m^2$

$\sigma$ , conductivité en  $\Omega^{-1} \cdot m^{-1}$

Ce phénomène est à l'origine d'une dissipation d'énergie sous forme de chaleur dans le matériau : c'est l'effet Joule. L'importance des pertes par conduction lors du chauffage par micro-ondes a été démontrée par les expériences de McGill & al. qui ont étudié le chauffage micro-ondes d'une grande variété de poudres métalliques, de matériaux inorganiques et de divers minéraux. Ces auteurs observent que seuls les sulfures semi-conducteurs et les oxydes de valence mixte ont pu être chauffés à plus de 1000°C en quelques minutes. Ce résultat est expliqué par les différentes valeurs de conductivité électrique de ces matériaux. En effet, les semi-conducteurs et les oxydes de valence mixte semblent présenter des valeurs de résistivité optimales pour le chauffage par micro-ondes ( $10^{-5}$ - $10^{-2} \Omega \cdot m$ ), contrairement aux autres oxydes céramiques ( $SiO_2$ ,  $Al_2O_3$ ,  $KAlSi_3O_8$ ,  $CaCO_3$ ) isolantes ( $10^4$ - $10^{14} \Omega \cdot m$ ) et aux poudres métalliques (Al, Co, Cu, Fe, Mg, Mo) conductrices ( $10^{-6}$ - $10^{-8} \Omega \cdot m$ ).

[GIL 88]

### **(iii) L'expression des pertes diélectriques par polarisation et par conduction**

Lorsqu'un diélectrique est soumis à un champ électrique, on peut définir le vecteur induction de charges  $\vec{D}$ , somme des vecteurs champ électrique et de polarisation :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \cdot \vec{E} + \vec{P} \quad \text{Équation 61}$$

Si on considère un matériau sans pertes, isotrope et homogène, de susceptibilité électrique  $\chi_e$ , le vecteur induction de charges devient :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \cdot (1 + \chi_e) \cdot \vec{E} \quad \text{Équation 62}$$

Soit :  $\vec{D} = \varepsilon \cdot \vec{E}$  avec  $\varepsilon = \varepsilon_0 \cdot (1 + \chi_e)$ , la permittivité diélectrique.

Dans le vide, on a  $\varepsilon = \varepsilon_0$ . Dans un diélectrique, on définit la permittivité diélectrique relative ou constante diélectrique relative, qui est une mesure de la polarisabilité du matériau soumis à un champ électrique, comme suit :

$$\varepsilon_r = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} = (1 + \chi_e) \quad \text{Équation 63}$$

Quand le champ électrique auquel est soumis un diélectrique avec pertes est alternatif, son expression s'écrit :

$$\vec{E}(t) = E_0 \cdot e^{j\omega t} \quad \text{Équation 64}$$

Si les alternances du champ électrique sont plus rapides que les cycles d'orientation-réorientation des dipôles, la polarisation induite ne suivra les variations du champ électrique extérieur qu'avec un certain retard  $\varphi(t)$ , appelé déphasage :

$$\vec{P}(t) = P_0 \cdot e^{j\omega t + \varphi} \quad \text{Équation 65}$$

Ainsi, on peut écrire le vecteur polarisation :

$$\vec{P}(t) = \varepsilon_0 \cdot \chi_e(\omega) \cdot \vec{E}(t) \quad \text{Équation 66}$$

On introduit une susceptibilité électrique complexe, fonction de la pulsation  $\omega$  :

$$\chi_e^*(\omega) = \chi_e'(\omega) - j \cdot \chi_e''(\omega) \quad \text{Équation 67}$$

De la même façon, on peut réécrire le vecteur induction de charges :

$$\vec{D}(t) = \varepsilon_0 \cdot \vec{E}(t) + \vec{P}(t) = \varepsilon(\omega) \cdot \vec{E}(t) \quad \text{Équation 68}$$

Dans ce cas, la constante diélectrique dépend de la fréquence (phénomène de dispersion) et peut s'écrire sous forme complexe (phénomènes de dissipation d'énergie).

On définit alors une permittivité diélectrique complexe, fonction de la pulsation  $\omega$  :

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon'(\omega) - j.\varepsilon''(\omega) \quad \text{Équation 69}$$

avec  $\varepsilon'(\omega) = \varepsilon_0.(1 + \chi_e'(\omega))$  et  $\varepsilon''(\omega) = \varepsilon_0.\chi_e''(\omega)$

On définit à présent chaque membre de la constante diélectrique complexe par rapport au vide :

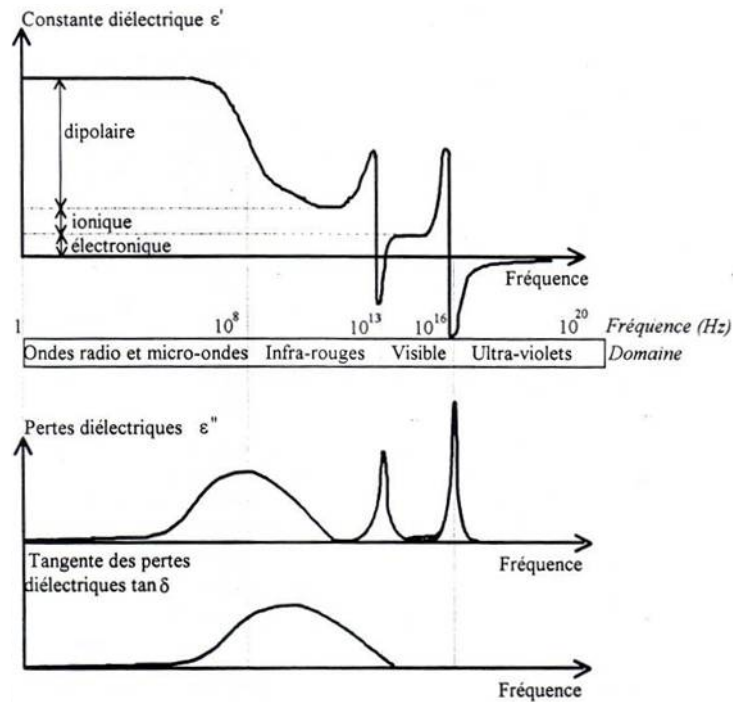
$$\varepsilon_r' = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon_0}, \text{ la constante diélectrique relative (permittivité réelle)}$$

$$\varepsilon_{eff}'' = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon_0}, \text{ les pertes diélectriques efficaces (permittivité imaginaire)}$$

La tangente de pertes due au déphasage  $\delta(\omega)$  entre l'induction et le champ électrique est définie par :

$$\tan \delta(\omega) = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} = \frac{\varepsilon_{eff}''}{\varepsilon_r'} \quad \text{Équation 70}$$

Si on prend le cas d'une molécule polaire ne possédant qu'une fréquence propre de vibration et qu'une fréquence propre électronique, comme c'est le cas de la molécule d'eau, les allures de  $\varepsilon'$ ,  $\varepsilon''$  et  $\tan(\delta)$  sont illustrées par la Figure 12 :



**Figure 12 : Variation de  $\epsilon'$ ,  $\epsilon''$  et  $\tan(\delta)$  d'un milieu diélectrique en fonction de la fréquence [PIL 93]**

L'ensemble des pertes par polarisation est généralement regroupé sous un terme unique car les méthodes de caractérisation existantes distinguent difficilement les différentes contributions :

$$\epsilon''_{\text{polarisation}} = \epsilon''_{\text{Maxwell-Wagner}} + \epsilon''_{\text{dipolaire}} + \epsilon''_{\text{atomique}} + \epsilon''_{\text{électronique}} \quad \text{Équation 71}$$

En plus des pertes diélectriques par polarisation, il existe une source supplémentaire de dissipation d'énergie électromagnétique sous forme de chaleur due à la conductivité électrique  $\sigma$ . En supposant que la conductivité électrique est la seule source de pertes dans le diélectrique, l'équation de Maxwell-Ampère s'écrit :

$$r\vec{\text{rot}}\vec{H} = \vec{J} = \sigma \cdot \vec{E} + j \cdot \omega \cdot \epsilon' \cdot \vec{E} \quad \text{soit} \quad \vec{J} = j \cdot \omega \cdot (\epsilon' - j \cdot \frac{\sigma}{\omega}) \cdot \vec{E} = j \cdot \omega \cdot \epsilon_c^* \cdot \vec{E} \quad \text{Équation 72}$$

On peut donc établir une nouvelle expression de la constante diélectrique où les pertes par conduction sont prédominantes :

$$\epsilon_c^* = \epsilon' - j \cdot \frac{\sigma}{\omega} = \epsilon' - j \cdot \epsilon_c'' \quad \text{Équation 73}$$

avec  $\epsilon_c''$ , les pertes diélectriques par conduction.

Par commodité, tous les mécanismes de pertes diélectriques sont regroupés sous un seul terme général englobant les phénomènes de dissipation d'énergie par polarisation et par conduction :

$$\varepsilon''(\omega) = \varepsilon''_{\text{polarisation}}(\omega) + \varepsilon''_{\text{conduction}}(\omega) = \varepsilon''_{\text{polarisation}}(\omega) + \frac{\sigma}{\omega} \quad \text{Équation 74}$$

On peut définir une conductivité effective  $\sigma_{\text{eff}}$  telle que :

$$\sigma_{\text{eff}} = \omega \cdot \varepsilon''(\omega) = \omega \cdot \left( \varepsilon''_{\text{polarisation}}(\omega) + \frac{\sigma}{\omega} \right) \quad \text{Équation 75}$$

### 1.D.3.b. Contributions du champ magnétique

La plupart des interactions entre les micro-ondes et la matière a lieu avec la composante électrique du champ électromagnétique. Cependant, le champ magnétique peut aussi induire des pertes, particulièrement dans les matériaux magnétiques dont les moments sont alignés, autrement dit les matériaux dits ferro-, antiferro- ou ferrimagnétique.

#### **(i) Les propriétés magnétiques**

Le magnétisme, à l'échelle microscopique, trouve ses origines dans le mouvement des électrons. On distingue le mouvement des électrons dans le nuage électronique – responsable de l'existence d'un magnétisme dit orbital– de la rotation des électrons sur eux-mêmes –responsable du magnétisme de spin–.

L'effet d'une excitation magnétique est de donner à l'ensemble des électrons une vitesse angulaire de rotation autour de la direction du champ magnétique appliquée : ceci donne naissance au phénomène classique d'induction. Le moment magnétique induit créé est proportionnel à l'excitation et s'oppose à cette dernière : c'est le diamagnétisme. Ce phénomène commun à tous les matériaux conduit à une diminution de l'excitation magnétique très faible ( $\chi_m \approx -10^{-5}$ ), c'est pourquoi il est généralement masqué par les effets du paramagnétisme ou du ferromagnétisme lorsque ceux-ci coexistent dans le matériau.

Par ailleurs, l'excitation magnétique peut conduire à l'alignement des dipôles magnétiques atomiques : c'est le paramagnétisme. Dans ce cas, les moments dipolaires magnétiques sont sans interaction entre eux. Ce phénomène engendre donc des

mécanismes de désorientation-réorientation des dipôles magnétiques sous l'action d'un champ magnétique alternatif semblables à ceux observés avec le champ électrique.

Enfin, un matériau conducteur soumis à un champ magnétique alternatif voit apparaître en son sein une force électromotrice, induisant par la même des courants électriques. Ces courants, plus connus sous le nom de courants de Foucault, sont une conséquence de l'induction magnétique. Ces courants induits ont deux conséquences :

- ils créent un champ magnétique qui s'oppose à la cause qui lui a donné naissance : c'est la loi de Lenz.
- ils provoquent un échauffement du matériau par effet Joule.

## (ii) L'aimantation

De manière analogue au phénomène de polarisation diélectrique, on peut définir à l'échelle microscopique un vecteur moment dipolaire magnétique  $\vec{m}$ , dû à la présence de courants microscopiques liés au mouvement des électrons autour du noyau et au moment magnétique propre de l'électron :

$$\vec{m} = i \cdot \vec{S} \quad (A.m^2) \quad \text{Équation 76}$$

avec  $\vec{S}$ , vecteur orthogonal à la surface formée par les lignes du courant  $i$ , d'amplitude égale à son aire et orienté selon la normale d'Ampère.

Un moment magnétique est induit s'il est créé par la présence du vecteur induction magnétique  $\vec{B}$ , sinon on parle de moment magnétique permanent. Enfin, un moment magnétique induit est toujours opposé à  $\vec{B}$  (loi de Lenz).

A l'échelle macroscopique, si on applique un champ magnétique  $\vec{H}$  à un milieu magnétique constitué de  $N$  dipôles, ces dipôles vont s'orienter parallèlement au champ magnétique et provoquer l'aimantation macroscopique  $\vec{M}$  :

$$\vec{M} = \sum_{i=1}^N \vec{m}_i \quad \text{Équation 77}$$

Dans le cas particulier où une seule espèce de dipôles avec un moment dipolaire  $\vec{m}$  est présente, le vecteur aimantation du milieu s'écrit simplement :



$$\vec{M} = N.\vec{m} \text{ (A.m}^{-1}\text{)}$$

*Équation 78*

Pour de nombreux milieux magnétiques, la relation générale entre vecteur aimantation et excitation magnétique est décrite par une expression linéaire de la forme :

$$\vec{M} = \hat{\chi}_m.\vec{H}$$

*Équation 79*

$\mu_0$  : perméabilité magnétique du vide

$\hat{\chi}_m$  : tenseur de susceptibilité magnétique du milieu

Pour des milieux magnétiques isotropes et homogènes, l'aimantation est parallèle au champ magnétique et la susceptibilité magnétique devient un scalaire :

$$\vec{M} = \chi_m.\vec{H}$$

*Équation 80*

Il existe différents mécanismes d'aimantation selon la nature du milieu magnétique et la fréquence du champ magnétique. On peut citer principalement les pertes par hystérésis dues aux déplacements irréversibles des parois de Bloch, les pertes par courants de Foucault dues aux courants électriques induits, ou encore les oscillations des parois de Bloch, les résonances magnétiques dues au mouvement de précession des moments dipolaires magnétiques impairs, à des résonances dimensionnelles provenant d'ondes électromagnétiques stationnaires... [NEW91]

Lorsqu'un matériau magnétique est soumis à un champ magnétique, on peut définir le vecteur induction magnétique  $\vec{B}$ , somme des vecteurs excitation magnétique et aimantation :

$$\vec{B} = \mu_0.(\vec{H} + \vec{M})$$

*Équation 81*

Si on considère un matériau sans pertes, isotrope et homogène, de susceptibilité magnétique  $\chi_m$ , le vecteur induction magnétique devient :

$$\vec{B} = \mu_0.(1 + \chi_m).\vec{H}$$

*Équation 82*

Soit :

$$\vec{B} = \mu \cdot \vec{H} \quad \text{Équation 83}$$

avec  $\mu = \mu_0 \cdot (1 + \chi_m)$ , la perméabilité magnétique.

Dans le vide, on a  $\mu = \mu_0$ . Dans un matériau magnétique, on définit la perméabilité magnétique relative comme suit :

$$\mu_r = \frac{\mu}{\mu_0} = (1 + \chi_m) \quad \text{Équation 84}$$

### **(iii) L'expression de la constante magnétique complexe**

Quand l'excitation magnétique à laquelle est soumis un matériau magnétique avec pertes est alternative, son expression s'écrit :

$$\tilde{H}(t) = H_0 \cdot e^{j\omega t} \quad \text{Équation 85}$$

Si les alternances de l'excitation magnétique sont plus rapides que les cycles d'aimantation-désaimantation des dipôles, l'aimantation induite ne suivra les variations de l'excitation magnétique extérieure qu'avec un certain retard  $\varphi(t)$  :

$$\tilde{M}(t) = M_0 \cdot e^{j\omega t + \varphi} \quad \text{Équation 86}$$

Ainsi, on peut écrire le vecteur aimantation :

$$\tilde{M}(t) = \chi_m(\omega) \cdot \tilde{H}(t) \quad \text{Équation 87}$$

On introduit une susceptibilité magnétique complexe, fonction de la pulsation  $\omega$  :

$$\chi_m^*(\omega) = \chi_m'(\omega) - j \cdot \chi_m''(\omega) \quad \text{Équation 88}$$

De la même façon, on peut réécrire le vecteur induction magnétique :

$$\tilde{B}(t) = \mu_0 \cdot (\tilde{H}(t) + \tilde{M}(t)) = \mu(\omega) \cdot \tilde{H}(t) \quad \text{Équation 89}$$

On définit alors une perméabilité magnétique complexe, fonction de la pulsation  $\omega$  :

$$\mu^*(\omega) = \mu'(\omega) - j \cdot \mu''(\omega) \quad \text{Équation 90}$$

avec  $\mu'(\omega) = \mu_0 \cdot (1 + \chi_m'(\omega))$ , la perméabilité magnétique

et  $\mu''(\omega) = \mu_0 \cdot \chi_m''(\omega)$ , les pertes magnétiques par polarisation

On définit ensuite chaque membre de la constante magnétique complexe par rapport au vide:

$$\mu_r' = \frac{\mu'}{\mu_0}, \text{ la perméabilité magnétique relative}$$

$$\mu_{\text{eff}}'' = \frac{\mu''}{\mu_0}, \text{ les pertes magnétiques efficaces}$$

La tangente de pertes due au déphasage  $\delta_\mu(\omega)$  entre l'aimantation induite et l'excitation magnétique est définie par :

$$\tan \delta_\mu(\omega) = \frac{\mu''}{\mu'} = \frac{\mu_{\text{eff}}''}{\mu_r'} \quad \text{Équation 91}$$

#### I.D.4. PUISSANCE DISSIPÉE & PROFONDEUR DE PENETRATION

##### I.D.4.a. Cas du champ électrique

[THO 99] [MAR 06]

A partir de la conductivité électrique efficace (Equation 75), on peut évaluer la puissance dissipée par le matériau et par unité de volume. Cette puissance est donnée par la loi de Joule :

$$P_M = \sigma_{\text{eff}} |E|^2 = (2\pi \cdot f \cdot \varepsilon' \cdot \tan(\delta) + \sigma) \cdot |E|^2 \quad \text{Équation 92}$$

On en déduit d'une part la contribution conjointe des pertes diélectriques et des pertes par conduction dans le chauffage micro-onde de ce type de matériau. D'autre part, on

constate que pour obtenir un rendement énergétique optimal, il faut positionner le matériau à un maximum du champ électrique E.

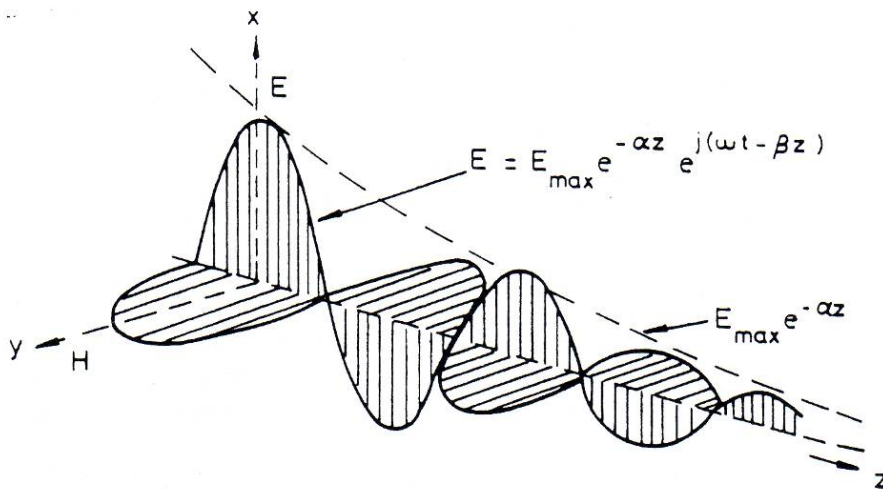
Lorsque l'énergie est absorbée par le solide, le champ électrique décroît exponentiellement à partir de la surface libre du solide (Figure 13) :

$$E_M(z) = E_t \cdot e^{-\alpha \cdot z} \quad \text{Équation 93}$$

avec  $E_t$ , le champ transmis dans le matériau  
et  $\alpha$  défini tel que

$$\alpha = 1/D_p \quad \text{Équation 94}$$

où  $D_p$  est la profondeur de pénétration.



**Figure 13 : Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu dissipatif**

On peut donc exprimer la puissance dans le matériau en fonction de la profondeur de pénétration du champ électrique :

$$P_M(z) = \sigma_{eff} \cdot E_M^2(z) = \sigma_{eff} \cdot E_t^2(z) \cdot e^{-2\alpha \cdot z} \quad \text{Équation 95}$$

que l'on peut écrire aussi

$$P_M(z) = P_t(z) \cdot e^{-2\alpha \cdot z} \quad \text{Équation 96}$$

avec  $P_t = \sigma_{eff} \cdot E_t^2$

$1/\alpha$  représente la profondeur de pénétration, notée  $D_p$ , du champ E :

$$D_p = \frac{1}{\alpha} = \frac{\lambda_0}{\pi \cdot \sqrt{2\varepsilon_r}} \cdot \left( \sqrt{1 + \left( \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \right)^2} - 1 \right)^{-1/2} \quad \text{Équation 97}$$

[MET 88] [CLA 96]

Cette relation peut être simplifiée en faisant différentes hypothèses [MAR 06] :

- si les pertes sont faibles alors  $\frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} \ll 1$  et un développement limité permet d'obtenir l'expression suivante :

$$D_p \cong \frac{\lambda_0}{\pi \cdot \sqrt{\varepsilon_r}} \cdot \frac{\varepsilon'}{\varepsilon''} \quad \text{Équation 98}$$

- si les pertes diélectriques sont très supérieures aux pertes par conduction alors

$\varepsilon_p'' \gg \frac{\sigma}{\omega} \Rightarrow \tan(\delta) = \frac{\varepsilon_p''}{\varepsilon'}$  et l'expression de  $D_p$  devient :

$$D_p \cong \frac{\lambda_0}{\pi \cdot \sqrt{\varepsilon_r}} \cdot \frac{1}{\tan(\delta)} \quad \text{Équation 99}$$

- au contraire si les pertes diélectriques sont très inférieures aux pertes par conduction alors  $\varepsilon_p'' \ll \frac{\sigma}{\omega}$  et l'expression de  $D_p$  devient :

$$D_p \cong \frac{2}{\sigma} \cdot \sqrt{\frac{\varepsilon'}{\mu'}} \quad \text{Équation 100}$$

On constate que la profondeur de pénétration des micro-ondes est inversement proportionnelle à la conductivité électrique. On se rend alors bien compte que les matériaux très conducteurs -la plupart des métaux- sont plutôt opaques à la composante électrique des micro-ondes.

#### 1.D.4.b. Cas du champ magnétique

Pour les matériaux à pertes magnétiques, l'évaluation de la puissance dissipée par le matériau est plus complexe car elle dépend des phénomènes de dissipation pris en compte. Tous les termes de dissipation d'énergie ne peuvent pas être regroupés sous un seul et unique terme général.

Cependant, dans le cas le plus simple où on suppose que le matériau peut être chauffé par le phénomène de pertes par polarisation des moments magnétiques, il suffit de remplacer E par H et  $\varepsilon''$  par  $\mu''$ .

Par ailleurs, d'après la loi de Lenz, lorsqu'un champ magnétique est appliqué à un matériau, des boucles de courant s'établissent en conduisant à une élévation de température par effet Joule.

Si on considère un cylindre de rayon R disposé parallèlement à un champ magnétique  $\vec{H}_0$  de pulsation  $\omega$ , le champ magnétique transmis  $\vec{H}_t$  à la surface de l'échantillon pénètre sur une profondeur de peau  $\delta_H$  :

$$\delta_H = \sqrt{\frac{2}{\mu' \cdot \sigma \cdot \omega}} = \frac{1}{\sqrt{\pi \cdot f \cdot \mu \cdot \sigma}} \quad \text{Équation 101}$$

[NEW91]

Pour les matériaux ayant une forte conductivité, cette profondeur est faible. Cependant, si le matériau se présente sous la forme d'une poudre de taille micronique, la profondeur de peau peut être du même ordre de grandeur que la taille des particules et dans ce cas, l'absorption est possible.

On peut en déduire la puissance dissipée par le matériau et par unité de longueur d'un cylindre de rayon R :

$$P_{M_H} = \frac{\pi \cdot R}{\sigma \cdot \delta_H} \cdot H_t^2 = \pi \cdot R \cdot \sqrt{\frac{\mu' \cdot \omega}{2 \cdot \sigma}} \cdot H_t^2 \quad \text{Équation 102}$$

On voit que la puissance dissipée par le matériau est proportionnelle au carré du champ magnétique donc le matériau devra être positionné à un maximum du champ magnétique H.

## I.E. SPECIFICITES DU CHAUFFAGE PAR MICRO-ONDES

### I.E.1. ASPECTS ENERGETIQUES

Dans le procédé de chauffage par micro-ondes, on peut distinguer différentes puissances (électromagnétiques, thermiques...), certaines pouvant être mesurées par des détecteurs et d'autres ne pouvant être qu'estimées par le calcul. Dans tous les cas, ces puissances doivent être définies clairement.

Tout d'abord, il y a la puissance de l'onde délivrée par le magnétron : c'est la puissance électromagnétique incidente, notée  $P_I$ . Après réflexion sur le piston court-circuit, l'onde revient en direction du magnétron ; si elle n'est pas renvoyée par l'iris dans la cavité, cette onde est déviée et absorbée par l'isolateur. Un porte-cristal détecteur placé dans cet isolateur mesure la puissance électromagnétique, dite réfléchie, et notée  $P_R$ . Lorsqu'il n'y a pas de pertes dans la cavité ou qu'elles sont très faibles ( $< 10$  W), alors  $P_I = P_R$ . En revanche, lorsqu'il y a des pertes dans la cavité,  $P_I \neq P_R$ . On définit la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité, notée  $P_C$ , par la différence entre la puissance incidente et la puissance réfléchie :

$$P_C = P_I - P_R$$

*Équation 103*

La puissance électromagnétique dissipée dans la cavité  $P_C$  est maximale à la résonance, ce qui correspond aussi à la distribution du champ électromagnétique pour laquelle les intensités des composantes électriques et magnétiques sont en moyenne les plus élevées. Toutes les puissances définies ici ( $P_I, P_R, P_C$ ) seront de l'ordre de quelques centaines de watts dans notre dispositif.

Les puissances qui vont être définies maintenant ne pourront être estimées qu'à partir de calculs de thermique simples. La puissance électromagnétique dissipée dans la cavité  $P_C$  peut être décomposée en deux termes : la puissance dissipée par le matériau pour le chauffer, notée  $P_M$ , et la puissance dissipée par la cavité, notée  $P_C''$ . Si un échantillon placé dans la cavité couple fortement avec le champ électromagnétique, la majeure partie de la puissance électromagnétique  $P_C$  servira au chauffage du matériau. Au contraire, si l'échantillon ne couple pas avec les micro-ondes ou très faiblement ( $P_M \approx 0$

→  $P_C \approx P_C''$ ), la puissance électromagnétique  $P_C$  sera dissipée principalement dans les parois de la cavité sous forme de chaleur (courant de conduction dans les parois → effet Joule), par rayonnement hors de la cavité et parfois par formation d'arcs électriques ou de plasma.

Contrairement à la puissance dissipée par la cavité  $P_C''$ , la puissance dissipée par le matériau  $P_M$ , qui dépend de ses propriétés diélectriques/magnétiques, peut être estimée. En effet, en première approximation, c'est la somme de la puissance nécessaire pour chauffer le matériau à une vitesse donnée ( $P_{ch}$ ) et de la puissance nécessaire pour compenser ses pertes thermiques, dues principalement au rayonnement ( $P_{ray}$ ).

$$P_M = P_{ch} + P_{ray} = m.C_p^m.\dot{T} + \varepsilon.\sigma_{SB}.(T^4 - T_{ref}^4).S \quad \text{Équation 104}$$

$m$  : masse du matériau (kg)

$C_p^m$  : capacité calorifique massique du matériau (J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>)

$\dot{T}$  : vitesse de chauffage (K.s<sup>-1</sup>)

$\varepsilon$  : émissivité du matériau

$\sigma_{SB}$  : constante de Stefan-Boltzmann – 5,67.10<sup>-8</sup> W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-4</sup>

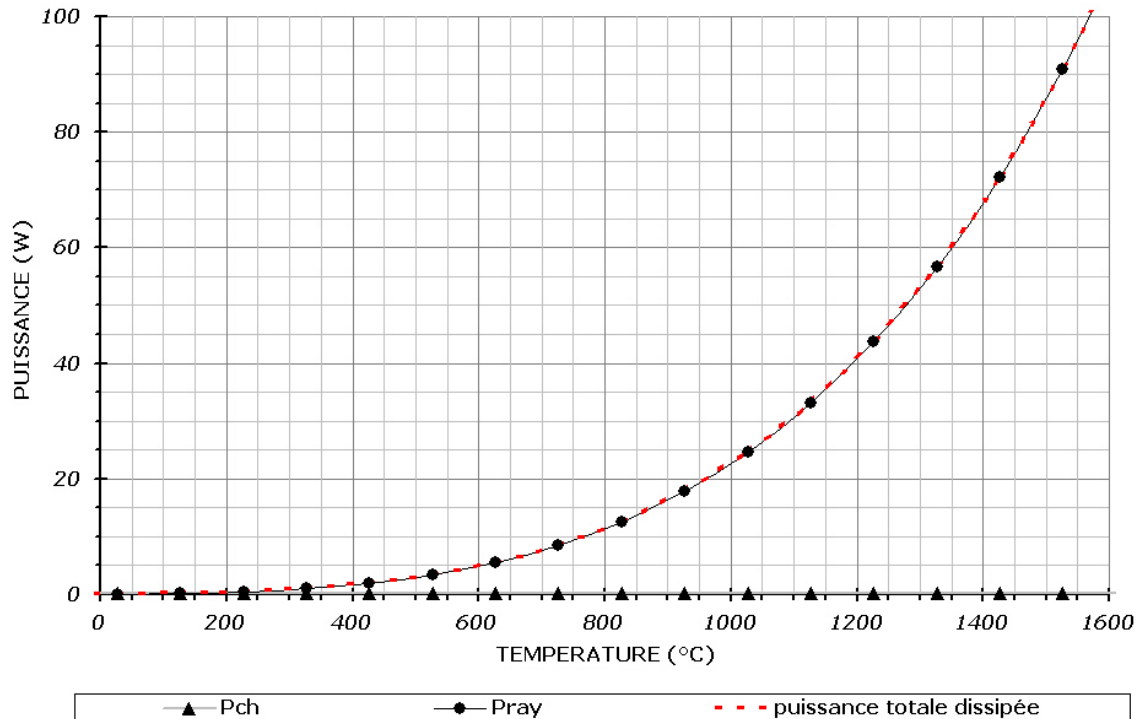
$T$  : température du matériau (K)

$T_{ref}$  : température de l'environnement de l'objet (K)

$S$  : surface externe de l'échantillon à travers laquelle le matériau rayonne (m<sup>2</sup>)

Prenons l'exemple d'un échantillon de zircone yttrée de 1 g et de 6 mm de diamètre et de hauteur. La puissance  $P_{ch}$  nécessaire pour élever la température de cet échantillon à la vitesse de 25°C/min est de seulement 0,2 W, ce qui est généralement 3 ordres de grandeur plus petits que la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité. A la puissance de chauffage, il faut ajouter la puissance rayonnée  $P_{ray}$  qui augmente significativement avec la température ( $\propto T^4$ ) et qui représente la quasi-totalité de la puissance totale dissipée par le matériau.



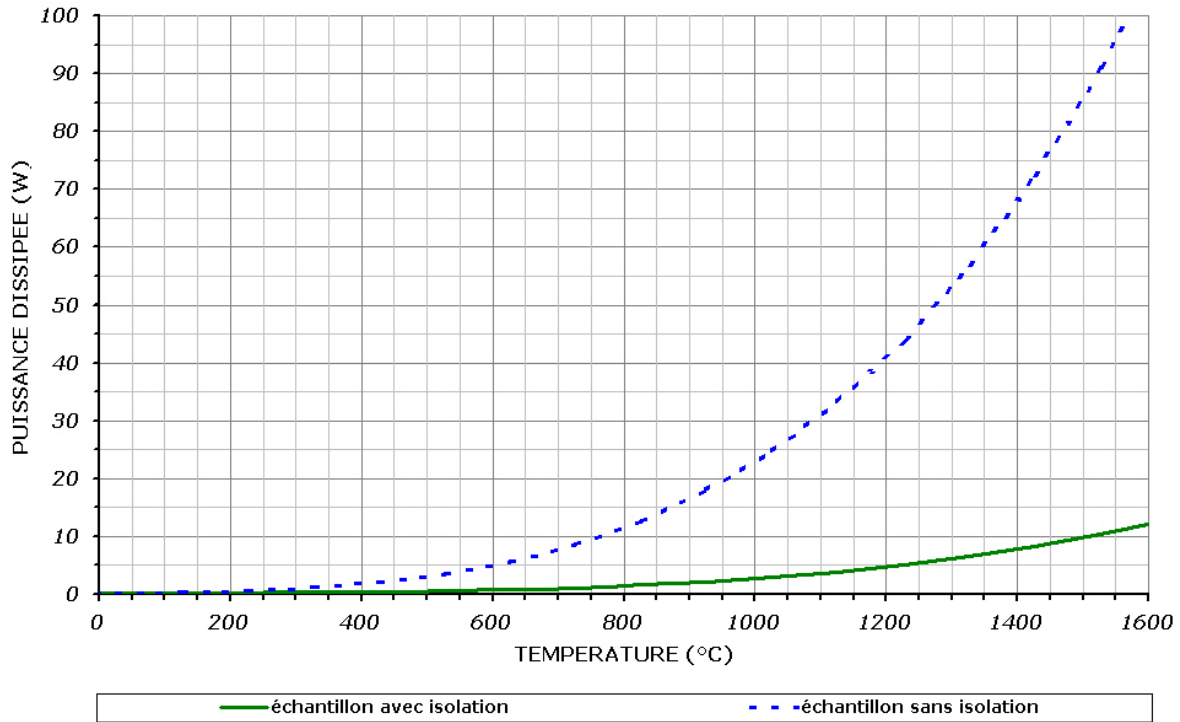


**Figure 14 : Variations de la puissance de chauffage  $P_{ch}$ , de la puissance rayonnée  $P_{ray}$  et de la puissance totale dissipée par le matériau  $P_M$  en fonction de la température**

Dans la Figure 14, la puissance rayonnée est calculée pour un échantillon sans isolation avec une émissivité de 0,9 (valeur estimée par thermographie IR cf. III.C.3.e.). Par ailleurs, dans le calcul de la puissance rayonnée, la température de référence  $T_{réf}$  a été fixée à 298 K (température ambiante d'environnement). C'est la température de l'environnement de l'échantillon, autrement dit des parois refroidies de la cavité. A 150°C la puissance de chauffage et la puissance rayonnée représentent chacune environ 50% de la puissance dissipée par le matériau. A partir de 400°C, la puissance rayonnée représente plus de 90% de la puissance dissipée par le matériau : les pertes par rayonnement deviennent alors largement prépondérantes.

Lorsque des matériaux isolants sont disposés autour de l'échantillon, la puissance rayonnée peut être réduite significativement. En effet, un isolant permet de limiter le rayonnement de l'échantillon en renvoyant une grande partie du rayonnement émis vers l'échantillon. Ainsi, l'ajout d'isolant se traduit dans le calcul de la puissance rayonnée par une diminution de l'émissivité apparente de l'échantillon. Dans notre cas, cette valeur a été fixée à 0,1 pour l'échantillon avec isolant ; c'est en fait l'émissivité apparente supposée du système {échantillon + isolant}. La Figure 15 illustre les calculs de la puissance totale dissipée dans le matériau pour un même échantillon avec et sans isolation. Si on suppose réaliste cette valeur d'émissivité de 0,1 pour l'échantillon avec isolation, on peut dire alors que ce n'est qu'à partir de 900°C que la puissance rayonnée

représente 90% de la puissance dissipée par le matériau, au lieu de 400°C sans isolation. De plus, l'isolation de l'échantillon permettrait de réduire la puissance nécessaire à dissiper par le matériau de 85% environ à 1500°C.



**Figure 15 : Variation de la puissance dissipée par le matériau  $P_M$  en fonction de la température pour un échantillon avec isolation (émissivité 0,9) ou sans isolation (émissivité 0,1)**

Cette estimation de la puissance nécessaire au chauffage d'un échantillon montre d'une part que cette puissance ( $P_{ch} < 1$  W) est très inférieure à la puissance  $P_I$  générée par le magnétron (10 W à 2000 W) et d'autre part que l'isolation des matériaux chauffés par micro-ondes peut permettre de diminuer significativement la puissance perdue par rayonnement  $P_{ray}$ , et par conséquent la puissance totale dissipée par le matériau  $P_M$ .

### 1.E.2. TRANSFERTS THERMIQUES ET CHAMP DE TEMPERATURE

De part ses caractéristiques, le chauffage par micro-ondes présente des différences fondamentales avec le chauffage conventionnel.

Dans le cas du chauffage conventionnel, les longueurs d'ondes associées au transfert d'énergie entre les ondes électromagnétiques et la matière sont de l'ordre du micromètre (visible, infrarouge). Par conséquent, la profondeur de pénétration est faible : on a un

chauffage de surface et c'est la conduction thermique du matériau qui assure la diffusion de la chaleur dans tout le volume et permet l'homogénéisation de la température. Le matériau est placé dans un environnement plus chaud (le four) où il va puiser son énergie dans le rayonnement infrarouge et visible pour chauffer : on a donc des gradients thermiques de la surface vers le cœur.

Au contraire, dans le domaine des micro-ondes, les longueurs d'ondes sont de l'ordre de la centaine de millimètres. L'interaction entre l'onde électromagnétique et la matière a lieu sur une épaisseur plus grande. S'il y a des pertes diélectriques et/ou par conduction et/ou magnétiques dans le matériau, l'énergie électromagnétique va pénétrer dans le matériau en s'atténuant sous l'effet des pertes et en créant de la chaleur.

En résumé, le chauffage de la matière est lié à trois principaux phénomènes dissipatifs :

- les phénomènes de désorientation-réorientation de dipôles sous l'action du champ électrique qui conduisent à des mouvements (translation, rotation) dont les amplitudes sont limitées par les liaisons atomiques d'où des frictions interatomiques ;
- les phénomènes liés à la dissipation par effet Joule dus à la résistivité intrinsèque du matériau qui s'oppose aux déplacements de charges libres (électrons, ions) induits directement par le champ électrique (polarisations électronique ou ionique) ou indirectement par le champ magnétique (courants de Foucault) ;
- les phénomènes d'aimantation-désaimantation de domaines de Weiss sous l'action du champ magnétique qui entraînent des pertes calorifiques proportionnelles à l'aire du cycle d'hystérésis.

Ces phénomènes conduisent à une conversion de l'énergie électromagnétique en chaleur dans tout le volume de la pièce à chauffer si la profondeur de pénétration est du même ordre de grandeur que sa dimension. Ce chauffage volumique constitue l'originalité du chauffage par micro-ondes. Par ailleurs, le matériau puise son énergie dans ses interactions avec les ondes électromagnétiques sous l'effet de différentes pertes, si bien qu'il peut chauffer dans un environnement froid (la cavité). Ceci se traduit par l'établissement de gradients thermiques inverses (du cœur vers la surface) par rapport à un mode de chauffage conventionnel. Ces gradients thermiques seront plus ou moins marqués selon les conditions d'isolation et la vitesse de chauffage.

## CHAPITRE II

### DEVELOPPEMENT D'UNE CAVITE MICRO-ONDES

#### MONOMODE RESONANTE INSTRUMENTEE

Dans ce chapitre nous allons décrire les caractéristiques de notre four micro-ondes dont les principaux éléments ont été conçus par la société Sairem, puis les spécificités de la cavité monomode et les modes de résonance autorisés. Ensuite, nous présenterons les améliorations apportées à la conception de la cavité afin de disposer de plusieurs modes d'élaboration -frittage micro-ondes avec ou sans suscepteur et sous atmosphère contrôlée- et d'avoir un meilleur suivi de la température des échantillons en utilisant une caméra thermique IR. Enfin, nous exposerons des résultats de la modélisation du frittage micro-ondes dans ce type de cavité et nous discuterons de l'apport de ces simulations numériques pour la compréhension des interactions entre le champ électromagnétique et les matériaux (échantillons, suscepteur, supports).

## II.A. CARACTERISTIQUES GENERALES DU FOUR MICRO-ONDES

### II.A.1. LA SOURCE ELECTROMAGNETIQUE

#### II.A.1.a. Générateur haute tension et magnétron

La production d'ondes électromagnétiques à la fréquence de 2,45 GHz est assurée par un générateur à haute tension associé à un magnétron. Le générateur de micro-ondes GMP 20KSM, de la société Sairem, délivre une puissance de sortie variable de 0 à 2 kW par pas de 10 W.

L'alimentation 220/240 V 50/60 Hz, séparée de la tête micro-ondes, est constituée :

- d'une alimentation à découpage haute tension (HT)
- d'un ensemble de commande et de contrôle pour l'ajustement de la haute tension en fonction de la puissance de sortie, de l'alimentation du filament, du contrôle des paramètres de sécurité, de l'affichage des paramètres, des liaisons télécommandes.

La tête micro-ondes comprend :

- le magnétron et la transition magnétron/guide d'ondes (bride de sortie WR340)
- le transformateur filament
- le circuit de refroidissement
- l'isolateur.

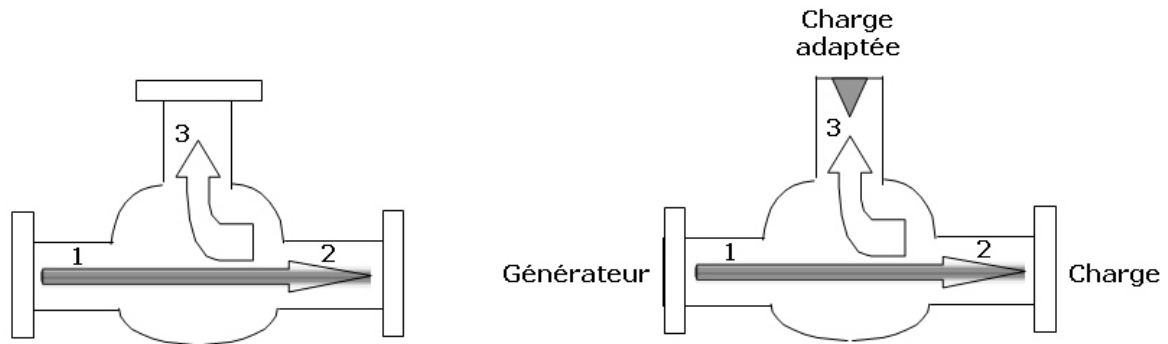
### II.A.1.b. Antenne et bride de guide d'onde

La transformation en une onde électromagnétique du courant électrique généré dans le magnétron est assurée par un élément rayonnant appelé antenne. L'antenne est plongée dans une bride de sortie (transition entre le magnétron et le guide d'onde), dont les dimensions sont données par le constructeur : la bride de sortie WR340 choisie a pour section 86,36 mm x 43,18 mm. L'orientation de l'antenne dans cette bride (verticale ou horizontale) détermine le type d'onde transmise au guide d'onde (onde TE ou onde TM). Au final, une onde électromagnétique d'une puissance ajustable au niveau du générateur est ainsi disponible dans le guide d'onde à la sortie de cette transition.

### II.A.1.c. Circulateur + Charge adaptée = Isolateur

Pour éviter qu'une puissance électromagnétique excessive ne revienne vers le magnétron, ce qui pourrait l'endommager sérieusement, un circulateur ou un isolateur est placé entre le magnétron et la cavité. Cet élément fonctionne de manière analogue à une diode dans un circuit électronique et évite ainsi un retour de puissance réfléchi vers la source électromagnétique.

La Figure 16 représente un circulateur et un isolateur. Un champ magnétique créé par un aimant permanent polarise le centre du circulateur grâce à des ferrites non absorbantes ce qui permet de dévier convenablement les ondes vers les différentes voies. Le circulateur, tout comme l'isolateur, est équipé de trois voies repérées 1, 2 et 3 : la voie 1 est connectée au magnétron et la voie 2 est connectée à l'applicateur. Si on alimente la voie 1 à partir du magnétron, l'énergie est entièrement transmise à la voie 2 reliée à l'applicateur. La partie de cette énergie, non absorbée dans l'applicateur et dite réfléchi, revient vers le circulateur par la voie 2. Le système agissant comme un giratoire dévie la puissance réfléchi provenant de la voie 2 vers la voie 3. Le générateur est ainsi protégé de tout retour susceptible de détruire le magnétron ou de perturber son fonctionnement. Dans un isolateur, la voie 3 est reliée à une charge adaptée (eau) qui absorbe intégralement l'énergie électromagnétique. Si la voie 3 n'est pas connectée à une charge adaptée, alors c'est un simple circulateur. En général, au-delà d'une puissance réfléchi de 600 W, l'utilisation d'un isolateur est incontournable.



**Figure 16 : Représentation d'un circulateur (à gauche) et d'un isolateur (à droite)**

Un porte cristal détecteur placé dans l'isolateur permet de mesurer la puissance réfléchie, c'est-à-dire la puissance non absorbée dans l'applicateur et revenant vers le magnétron. La puissance réfléchie est égale à la puissance incidente lorsqu'il n'y a pas de perte dans la cavité.

### II.A.2. LA CAVITE MONOMODE RESONANTE

Une cavité monomode résonante est un applicateur constitué de différents éléments avec des dimensions caractéristiques qui impose une certaine configuration spatiale des champs électrique et magnétique :

- le guide d'onde pour transporter l'onde émise par le magnétron jusqu'à la cavité centrale ;
- la cavité centrale où le matériau est placé pour y être chauffé ;
- le piston court-circuit pour réfléchir l'onde incidente vers la cavité centrale et permettre la superposition des ondes incidente et réfléchie ce qui conduit à la formation d'une onde stationnaire, dont les maxima sont distants de  $\lambda_g / 4$  ;
- un iris de couplage pour réfléchir vers la cavité centrale tout ou partie de l'onde réfléchie par le piston et pour permettre la résonance par superpositions multiples des ondes réfléchies sur le piston et sur l'iris, lorsque la distance iris-piston est telle que

$L \approx p \cdot \frac{\lambda_g}{2}$ . Dans ce cas, l'amplitude du champ électromagnétique dans la cavité est supérieure à celle émise par la source électromagnétique, c'est-à-dire le magnétron.

Ainsi, les configurations du champ électromagnétique et les modes de résonance résultants dépendent des dimensions du guide d'onde et de la cavité ainsi que des positions relatives du piston et de l'iris. La connaissance des zones d'intensité maximale du champ électrique et magnétique permet de positionner le matériau à chauffer dans un environnement électromagnétique connu. L'intérêt majeur de cette cavité monomode est

de permettre l'étude et la mise en évidence d'éventuels effets spécifiques du champ électrique ou magnétique sur le frittage par chauffage micro-ondes.

### II.A.2.a. Guide d'onde et iris de couplage

A la fréquence  $f$  de 2,45 GHz, le guide d'onde standard pour le mode de propagation TE<sub>10</sub> est le guide WR 340 qui a pour section interne  $a \times b$  avec  $a = 86,36$  mm et  $b = 43,18$  mm. A ces dimensions correspond une longueur d'onde de coupure (cf. I.B.2.e.):

$$(\lambda_c)_{10} = 2a = 172,72 \text{ mm} \quad \text{Équation 105}$$

Sachant qu'à cette fréquence, la longueur d'onde d'excitation est :

$$\lambda = \frac{2\pi.c}{\omega} = \frac{c}{f} = 122,36 \text{ mm} \quad \text{Équation 106}$$

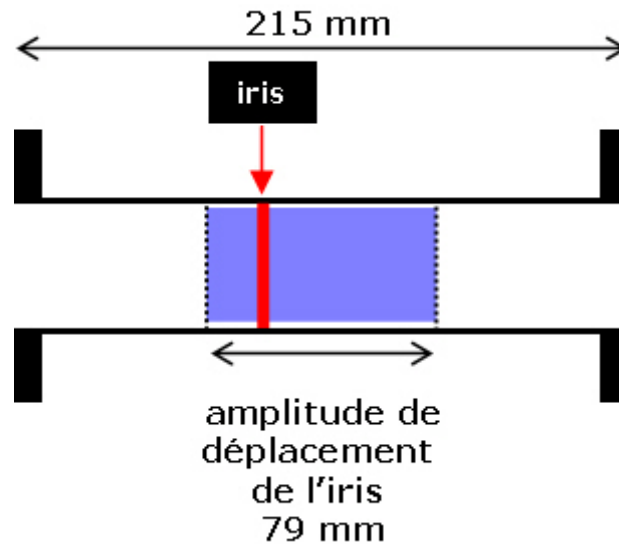
On en déduit la longueur d'onde guidée par la relation fondamentale de la propagation guidée (cf. I.B.2. - Equation 41) :

$$\lambda_g = \sqrt{\frac{\lambda_0^2 \cdot \lambda_c^2}{\lambda_c^2 - \lambda_0^2}} = 173,37 \text{ mm} \quad \text{Équation 107}$$

L'antenne et le guide d'onde associé permettent la propagation d'une onde transverse électrique à polarisation verticale. Les parois métalliques intérieures sont en laiton pour limiter les pertes ohmiques et ainsi assurer une transmission quasiment sans perte de l'onde par réflexion sur les parois.

Ce guide d'onde (Figure 17) est d'une longueur totale de 215 mm. Chacune de ses parois parallèles au plan (xOz) est fendue longitudinalement. Ceci permet le glissement manuel selon (Oz) et sur une longueur de 79 mm d'un clinquant en cuivre fendu verticalement faisant office d'iris de couplage (cf. I.C.3.).





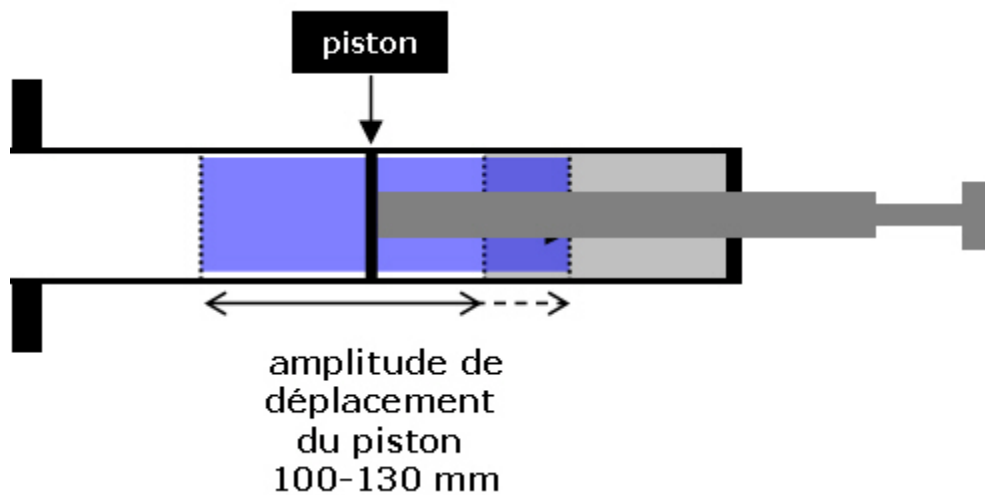
**Figure 17 : Coupe longitudinale du guide d'onde avec l'iris - plan (yOz)  
Zone de positionnement de l'iris**

#### II.A.2.b. Cavité centrale

La cavité centrale est placée dans le prolongement du guide d'onde dont elle reprend la section (86,36 mm x 43,18 mm), sa longueur étant de 160 mm. L'intérieur de cet élément est également en laiton pour limiter les pertes ohmiques. Cette cavité centrale dispose de deux ouvertures circulaires centrées de 56 mm de diamètre sur chacune de ses faces parallèles au plan (xOz). Ces ouvertures permettent l'introduction des matériaux à chauffer. Pour éviter les fuites d'ondes électromagnétiques à l'extérieur de la cavité par rayonnement, ces ouvertures sont prolongées par des cheminées en laiton, hautes de 91 mm à l'origine. Enfin, les parois latérales parallèles au plan (yOz) disposent chacune d'une petite ouverture (circulaire ou fente) permettant la mesure de la température du matériau par visée pyrométrique ou tout simplement l'observation visuelle de l'échantillon.

#### II.A.2.c. Piston court-circuit mobile

Le piston court-circuit (Figure 18) conserve la section du guide d'onde et de la cavité centrale ; il est placé dans le prolongement de cette dernière et ferme la cavité par une paroi conductrice réfléchissant l'onde incidente. La position de sa paroi est ajustable manuellement sur une distance de 130 mm pour translater l'onde stationnaire et par conséquent déplacer les positions des maxima des champs électrique et magnétique.

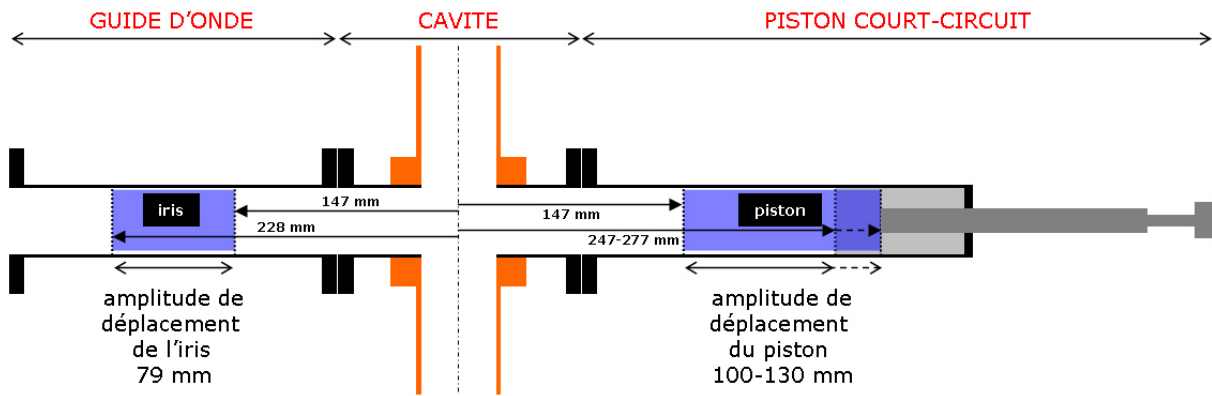


**Figure 18 : Coupe longitudinale du piston court-circuit - plan (yOz)  
Zone de positionnement de la paroi du piston**

Bien que cela ne soit pas le cas dans les expériences présentées par la suite, il est intéressant de signaler que ce piston court-circuit à déplacement manuel peut être remplacé par un piston motorisé. Commandé par un sous-programme fonctionnant avec LabVIEW via un ordinateur muni d'une carte d'acquisition de type NI-6224, le moteur pas à pas permet le déplacement du piston court-circuit sur une course de 100 mm. De plus, la position du piston est mesurée via un potentiomètre. Enfin, un détecteur de puissance micro-ondes est placé au niveau de la surface réfléchissant l'onde. Cette mesure de la puissance électromagnétique peut être utilisée pour rechercher la position du piston court-circuit pour laquelle un maximum de puissance est accumulé dans la cavité. Ce dispositif a été utilisé pour mettre au point une procédure de pilotage automatisé des essais de frittage (cf. II.C).

#### II.A.2.d. Modes de résonance possibles

En résumé, la cavité résonante monomode, représentée sur la Figure 19, est un dispositif mis en œuvre pour imposer une configuration spatiale particulière du champ électromagnétique (onde stationnaire) et pour accumuler de l'énergie disponible pour le chauffage de l'échantillon (phénomène de résonance). Les amplitudes de déplacement de l'iris et du piston ainsi que leurs positions par rapport au centre de la cavité permettent de faire varier la longueur de la cavité entre  $L_{\min} = 294$  mm et  $L_{\max} = 475$  mm (piston motorisé) ou 505 mm (piston manuel).



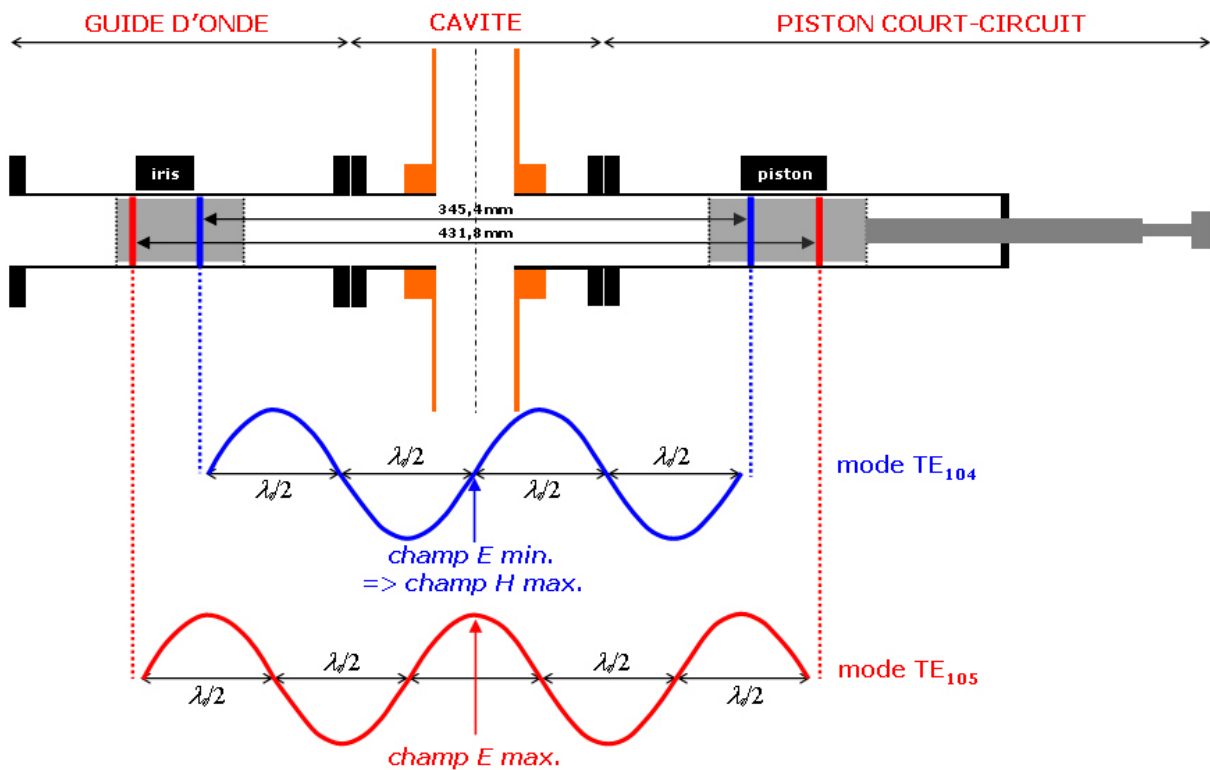
**Figure 19 : Coupe longitudinale de la cavité résonante monomode  
Positions de l'iris et du piston par rapport au centre de la cavité**

Connaissant la valeur de  $\lambda_g / 2$  (86,36 mm), on en déduit les valeurs que peut prendre l'indice  $p$  du mode de propagation guidée  $TE_{10p}$ .

indice $p$	3	4	5	6
L (mm)	259,08	<b>345,44</b>	<b>431,80</b>	518,16
	x	✓	✓	x

Seuls les modes  $TE_{104}$  et  $TE_{105}$ , tels que  $L_{\min} \leq p \cdot \frac{\lambda_g}{2} \leq L_{\max}$ , sont autorisés dans cette cavité. En fonction de cet indice, si on place l'iris et le piston à égale distance du centre de la cavité (Figure 20) alors, théoriquement :

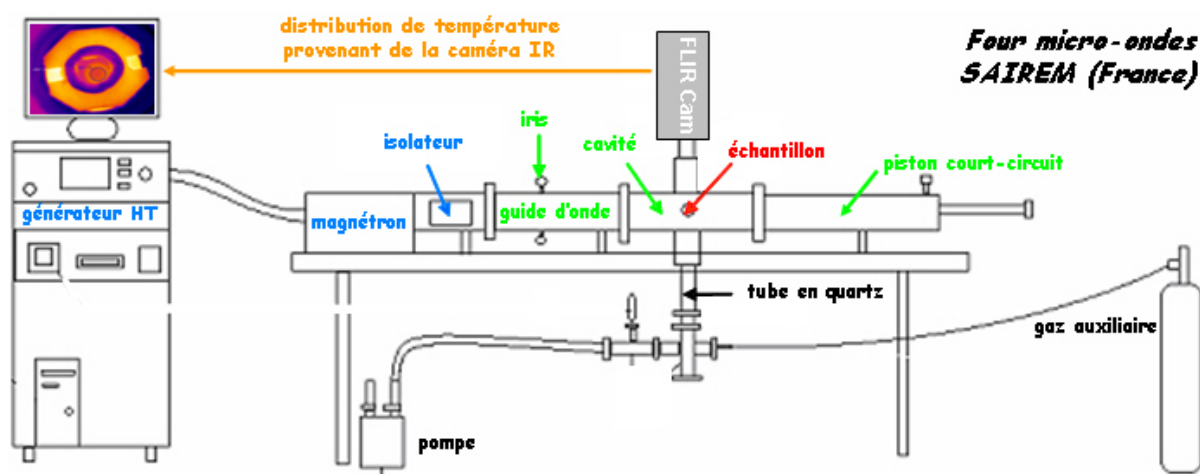
- lorsque  $p$  est pair (mode  $TE_{104}$ ), le champ magnétique est maximum au centre de la cavité.
- lorsque  $p$  est impair (mode  $TE_{105}$ ), le champ électrique est maximum au centre de la cavité.



**Figure 20 : Représentation du champ électrique de l'onde stationnaire pour les modes TE<sub>104</sub> (champ magnétique max. au centre) et TE<sub>105</sub> (champ électrique max. au centre)**

Cette description idéale du champ électromagnétique dans la cavité ne correspond pas exactement à la réalité, comme nous le verrons plus en détail dans la partie II.D de ce chapitre. En effet, la distribution du champ électromagnétique dans la cavité est modifiée par de multiples paramètres. Parmi ceux-ci, le plus important est la permittivité diélectrique complexe des matériaux introduits dans la cavité (tube en quartz, échantillon, suscepteur, supports), non seulement en raison des pertes diélectriques qui dépendent de la partie imaginaire de leur permittivité ( $\varepsilon''$ ), mais aussi à cause de la partie réelle ( $\varepsilon'$ ) équivalente pour le champ électrique à une résistance. Enfin, le champ électromagnétique est aussi perturbé par les pertes par rayonnement des cheminées et des différentes liaisons iris/guide d'onde/cavité/piston mais aussi par les pertes par conduction dans les parois non parfaites de la cavité. Et la première conséquence de ces différentes sources de perturbation du champ électromagnétique est une modification sensible de la longueur de la cavité  $L$  à la résonance : les positions de l'iris et du piston doivent alors être ajustées de quelques millimètres à quelques centimètres.

## II.B. DEVELOPPEMENTS TECHNIQUES DE LA CAVITE



**Figure 21 : Vue schématique de notre four de frittage par micro-ondes**

La Figure 21 est une vue d'ensemble du four de frittage par micro-ondes développé au laboratoire SIMaP. Le développement a porté sur l'enceinte dans laquelle sont placés les matériaux à fritter (échantillon) et sur la mesure de la température à l'aide d'une caméra thermique infrarouge (constructeur : FLIR Systems™, modèle : ThermoVision™ A40M).

### II.B.1. DETERMINATION DE LA TEMPERATURE DES MATERIAUX

#### II.B.1.a. Mesures de la température dans une cavité micro-ondes ?

La mesure de température d'un échantillon dans une cavité micro-ondes est un problème majeur et complexe qui a été étudié et traité avec différents techniques [IKU95] [BYK 01] [PER01] [VAU 07]. Le principe même de ce chauffage peut conduire à de fortes hétérogénéités de la température dans la cavité car chaque matériau a une réponse spécifique au champ électromagnétique : la température du matériau est donc différente de la température de l'atmosphère et des parois de la cavité micro-ondes contrairement au chauffage conventionnel dans un four résistif où l'ensemble est en général assez homogène en température. Ainsi, dans un four micro-ondes, le thermocouple devrait être placé en contact avec la surface du matériau ou inséré dans l'échantillon. Cependant, l'introduction d'un thermocouple dans la cavité engendre des perturbations du champ électromagnétique, et vice versa, le champ électromagnétique est susceptible de perturber la mesure du thermocouple par l'accumulation de charges à la pointe du thermocouple qui peut générer des arcs électriques. Un blindage du thermocouple avec

une gaine céramique ou un écran métallique peut remédier au problème d'arc électrique. Toutefois, il peut aussi augmenter le temps de réponse du thermocouple ce qui rend problématique la mesure de la température, particulièrement dans le cas d'un chauffage rapide.

Par opposition à ces mesures de température par contact, il existe des techniques de mesure sans contact avec le matériau reposant sur le principe de la thermographie. En effet, la température d'un matériau peut être calculée à partir du rayonnement qu'il émet, grâce à des instruments comme des thermomètres optiques/IR, des pyromètres ou des caméras IR. Ces techniques permettent de mesurer la température de surface des matériaux sans contact donc sans introduire d'instrument dans la cavité. Ainsi le champ électromagnétique n'est pas être perturbé par l'instrument de mesure et vice versa. En revanche, un inconvénient est que la température du matériau est une température relative calculée à partir du rayonnement reçu par le détecteur. Une estimation correcte de cette température de surface nécessite alors de connaître quelques données thermiques sur le matériau et son environnement.

Dans notre étude, le choix d'une caméra thermographique IR s'est imposé face au pyromètre pour de nombreuses raisons. Une caméra permet de suivre simultanément et en continu les variations de température de plusieurs matériaux, de détecter des gradients thermiques à la surface des matériaux, et d'observer la fissuration des échantillons ou la formation d'arcs électriques ou de plasmas. Tous ces indices et preuves rapportés par la caméra IR sont des témoignages pouvant nous aider à la compréhension des phénomènes se déroulant au cours du frittage micro-ondes.

### II.B.1.b. Introduction à la thermographie

[GAU 99]

La thermographie utilise la bande spectrale infrarouge, 0,75  $\mu\text{m}$  – 100  $\mu\text{m}$ , comprise entre la bande de la lumière visible et le domaine des hyperfréquences. La bande infrarouge est divisée en quatre bandes, délimitées de façon arbitraire : le proche infrarouge (0,75 – 3  $\mu\text{m}$ ), l'infrarouge central (3 – 6  $\mu\text{m}$ ), l'infrarouge lointain (6 – 15  $\mu\text{m}$ ) et l'infrarouge extrême (15 – 100  $\mu\text{m}$ ).

#### **(i) Le rayonnement d'un corps noir**

Un corps noir désigne un objet qui absorbe le rayonnement qu'il reçoit, quels que soient sa longueur d'onde et son angle d'incidence. Les caractéristiques du rayonnement d'un trou dans une cavité isotherme constituée d'un matériau absorbant opaque représentent assez bien les propriétés d'un corps noir. Si on chauffe cette cavité en conditions

isothermes, elle génère un rayonnement de corps noir, dont les caractéristiques sont déterminées uniquement par sa température. Ce type de cavité rayonnante est couramment utilisé comme source de rayonnement de référence dans les laboratoires d'étalonnage des instruments de thermographie.

Si la température d'un corps noir dépasse 525 °C, la source de rayonnement commence à être visible, si bien qu'elle n'apparaît plus noire à l'œil. Il s'agit de la couleur rouge correspondant à la chaleur initiale du radiateur (équipement infrarouge rayonnant), qui devient ensuite orange puis jaune au fur et à mesure que la température augmente.

Le rayonnement émis par un corps noir est décrit par trois expressions : la loi de Planck, la loi de Wien et la loi de Stefan-Boltzmann.

## **(ii) La loi de Planck**

Max Planck a décrit la distribution spectrale du rayonnement d'un corps noir à l'aide de la formule suivante

$$W_{\lambda b} = \frac{2 \cdot \pi \cdot h \cdot c^2}{\lambda^5 \cdot (e^{hc / \lambda k_B T} - 1)} \cdot 10^{-6} \text{ [W/m}^2\text{/}\mu\text{m]} \quad \text{Équation 108}$$

$W_{\lambda b}$  : exitance énergétique spectrale du corps noir à la longueur d'onde  $\lambda$

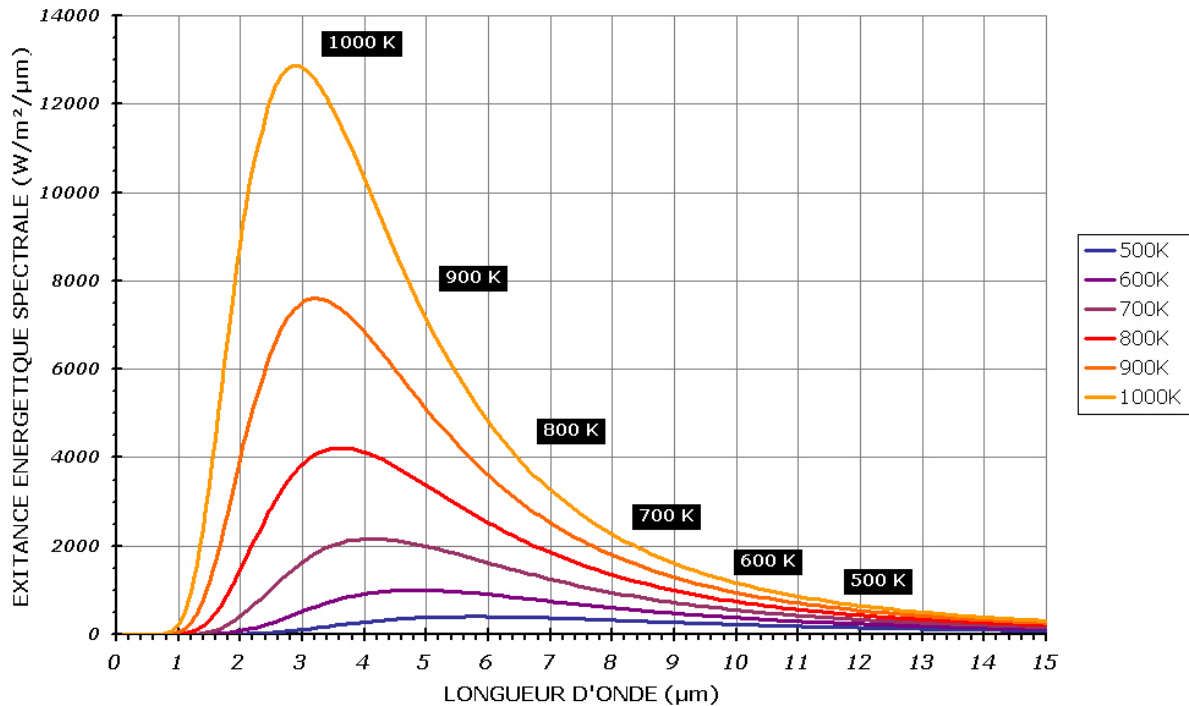
$h$  : constante de Planck ( $6,6 \cdot 10^{-34}$  J.s)

$c$  : vitesse de la lumière ( $3 \cdot 10^8$  m/s)

$\lambda$  : longueur d'onde (m)

$k_B$  : constante de Boltzmann ( $1,4 \cdot 10^{-23}$  J/K)

$T$  : température absolue d'un corps noir (K)



**Figure 22 : Variation de l'exittance énergétique spectrale en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures (500 K-1000 K)**

La représentation graphique (Figure 22) de l'exittance énergétique spectrale en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures génère une famille de courbes. Pour chaque courbe de Planck, l'exittance spectrale tend vers zéro pour des longueurs d'onde courtes, puis elle atteint rapidement un maximum à une longueur d'onde  $\lambda_{\max}$ . Après avoir dépassé cette valeur, l'exittance diminue et tend vers zéro.

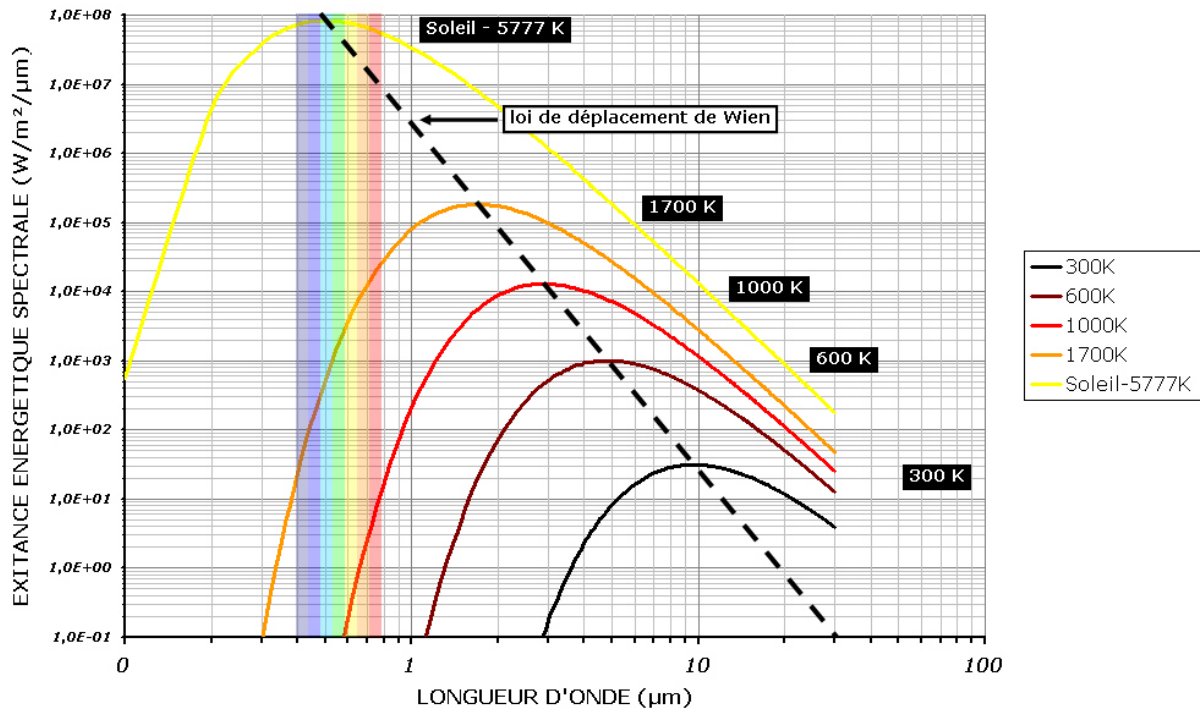
### (iii) La loi de déplacement de Wien

En différenciant la formule de Planck par rapport à  $\lambda$  et en cherchant le maximum, on obtient la formule de Wien :

$$\lambda_{\max} = \frac{2898}{T} [\mu m] \quad \text{Équation 109}$$

avec  $T$  en  $K$





**Figure 23 : Variation de l'exitance énergétique spectrale en fonction de la longueur d'onde pour différentes températures (loi de Planck) et ligne reliant les maxima des courbes (300 K-5777 K)**

La Figure 23 représente comme la Figure 22 les courbes de Planck, mais entre 300 K et 5777 K (température du soleil), ainsi qu'une courbe reliant les maxima d'exitance énergétique spectrale de chaque isotherme. On observe un déplacement vers les longueurs d'onde plus courtes du maximum d'exitance énergétique spectrale lorsque la température du corps rayonnant augmente. Cette loi de déplacement de Wien traduit de manière mathématique l'observation courante selon laquelle la couleur visible d'un corps rayonnant passe du rouge, à l'orange ou au jaune au fur et à mesure que sa température augmente. La longueur d'onde de la couleur est identique à celle calculée pour  $\lambda_{\max}$ .

Par exemple, à la température ambiante (300 K), le pic de l'exitance énergétique est de 9,7  $\mu\text{m}$ , dans l'infrarouge lointain, alors que pour le soleil (5777 K), le pic est d'environ 0,5  $\mu\text{m}$ , d'où sa couleur jaune.

#### (iv) La loi de Stefan-Boltzmann

En intégrant la formule de Planck de  $\lambda = 0$  à  $\lambda = \infty$ , on obtient l'exitance énergétique totale ( $W_b$ ) d'un corps noir, représentée par l'aire sous la courbe de Planck à la température  $T$  :

$$W_b = \sigma.T^4 \text{ [W/m}^2\text{]} \quad \text{Équation 110}$$

$\sigma$  : constante de Stefan-Boltzmann ( $5,67.10^{-8} \text{ W/m}^2\text{/K}^4$ )

Cette formule indique que le pouvoir émissif total d'un corps noir est proportionnel à sa température absolue à la puissance quatre.

### **(v) Cas des émetteurs non noirs (objets réels)**

Dans la plupart des cas, les objets réels ne sont pas compatibles avec les lois énoncées précédemment dans une région de longueur d'onde étendue. Cependant, ils peuvent s'en approcher dans certains intervalles spectraux réduits.

Trois processus peuvent être la cause d'une différence de comportement entre un objet réel et un corps noir. Dans un objet réel, une fraction du rayonnement  $\alpha$  peut être absorbée, une fraction  $\rho$  peut être réfléchi et une fraction  $\tau$  peut être transmise. Ces trois facteurs dépendent de la longueur d'onde et sont définis comme suit :

- le facteur spectral d'absorption  $\alpha_\lambda$  : le rapport entre la puissance énergétique spectrale absorbée par un objet et celle incidente.

- le facteur spectral de réflexion  $\rho_\lambda$  : le rapport entre la puissance énergétique spectrale réfléchi par un objet et celle incidente.

- le facteur spectral de transmission  $\tau_\lambda$  : le rapport entre la puissance énergétique spectrale transmise par un objet et celle incidente.

La somme de ces trois facteurs est toujours égale à 1, quelle que soit la longueur d'onde.

$$\alpha_\lambda + \rho_\lambda + \tau_\lambda = 1 \quad \text{Équation 111}$$

Un autre facteur, appelée émissivité  $\varepsilon$ , est requis pour décrire la fraction de l'exitance énergétique d'un corps noir produit par un objet à une température spécifique. Ainsi, on définit :

- le facteur spectral d'émissivité  $\varepsilon_\lambda$  : le rapport entre la puissance énergétique d'un objet et de celle d'un corps noir, à la même température et pour la même longueur d'onde.

$$\varepsilon_\lambda = \frac{W_{\lambda o}}{W_{\lambda b}} \quad \text{Équation 112}$$

Généralement il existe trois types de source de rayonnement :

- le corps noir, pour lequel  $\varepsilon_\lambda = \varepsilon = 1$  ;

- le corps gris, pour lequel  $\varepsilon_\lambda = \varepsilon = \text{constante}$ , inférieure à 1 ;

- le radiateur sélectif, pour lequel  $\varepsilon$  varie avec la longueur d'onde.

Selon la loi de Kirchhoff, pour n'importe quel matériau, les facteurs d'émissivité et d'absorption spectrales d'un corps sont égaux aux températures et longueurs d'onde définies donc :

$$\varepsilon_{\lambda} = \alpha_{\lambda} \quad \text{Équation 113}$$

Ainsi, d'après les équations 7 et 9, pour un matériau opaque ( $\tau_{\lambda} = 0$ ), on a :

$$\varepsilon_{\lambda} + \rho_{\lambda} = 1 \quad \text{Équation 114}$$

Pour un matériau parfaitement réfléchissant (miroir parfait), ce qui est le cas des matériaux parfaitement polis, on en déduit :

$$\rho_{\lambda} = 1 \Leftrightarrow \varepsilon_{\lambda} = 0 \quad \text{Équation 115}$$

Par ailleurs, pour un corps gris, la formule de Stefan-Boltzmann (Equation 110) devient :

$$W_o = \varepsilon \cdot \sigma \cdot T^4 \quad \text{Équation 116}$$

La puissance émissive totale d'un corps gris est réduite proportionnellement de la valeur  $\varepsilon$  par rapport à celle d'un corps noir à la même température.

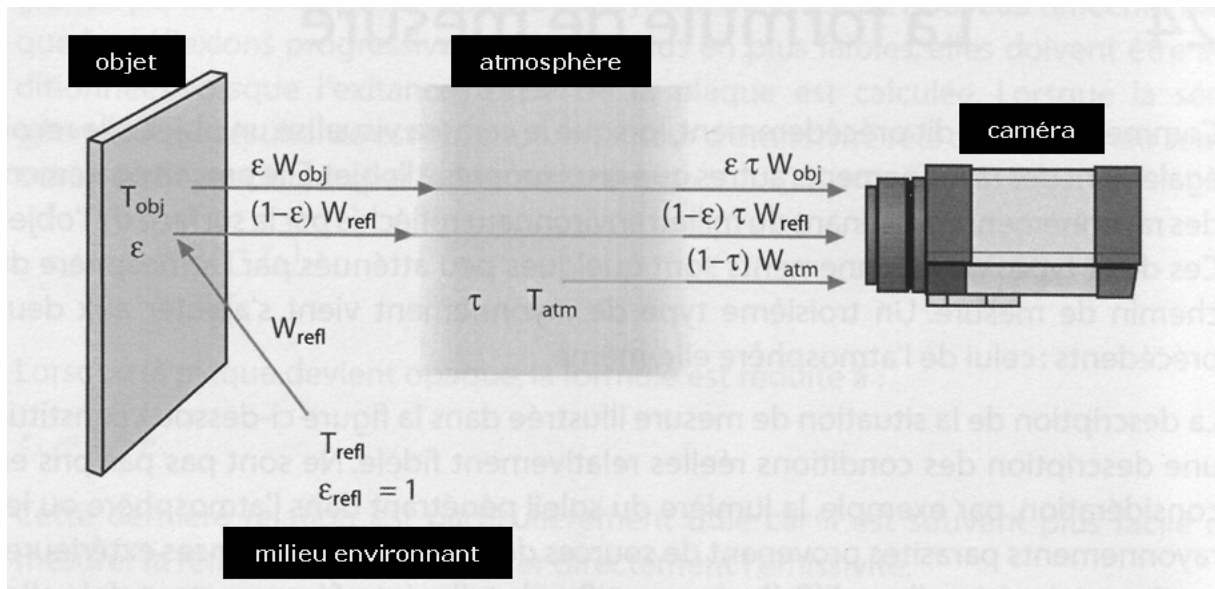
### II.B.1.c. Techniques de mesure thermographique

#### **(i) Principe**

Une caméra IR mesure et visualise le rayonnement infrarouge d'un objet. A partir de ce rayonnement, qui est fonction de la température de surface de l'objet, elle peut calculer la température correspondante. Cependant, le rayonnement mesuré par la caméra dépend aussi de l'émissivité de l'objet. De plus, le rayonnement provenant du milieu environnant est également réfléchi sur l'objet. Enfin, le rayonnement émanant de l'objet et le rayonnement réfléchi sont également influencés par l'absorption de l'atmosphère sur le chemin de mesure entre l'objet et la caméra.

La situation de la mesure, illustrée sur la Figure 24, constitue une description assez fidèle des conditions réelles. Cette description exclue volontairement toute interférence telle que la lumière du soleil pénétrant dans l'atmosphère ou les rayonnements parasites provenant de sources de rayonnement intenses extérieures au champ de vision. En effet, bien que généralement suffisamment faibles pour être ignorées, ces interférences seraient difficiles à quantifier. De toute manière, dans notre cas la configuration de la mesure est telle que ces sources d'interférence sont supprimées : la caméra est en

contact avec une pièce maintenant la fenêtre en ZnSe ce qui exclut de son champ de vision toute source extérieure à celles provenant de la cavité.



**Figure 24 : Représentation schématique d'une situation de mesure thermographique générale où la température d'un objet est mesurée par la caméra en tenant compte du milieu environnant et de l'atmosphère [FLI 04]**

A partir de la description de cette situation de mesure, on peut en déduire la formule de mesure utilisée par la caméra pour calculer la température de l'objet.

Tout d'abord, si l'on considère que la puissance du rayonnement perçu  $W$  provenant d'un corps noir à la température  $T_{source}$  génère un signal de sortie de caméra  $U_{source}$  proportionnel à la puissance d'entrée, alors on peut écrire :

$$U_{source} = K.W(T_{source}) = K.W_{source} \quad \text{Équation 117}$$

avec  $K$ , constante de proportionnalité de la caméra.

Si la source est un corps gris d'émissivité  $\epsilon$ , alors la puissance du rayonnement perçu est de la forme  $\epsilon.W_{source}$ , d'où la formule du signal de sortie de la caméra :

$$U_{source} = K.\epsilon.W_{source} \quad \text{Équation 118}$$

A partir de ces quelques considérations, on peut en déduire :

- l'émission provenant de l'objet :

$$\varepsilon \cdot \tau \cdot W_{obj}$$

Équation 119

$\varepsilon$ , le facteur d'émissivité de l'objet

$\tau$ , le facteur de transmission de l'atmosphère

$W_{obj}$ , la puissance de rayonnement de l'objet à la température  $T_{obj}$

- l'émission réfléchie provenant de sources ambiantes :

$$(1 - \varepsilon) \cdot \tau \cdot W_{refl}$$

Équation 120

$(1 - \varepsilon)$ , le facteur de réflexion de l'objet

$\tau$ , le facteur de transmission de l'atmosphère

$W_{refl}$ , la puissance de rayonnement des sources ambiantes à la température  $T_{refl}$

Par simplification, la température  $T_{refl}$  est supposée identique pour toutes les surfaces qui émettent un rayonnement dans une demi-sphère à partir d'un point de la surface de l'objet. Par ailleurs, l'émissivité du milieu environnant ( $\varepsilon_{refl}$ ) est égale à 1.

- l'émission provenant de l'atmosphère :

$$(1 - \tau) \cdot W_{atm}$$

Équation 121

$(1 - \tau)$ , l'émissivité de l'atmosphère

$W_{atm}$ , la puissance de rayonnement de l'atmosphère à la température  $T_{atm}$

La puissance totale rayonnée est alors la somme de chacune des émissions décrites :

$$W_{tot} = \varepsilon \cdot \tau \cdot W_{obj} + (1 - \varepsilon) \cdot \tau \cdot W_{refl} + (1 - \tau) \cdot W_{atm}$$

Équation 122

Ceci revient en termes de signal de sortie à l'expression suivante :

$$U_{tot} = \varepsilon \cdot \tau \cdot U_{obj} + (1 - \varepsilon) \cdot \tau \cdot U_{refl} + (1 - \tau) \cdot U_{atm}$$

Équation 123

d'où

$$U_{obj} = \frac{1}{\varepsilon \cdot \tau} \cdot U_{tot} - \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} \cdot U_{refl} - \frac{1 - \tau}{\varepsilon \cdot \tau} \cdot U_{atm}$$

Équation 124

$U_{obj}$ , tension de sortie de la caméra calculée pour un corps noir à la température  $T_{obj}$

$U_{tot}$ , tension de sortie de la caméra mesurée

$U_{refl}$  et  $U_{atm}$ , respectivement, tension de sortie de la caméra pour un corps noir d'une température  $T_{refl}$  et  $T_{atm}$  d'après l'étalonnage.

Finalement, pour mesurer la température avec le plus de précision possible, il est nécessaire de compenser les effets des différentes sources de rayonnement. Le logiciel d'acquisition et d'analyse des images provenant de la caméra (ThermaCAM™ Researcher Pro 2.8 SR-2) effectue automatiquement ces corrections à partir des valeurs de différents paramètres. Ces données sont déterminées par l'utilisateur (mesure, estimation ou données provenant de tables) et peuvent être renseignées dans le logiciel soit avant, soit après, soit en cours d'acquisition d'images et de mesures. Ces paramètres, relatifs à l'objet, à l'atmosphère, à l'environnement de l'objet et, le cas échéant, à l'optique externe sont les suivants :

- l'émissivité de l'objet ( $\varepsilon$ )
- l'humidité relative de l'atmosphère ( $H\%$ )
- la température de l'atmosphère ( $T_{atm}$ )
- la distance entre l'objet et la caméra ( $d_{obj-cam}$ )
- la température ambiante réfléchie ( $T_{refl}$ )
- la température ( $T_{opt}$ ) et la transmission ( $T\%$ ) d'optique externe

## **(ii) Emissivité**

Parmi tous ces paramètres, l'émissivité est le plus important et doit être estimée avec le plus de précision. L'obtention de l'émissivité d'un objet peut se faire à l'aide d'un thermocouple ou à partir des émissivités de référence. Dans le premier cas, on modifie l'émissivité de l'objet de référence pour que la température mesurée par la caméra corresponde à la mesure du thermocouple sur la même zone de référence de l'objet. Dans le second cas, on place sur l'objet une bande ou de la peinture dont l'émissivité est connue. On mesure ensuite la température de la bande ou de la peinture à l'aide de la caméra, en attribuant la valeur appropriée d'émissivité. On modifie ensuite l'émissivité, jusqu'à ce que la zone dont l'émissivité est inconnue, adjacente à la bande ou à la peinture, ait la même température. Pour ces deux méthodes de détermination d'émissivité, la température de l'objet de référence ne doit pas être trop proche de la température ambiante.

Généralement, l'émissivité des matériaux est comprise entre 0,1 et 0,95. Une surface très polie a une émissivité inférieure à 0,1, alors qu'une surface oxydée ou peinte a une émissivité beaucoup plus élevée. Les métaux oxydés représentent un cas extrême d'opacité quasi parfaite et de réflexivité spectrale élevée qui varie peu avec la longueur d'onde. Par conséquent, l'émissivité des métaux est faible, et elle augmente avec la température. L'émissivité des objets non métalliques est plus élevée et diminue avec la température.

### **(iii) Paramètres d'environnement entre l'objet et la caméra**

La température réfléchie d'environnement permet de compenser le rayonnement réfléchi par l'objet et le rayonnement émis par l'atmosphère entre la caméra et l'objet. Ce paramètre devient important uniquement lorsque l'émissivité est faible, la distance est très grande et la température de l'objet est relativement proche de la température réfléchie d'environnement. Dans ce cas, il doit alors être défini avec précision

La distance entre l'objet et l'objectif permet de compenser l'absorption du rayonnement entre l'objet et la caméra, ainsi que la diminution du facteur de transmission lorsque la distance augmente.

La caméra peut également compenser la légère variation du facteur de transmission de l'atmosphère qui dépend de l'humidité relative. Pour les courtes distances et une humidité normale, la valeur par défaut de l'humidité relative (50 %) peut être conservée.

### **(iv) Paramètres de l'optique externe**

La présence d'une optique externe (fenêtre ZnSe dans notre cas) placée devant l'objectif de la caméra doit être prise en compte en indiquant sa température et sa transmission dans le logiciel ThermaCAM™ Researcher.

#### *II.B.1.d. Caractéristiques techniques principales*

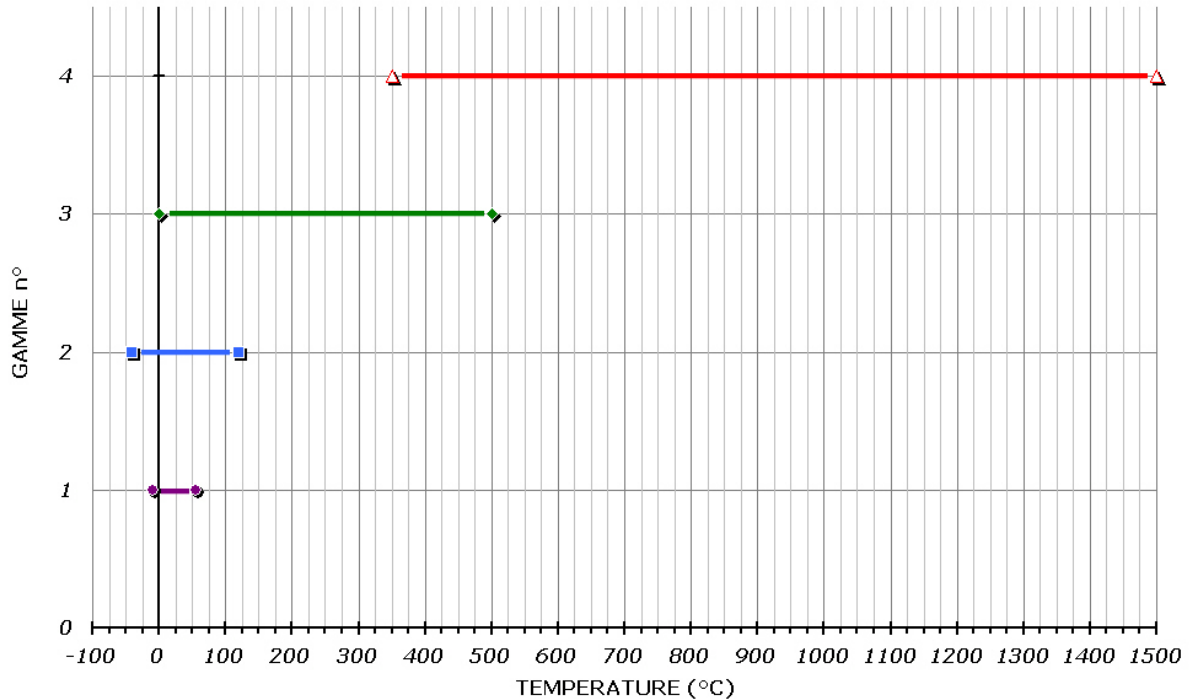
La caméra FLIR Systems™ ThermoVision™ A40M utilisée dispose de quatre plages de mesure de températures (Figure 25) :

n°1 : -10°C → +55°C

n°2 : -40°C → +120°C

n°3 : 0°C → +500°C

n°4 : +350°C → +1500°C



**Figure 25 : Représentation des intervalles de mesure de température en fonction de la gamme choisie**

Pour mesurer la température des matériaux en continu entre la température ambiante et la température de frittage, deux détecteurs successifs et internes à la caméra sont utilisés : l'un, sur la gamme "0°C - +500°C", pour des températures allant de l'ambiante à environ 400°C et l'autre, sur la gamme "+350°C - +1500°C", pour des températures supérieures. La réponse de chaque détecteur est linéaire sur la gamme considérée. La précision est de  $\pm 2^\circ\text{C}$  ou  $\pm 2\%$  du relevé.

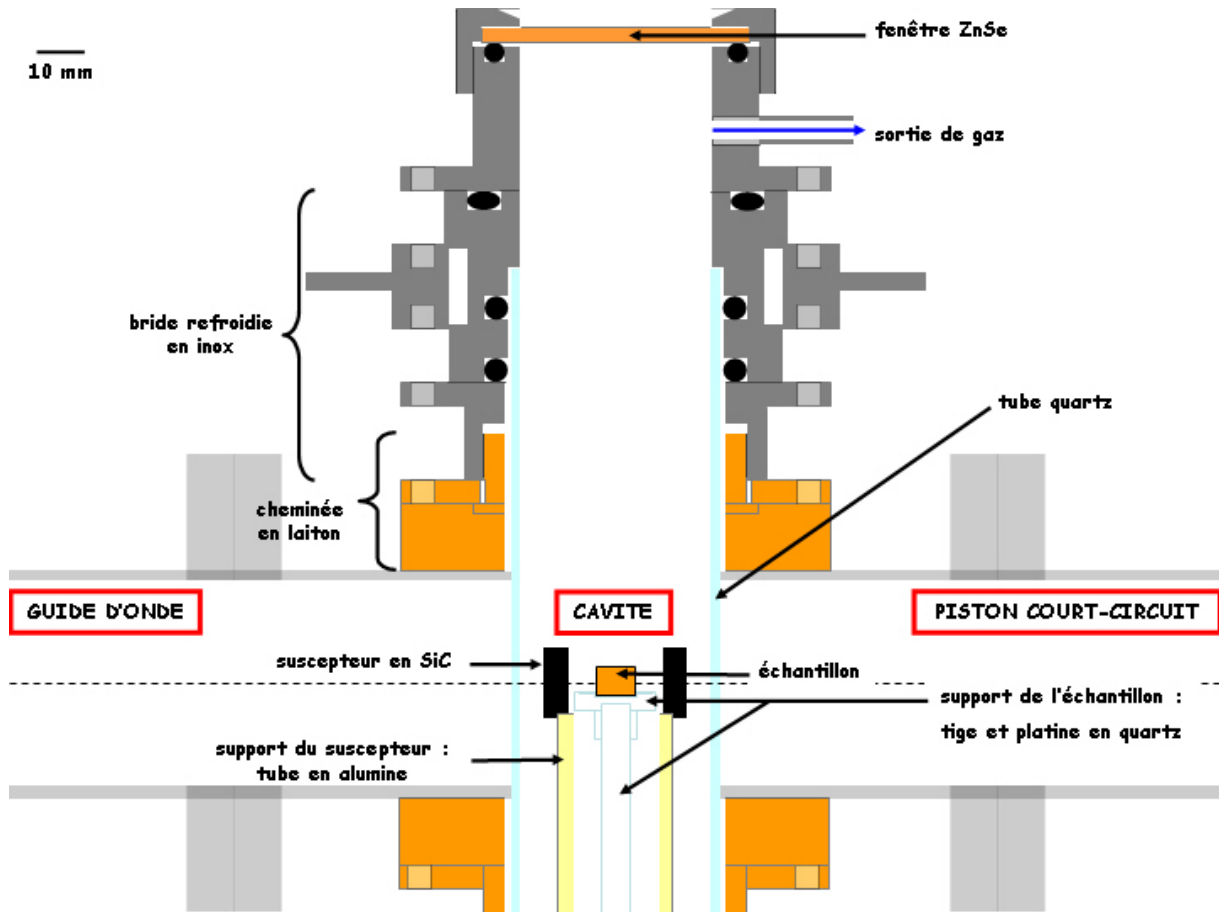
## II.B.2. ENVIRONNEMENT DE L'ECHANTILLON

### II.B.2.a. Atmosphère de frittage

Notre cavité résonante monomode est représentée en coupe sur la Figure 26. Les ouvertures circulaires en-dessous et au-dessus ont été utilisées pour faire passer un tube en quartz de part et d'autre de la cavité. Ce tube de diamètres interne/externe 40/44 mm est en quartz car c'est un matériau dit transparent aux micro-ondes donc il ne perturbera pas le champ électromagnétique. Il est centré dans la cavité et maintenu à chacune de ses extrémités par une bride refroidie en acier inoxydable (conception Alain Domeyne, SIMaP/PMD). Il constitue une enceinte à l'intérieur de laquelle l'échantillon peut être placé sous différentes atmosphères contrôlées (oxydantes, neutres,



réductrices, vide primaire). Ce tube permet par ailleurs de protéger l'intérieur de la cavité d'éventuellement dégagements gazeux, de projections ou de formations d'arcs électriques entre l'échantillon et les parois conductrices de la cavité.



**Figure 26 : Coupe longitudinale (selon Oz) de la cavité micro-ondes dans une configuration de chauffage avec suscepteur**

### II.B.2.b. Positionnement de l'échantillon et du suscepteur

Le matériau à chauffer placé sur son support est introduit à l'intérieur de ce tube en quartz par le dessous de la cavité. Ce support (conception Gilles Boutet, SIMaP/GPM2) est un système composé de raccords étanches prenant appui sur la bride inférieure maintenant le tube en quartz en l'obturant et d'un ensemble de tiges et de tubes permettant le déplacement indépendant d'un support de l'échantillon et d'un support du suscepteur cylindrique. Deux configurations et trois modes de chauffage sont alors possibles :

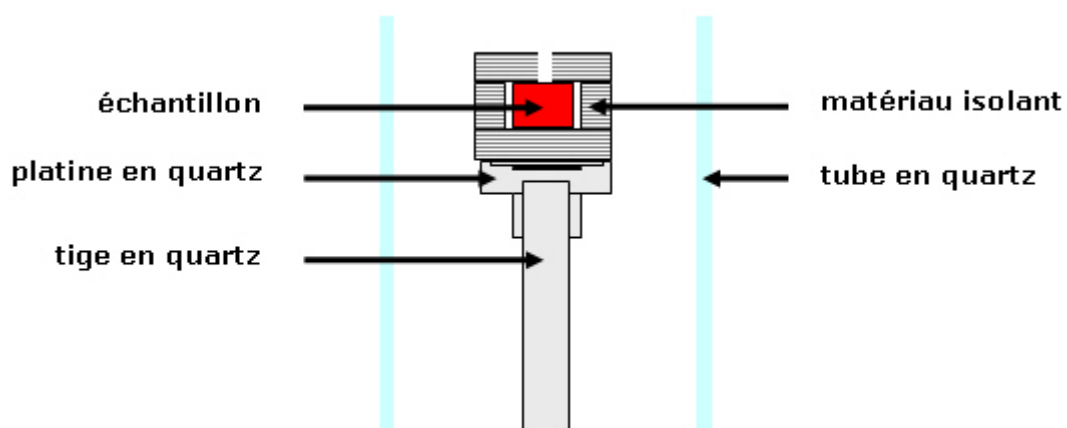
- sans suscepteur : chauffage micro-ondes direct ;
- avec suscepteur : chauffage micro-ondes indirect ou chauffage micro-ondes hybride.

Lors de la conception de ce système à déplacement indépendant de l'échantillon et du suscepteur, l'idée était de pouvoir préchauffer des matériaux couplant faiblement à température ambiante jusqu'à leur température critique grâce au suscepteur (chauffage indirect) et de retirer le suscepteur pour réaliser ensuite du chauffage direct par micro-ondes. En réalité, le retrait du suscepteur entraîne un refroidissement rapide de l'échantillon. On suppose que la modification de ce que l'on pourrait appeler la "charge" de la cavité (supports, suscepteur, échantillons, isolant) induite par le déplacement du suscepteur modifie la configuration spatiale du champ électromagnétique. Par conséquent, l'intensité du champ électromagnétique dans l'environnement de l'échantillon n'est plus suffisante pour au moins maintenir sa température. Idéalement, la puissance incidente et les positions de l'iris et du piston devraient être réajustées quasi instantanément. Cette possibilité de retirer le suscepteur n'a donc pas été utilisée jusqu'à présent.

### II.B.2.c. Une seule cavité, plusieurs modes de chauffage

#### **(i) chauffage micro-ondes sans suscepteur, dit direct**

Pour les matériaux à fortes pertes, le couplage avec le champ électromagnétique permet un chauffage direct et rapide. L'échantillon est alors entouré d'un isolant pour limiter les pertes thermiques par rayonnement et ainsi limiter les gradients thermiques entre le cœur et la surface du matériau (Figure 27). Ce mode de chauffage sera appelé par la suite chauffage micro-ondes direct.



**Figure 27 : Environnement de l'échantillon pour le chauffage par micro-ondes sans suscepteur (direct)**

Les matériaux isolants utilisés sont des fibres céramiques (silice-alumine), se présentant sous forme de feutres ( $\sim 1$  mm d'épaisseur) ou de plaques ( $\sim 5-8$  mm d'épaisseur). Ces fibres réfractaires sont employées couramment dans des fours conventionnels pour les très hautes températures ( $> 1000^\circ\text{C}$ ). Ces matériaux, simples à manipuler et à mettre en forme, peuvent s'adapter à de multiples configurations et être remplacés facilement ; ils conviennent bien pour réaliser des petites séries d'essais, comme au cours de notre étude.

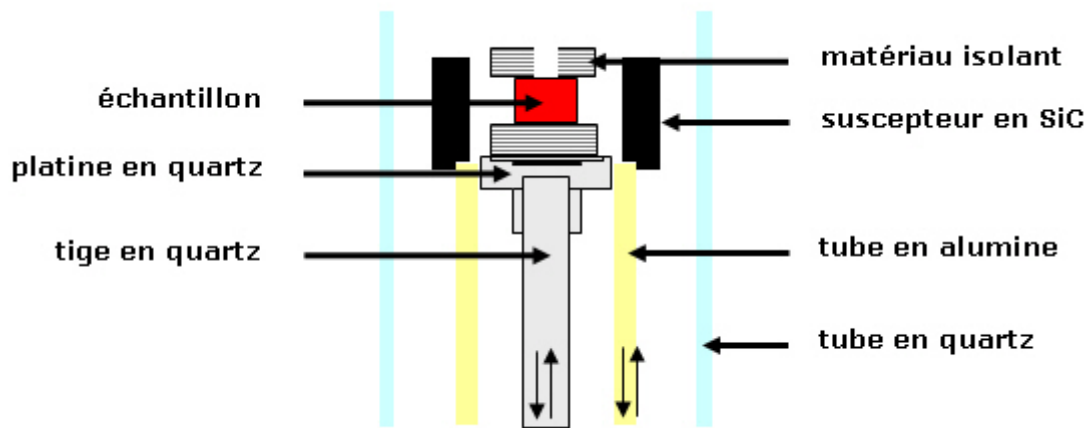
Sinon, en fonction des températures de chauffage visées, du volume de la cavité et des pièces à fritter, il est recommandé de concevoir des systèmes d'isolation plus sophistiqués et pérennes. Selon la nature et l'arrangement des matériaux isolants, des systèmes constitués de plusieurs couches d'isolants fibreux et granulaires peuvent être efficaces jusqu'à des températures de  $2100^\circ\text{C}$  [XU 03].

## **(ii) chauffage micro-ondes avec suscepteur : indirect ou hybride ?**

Pour les matériaux transparents, opaques ou à faibles pertes, un suscepteur doit être introduit dans la cavité. Un suscepteur est constitué d'un matériau à fortes pertes donc chauffant aisément sous champ micro-ondes. Le suscepteur convertit l'énergie électromagnétique en chaleur qu'il va transmettre essentiellement par rayonnement à l'échantillon : c'est le chauffage micro-ondes indirect.

Dans notre cas, on utilise un suscepteur cylindrique en carbure de silicium qui est placé autour de l'échantillon (Figure 28). Ses dimensions sont les suivantes : diamètres intérieur/ extérieur = 20/30 mm, hauteur = 15 mm. Ce suscepteur cylindrique a été usiné dans un bloc de carbure de silicium de structure hexagonale, variété allotropique 6H. Ce matériau a prouvé expérimentalement qu'il couplait bien avec les micro-ondes (champ électrique) et qu'il remplissait correctement son rôle de suscepteur.

Pour les matériaux à faibles pertes, le suscepteur peut servir à préchauffer les échantillons jusqu'à certaines températures, dites températures critiques [SUT 89]. A partir de cette température critique, le facteur des pertes diélectriques augmente et l'échantillon commence à coupler plus fortement avec les micro-ondes. Dans ce cas, lorsque l'échantillon couple directement avec les micro-ondes et bénéficie d'un apport de chaleur par rayonnement du suscepteur, on parle de chauffage hybride.



**Figure 28 : Environnement de l'échantillon pour le chauffage par micro-ondes avec suscepteur (indirect ou hybride)**

Ces deux derniers modes de chauffage ne sont pas dépourvus d'intérêt. Devant les difficultés de réalisation et de maîtrise du chauffage direct par micro-ondes, ce sont les modes de chauffage les plus fréquemment employés. L'intérêt du chauffage par micro-ondes réside alors essentiellement dans sa rapidité liée à la faible inertie du système. En effet, contrairement à un four résistif/électrique conventionnel, une puissance très élevée peut être disponible quasi-instantanément dans la cavité pour chauffer très rapidement le suscepteur, qui fait office de source de chaleur pour l'échantillon. De plus, le refroidissement peut être beaucoup plus rapide du fait de l'inertie moindre de la cavité micro-ondes.

#### II.B.2.d. Emplacement de la caméra IR

La température des objets placés dans la cavité est mesurée par une caméra thermique infrarouge FLIR Systems™ ThermoVision™ A40M. Les spécifications techniques de cette caméra sont reportées en annexe. La caméra est placée au-dessus de la cavité et fournit en continu une image thermique de la surface supérieure des objets.

La pièce en acier inoxydable reposant sur la bride supérieure intègre une sortie de gaz latérale et une fenêtre en séléniure de zinc (ZnSe) ayant plusieurs fonctions :

- assurer l'étanchéité de l'enceinte formée par le tube en quartz en obturant l'ouverture supérieure de la cavité ;
- protéger l'objectif de la caméra des projections, des plasmas et des arcs électriques ;
- filtrer le rayonnement émis par les matériaux chauffés dans la cavité afin de mesurer leur température avec la caméra thermique: sa transmission est maximale (70%) dans la gamme de longueur d'onde  $7 \mu\text{m} < \lambda < 13 \mu\text{m}$ .

Pour obtenir une résolution spatiale maximale avec la caméra thermique, la hauteur de la cheminée supérieure a été réduite et la bride supérieure a été vissée directement sur celle-ci. En plus de respecter la distance minimale de mise au point de la caméra, la contrainte était que la hauteur de l'ensemble {cheminée-bride} soit suffisante pour éviter les fuites électromagnétiques hors de la cavité. Finalement, la distance entre le centre de la cavité et la caméra thermique est de 14 cm ce qui conduit à une résolution spatiale d'environ 190  $\mu\text{m}/\text{pix}$ .

## II.C. INSTRUMENTATION

L'objectif de ce travail d'instrumentation a été de réaliser :

- (i) l'acquisition, le traitement et l'enregistrement des informations disponibles : puissances électromagnétiques, position du piston, températures de l'échantillon et du suscepteur pour conserver le "film" de l'expérience ;
- (ii) la commande de la puissance incidente et du moteur permettant le déplacement du piston court-circuit pour maîtriser la puissance électromagnétique transmise à au(x) matériau(x).

L'acquisition et le traitement de ces données devra permettre un asservissement total du four micro-ondes afin de maîtriser un cycle thermique.

La partie la plus technique de ce travail a été confiée à trois étudiants de l'école Phelma, filière SICOM dans le cadre d'un projet d'électronique. Leur projet, dont un extrait du rapport figure en annexe I, consistait à finaliser le développement de ce four par la mise en place d'un système d'acquisition/commande/régulation (interface/programme LabVIEW) permettant une "automatisation" / "pilotage" des cycles de chauffage par la commande de plusieurs appareils (moteur pas-à-pas et puissance d'un générateur).

### II.C.1. ACQUISITION DES DONNEES

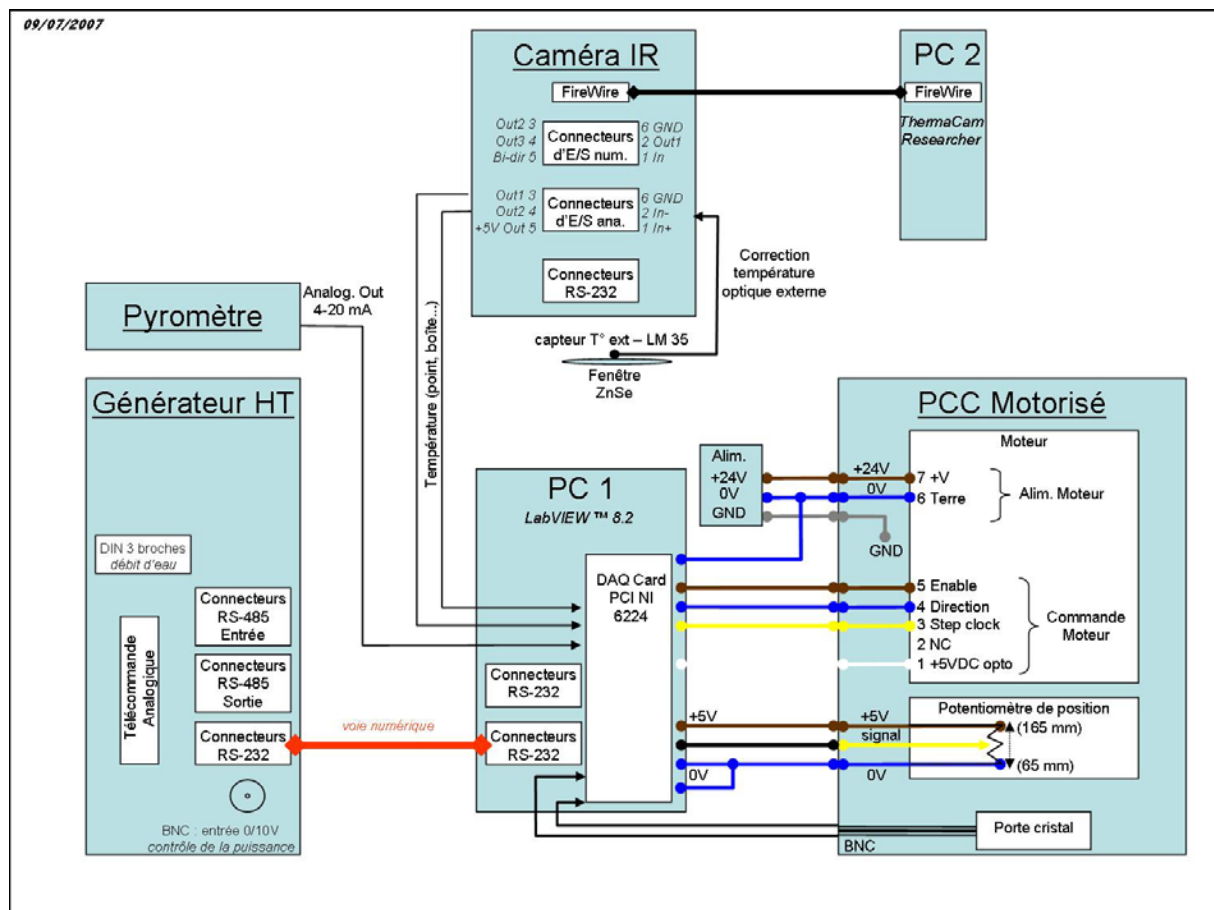
Les données à acquérir sont de trois types : température, puissances électromagnétiques, position du piston court-circuit.

La température de l'échantillon, et éventuellement du suscepteur, provient de la caméra IR et pourrait aussi provenir d'un pyromètre. Cette donnée est disponible sur une sortie analogique de la caméra (tension) qu'il suffit de convertir en température.

Les puissances électromagnétiques sont au nombre de trois : la puissance incidente délivrée par le magnétron et la puissance réfléchie mesurée par un porte-cristal détecteur placé dans l'isolateur. Ces deux valeurs sont disponibles dans le générateur HT

et récupérable via une liaison numérique ; la troisième puissance est la puissance mesurée dans la paroi du piston court-circuit par un porte-cristal détecteur. La mesure de la position du piston est réalisée via un potentiomètre.

L'acquisition des données se fait par différentes liaisons physiques, via une liaison numérique (connecteurs RS-232) pour les données provenant du générateur HT, via une carte d'acquisition (NI-DAQ 6224) installée dans l'ordinateur PC1 pour les autres données: ces données sont traitées grâce au logiciel LabVIEW™. L'ordinateur PC2 est dédié à la visualisation en continu des images fournie par la caméra IR grâce au logiciel ThermoCam Researcher. Le diagramme des connexions physiques est présenté dans la Figure 29.



**Figure 29 : Schéma des connexions entre la caméra IR (et éventuellement le pyromètre), le générateur HT, le piston et le PC1, puis la caméra IR et le PC2**

Enfin, la correction de la température en fonction de la température de l'optique externe (fenêtre en ZnSe) a été réalisée au moyen d'un composant électronique type LM35 relié directement à une entrée analogique de la caméra.

### II.C.2. PROCEDURE DE REGULATION DU FOUR

Les études expérimentales menées pour maîtriser un cycle thermique manuellement seront présentées dans le chapitre III. Sur la base de ces travaux, une procédure de régulation a été imaginée. Le développement technique de cette procédure de régulation a été mise en place par les étudiants dans le cadre de leur projet.

Pour résumer et simplifier, cette procédure consiste à contrôler, à puissance incidente constante, la position du piston pour que l'échantillon suive une consigne de température. Dans cette procédure, la puissance incidente est laissée à l'appréciation de l'opérateur, ce qui peut représenter un inconvénient : l'opérateur doit déjà avoir une expérience sur le chauffage de son échantillon (matériau, géométrie, type de chauffage) ou procéder par tâtonnements. Malgré cela, une méthode d'asservissement a été mise au point, avec une certaine dose d'empirisme pour ajuster certains paramètres.

Cette procédure n'a pas encore pu être testée lors d'un cycle de frittage complet. Les travaux futurs devront permettre d'affiner la procédure de régulation sur un matériau dont la maîtrise du frittage est relativement aisée. Ensuite, plusieurs vitesses de chauffage pourront être explorées par la procédure d'asservissement automatique.

### II.D. MODELISATION 3D PAR ELEMENTS FINIS DU FRITTAGE MICRO-ONDES DE ZIRCONES DANS UNE CAVITE MONOMODE [BOU 10]

Le frittage micro-ondes est un processus complexe comprenant plusieurs phénomènes fortement couplés : l'électromagnétisme, les transferts d'énergie et de chaleur et enfin le frittage. En effet, l'absorption et la conversion d'énergie par le matériau, qui gouvernent le chauffage et donc le frittage, dépendent de paramètres du matériau, eux-mêmes fonction de la température et du champ électromagnétique et évoluant aussi au cours du frittage. La prise en compte de tous ces phénomènes couplés est nécessaire pour modéliser le frittage micro-ondes de façon réaliste. Idéalement, cette modélisation devrait être multi-échelle en considérant les couplages à l'échelle microscopique, c'est-à-dire les interactions entre particules de poudres, et les phénomènes à l'échelle macroscopique en assimilant le matériau fritté à un milieu continu. Nous nous contenterons ici de modélisations macroscopiques.

Le but de ces modélisations du frittage micro-ondes est d'estimer la distribution du champ électromagnétique dans notre cavité monomode et dans les matériaux en fonction de la taille de l'échantillon ou de la présence du suscepteur, de montrer l'influence de la présence d'un suscepteur sur la distribution du champ à l'intérieur et dans le voisinage

de l'échantillon ou encore de déterminer la distribution de température en fonction de l'isolation de l'échantillon.

### II.D.1. DESCRIPTION GENERALE

#### II.D.1.a. La cavité monomode modèle

On rappelle que la cavité résonante monomode de cette étude comprend un guide d'onde rectangulaire avec un iris de couplage, la partie centrale où sont placés l'échantillon, et éventuellement le suscepteur, sur leur support respectif, et pour finir le piston court-circuit qui ferme la cavité à l'extrémité opposée au magnétron. Par mesure de simplification, la cavité modèle n'est constituée que du guide d'onde, constitué d'un matériau conducteur, de section rectangulaire et fermé à une extrémité par une paroi conductrice faisant office de piston court-circuit. Cette cavité modèle reprend la section de notre cavité monomode, en excluant l'iris et les cheminées. La modélisation du phénomène de résonance dans la cavité étant délicate, les calculs rendent compte de la modélisation d'une onde stationnaire, qui est formée uniquement par la superposition de l'onde incidente provenant du magnétron et de celle réfléchiée par la paroi conductrice fermant la cavité (piston). Il n'y a pas de superposition multiple permettant d'accroître la puissance électromagnétique dans la cavité. En général, la puissance incidente est fixée pour que l'échantillon atteigne la température maximale souhaitée, sans maîtriser la vitesse de chauffage. Néanmoins, si on le souhaitait, la puissance électromagnétique dans la cavité pourrait être modulée en faisant varier la valeur de la puissance incidente de sorte que l'échantillon suive un cycle thermique prédéterminé.

#### II.D.1.b. Le code de calcul : COMSOL Multiphysics

Les modélisations ont été réalisées à une échelle macroscopique avec le code de calcul par éléments finis COMSOL Multiphysics en 3D. Ces simulations prennent en compte l'électromagnétisme, les transferts de chaleur et la densification et une partie de leurs couplages. Trois modèles ont été utilisés :

- Electromagnetics Waves (référence COMSOL : "rfv") en propagation harmonique,
- Heat Transfer by Conduction ("ht"), en régime transitoire, et dans l'échantillon uniquement,
- Partial Differential Equations, General Form ("g"), en régime transitoire avec comme variable la densité relative.



Plusieurs hypothèses ont été faites pour décrire approximativement le comportement de la poudre de zircone :

- la permittivité complexe de l'échantillon est une fonction de la température,
- la conductivité thermique de l'échantillon est une fonction de la densité relative ( $\rho_r$ ),
- la vitesse de densification est une fonction de la température et de la densité relative.

#### II.D.1.c. La résolution du calcul pas à pas

Le processus itératif de la simulation est le suivant. A un instant donné, le calcul donne la distribution du champ électromagnétique dans toute la cavité, y compris dans l'échantillon, ainsi que l'énergie absorbée par ce dernier. Dans le cas d'un matériau diélectrique, cette énergie dépend de l'amplitude du champ électrique dans l'échantillon et de sa permittivité diélectrique complexe. Celle-ci devient alors une source interne pour le chauffage du matériau et donne naissance un flux de chaleur sortant de l'échantillon en fonction des conditions limites thermiques imposées. La variation de la température résultant en chaque point de l'échantillon est calculée à l'incrément de temps suivant. La densité du matériau en chaque point de l'échantillon, conséquence de l'augmentation locale de la température dans l'échantillon, est actualisée à partir de l'intégration de la loi de densification prescrite. La densification du matériau engendre une déformation de l'échantillon. Cependant, pour simplifier, on suppose que les dimensions de l'échantillon ne changent pas. Cela signifie donc que la densité relative est un paramètre local décrivant la microstructure du matériau mais n'affectant pas la géométrie de l'échantillon fritté. Par conséquent, les contraintes et déformations résultant de variations locales de densité ne sont pas prises en compte.

#### II.D.1.d. Les paramètres du procédé et des matériaux

Parmi toutes les valeurs des paramètres introduits en données d'entrée du code de calcul, certaines ont été extraites de la littérature, et d'autres, par manque d'informations précises, ont dû être estimées. Par exemple, les paramètres diélectriques sont des données encore assez mal connues, notamment leur variation avec la température pour la fréquence du chauffage micro-ondes.

##### **(i) Paramètres électromagnétiques**

- permittivité diélectrique relative de l'air dans la cavité : 1

- permittivité diélectrique relative de l'échantillon de zircone :  $\varepsilon_r = 10 - i.0,1.e^{0,0017(T-293)}$ , i.e. que la partie réelle est constante tandis que la partie imaginaire varie de 0,1 à 1 quand la température croît de 293 K à 1700 K
- puissance électromagnétique incidente : constante pour chaque simulation, mais valeur ajustée par tâtonnements pour que l'échantillon atteigne la température visée
- condition limite sur les parois de la cavité : conduction parfaite

## **(ii) Paramètres thermiques**

- source de chaleur : énergie micro-ondes absorbée par le matériau et déterminée par le calcul électromagnétique
- conductivité thermique :  $k = 30.\rho_r$  W/m/K
- masse volumique :  $\rho = 6000.\rho_r$  kg/m<sup>3</sup>
- capacité calorifique massique :  $C_p = 900$  J/kg/K
- température initiale :  $T_0 = 293$  K
- conditions aux limites thermiques : flux radiatif avec une température de référence de 20°C et un facteur d'émissivité de 0,1 ou 0,9.

## **(iii) Paramètres de densification**

- densité initiale :  $\rho_{r0} = 0,64$
- loi de densification :  $\frac{1}{\rho_r} \frac{d\rho_r}{dt} = 200.e^{-\frac{20000}{T}} \left( \frac{1 - \rho_r}{\rho_r - 0,64} \right)^2$  ; cette loi permet de décrire une densification élevée à 1700 K.

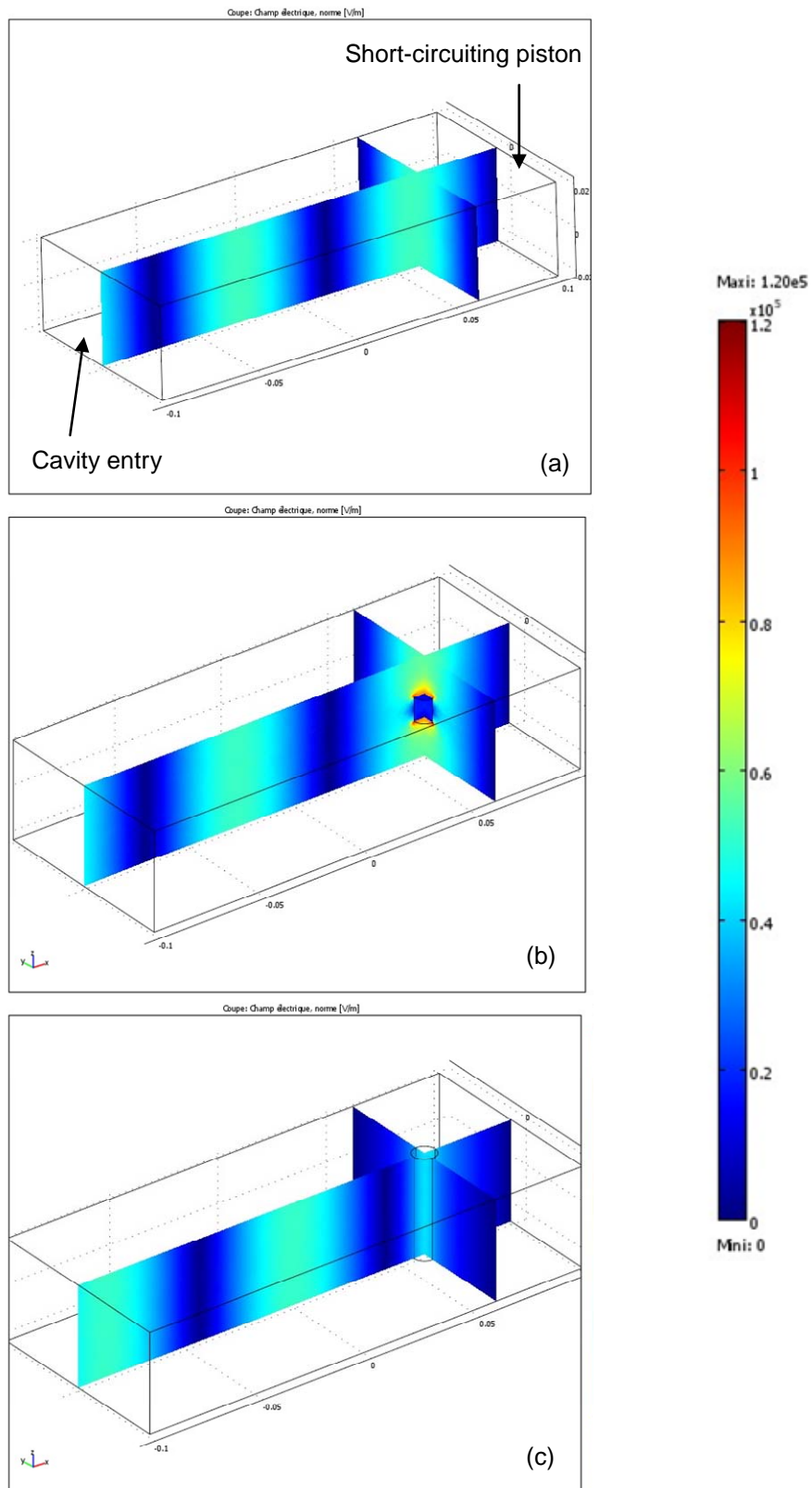
## II.D.2. RESULTATS DES CALCULS

### II.D.2.a. Perturbation du champ électrique par un diélectrique

La Figure 30 montre le résultat du calcul de la distribution du champ électrique dans la cavité avec différentes configurations : la cavité vide, la cavité avec un échantillon de taille standard (1 cm de diamètre, 1 cm de hauteur), la cavité avec un échantillon de même diamètre mais dont la hauteur est égale à la hauteur de la cavité ( $h = 43,18$  mm). Ces simulations ont été effectuées en supposant que la permittivité relative complexe était constante,  $\varepsilon_r = 10 - 0,3.i$ .

Tout d'abord, dans la cavité vide, on observe comme attendu une alternance régulière de ventres (maxima) et de nœuds (minima) de l'amplitude du champ électrique séparés de  $\lambda_g/2$  (cas décrit I.C.3). Dans les deux autres cas, l'échantillon a été placé à un maximum d'intensité du champ électrique pour qu'il absorbe le plus d'énergie possible. On constate que l'échantillon standard ne change pas significativement les positions des ventres et des nœuds du champ électrique mais que le champ électrique dans le matériau est très faible, seulement 15% du champ maximum dans la cavité vide. De plus, de forts gradients sont observés en-dessous et au-dessus de l'échantillon et peuvent expliquer la formation de plasma ou d'arcs électriques. Enfin, lorsque la hauteur de l'échantillon est égale à la hauteur de la cavité, la distribution du champ électrique est très différente des cas précédents. D'une part, les positions des ventres et des nœuds du champ électrique sont modifiées ; et d'autre part l'intensité du champ électrique dans l'échantillon est supérieure à celle calculée dans l'échantillon standard (70% de la valeur maximale dans la cavité vide).

En résumé, ces simulations montrent deux choses. Premièrement, la présence d'un diélectrique (échantillon ou autre) perturbe la distribution du champ électrique : si l'échantillon est petit, le champ électrique est beaucoup plus faible dans l'échantillon que dans la cavité, comme si l'onde contournait l'échantillon et on observe de forts gradients du champ en-dessous et au-dessus du matériau. Au contraire, si l'échantillon est d'une hauteur égale à la hauteur de la cavité, les positions des ventres et des nœuds du champ électrique sont fortement modifiées mais l'intensité du champ électrique au voisinage de l'échantillon est uniforme sur toute la hauteur. De plus, le champ électrique absorbé par un échantillon semble croître avec sa hauteur. Ces caractéristiques seront d'autant plus accentuées que la permittivité diélectrique complexe sera élevée.

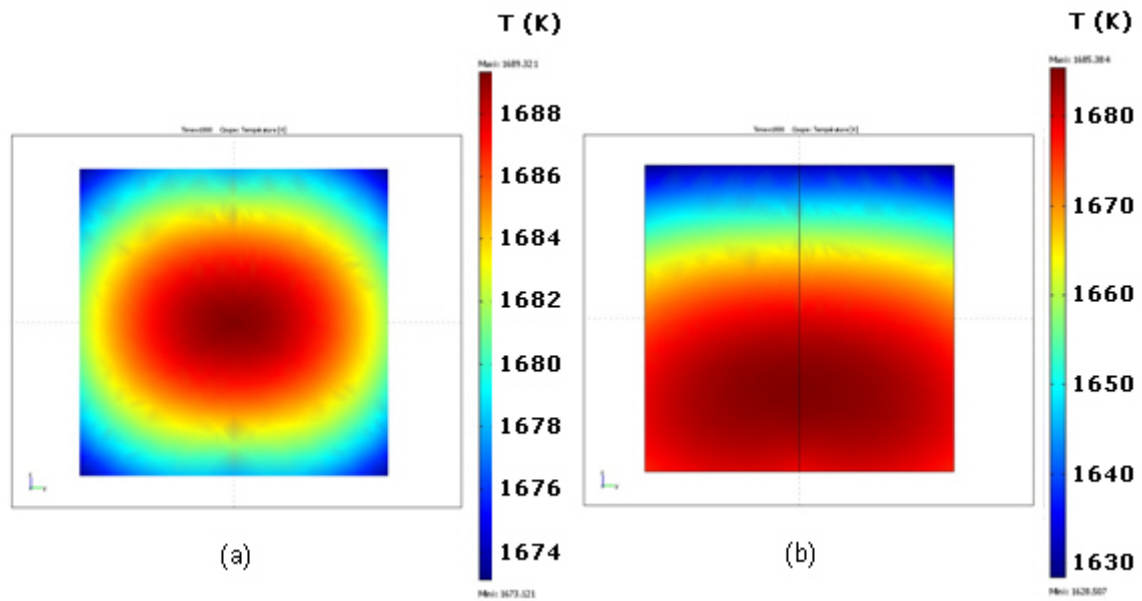


**Figure 30 : Modélisation de la distribution du champ électrique dans la cavité**  
**(a) sans échantillon (b) avec un petit échantillon ( $h = 1 \text{ cm}$ )**  
**(c) avec un échantillon de hauteur égale à la hauteur de la cavité**

### II.D.2.b. Distribution de température dans l'échantillon

Le calcul de la distribution et de l'intensité du champ électrique absorbé par l'échantillon permet de quantifier la source de chaleur générée au sein du matériau, puis la distribution de température, par un couplage électromagnétisme-thermique. En changeant les conditions aux limites thermiques de l'échantillon, il est possible de simuler différentes conditions d'isolation et au final d'estimer un ordre de grandeur des gradients thermiques résultants.

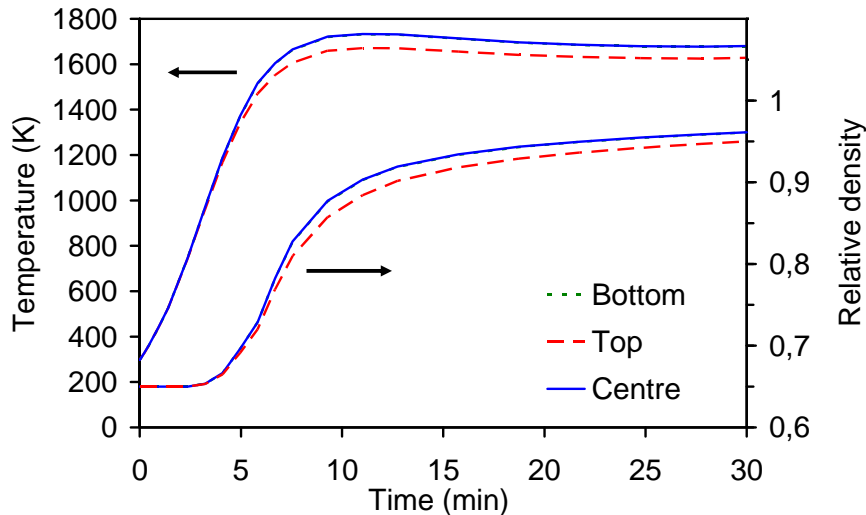
Les dimensions de l'échantillon standard ont été reprises pour ces simulations : 1 cm de diamètre et 1 cm de hauteur. Deux conditions d'isolation ont été testées pour ces calculs. Dans le premier cas, toutes les surfaces de l'échantillon cylindrique sont isolées (isolation totale) ; dans le second cas, toutes les surfaces à l'exception de la surface supérieure du cylindre sont isolées (isolation partielle). On suppose que l'émissivité est de 0,1 pour les surfaces dites isolées et 0,9 dans l'autre cas. Cette dernière situation est représentative de nos expériences où l'isolant placé sur l'échantillon est percé d'un trou pour permettre de mesurer la température de la surface supérieure de l'échantillon avec une caméra IR. Pour chaque calcul, la puissance incidente a été ajustée pour que la température moyenne de l'échantillon atteigne environ 1680 K en 30 min. La Figure 31 montre les distributions de température sur une coupe axiale (verticale) de l'échantillon pour les deux conditions d'isolation décrites. Avec une isolation totale (Figure 31.a), on observe comme prévu une distribution de température symétrique avec un maximum au centre (1689 K) et un minimum au niveau des surfaces extérieures (1673 K). L'écart de température maximum entre le point le plus chaud et le moins chaud est inférieur à 30 K. Ces simulations montrent que, malgré une isolation totale de l'échantillon, le chauffage par micro-ondes génère des gradients thermiques du cœur vers les surfaces extérieures. Avec une isolation partielle (Figure 31.b), la distribution de température n'est plus symétrique : la région la plus chaude se situe sur l'axe à environ 1/3 de la hauteur tandis que la région la moins chaude est la surface supérieure non isolée. L'écart de température maximum est d'environ 60 K.



**Figure 31 : Modélisation de la distribution de température sur une coupe axiale d'un échantillon cylindrique d'environ 1 cm<sup>3</sup> après 30 min de chauffage dans deux conditions : (a) isolation totale (b) isolation partielle – surface supérieure non isolée**

Ces résultats soulignent le rôle majeur de l'isolation thermique des échantillons lors du chauffage par micro-ondes, non seulement vis-à-vis de l'intensité des gradients thermiques, mais aussi pour les distributions de température dans le matériau.

La prédiction de la distribution de température dans les échantillons permet, quand on s'intéresse au frittage, d'estimer la densité et la microstructure des matériaux frittés. On s'est intéressé à l'échantillon partiellement isolé dans lequel la distribution de température est hétérogène sur la hauteur. En couplant les résultats du calcul précédent (électromagnétisme+thermique) avec la loi de densification précédemment décrite (cf. II.D.1.d.(iii)), on peut obtenir les variations locales de température et de densité relative de l'échantillon. La Figure 32 montre les évolutions de la température et de la densité relative en fonction du temps dans trois régions distinctes prises sur l'axe de cet échantillon cylindrique : en bas ("Bottom"), à mi-hauteur ("Centre") et en haut ("Top").



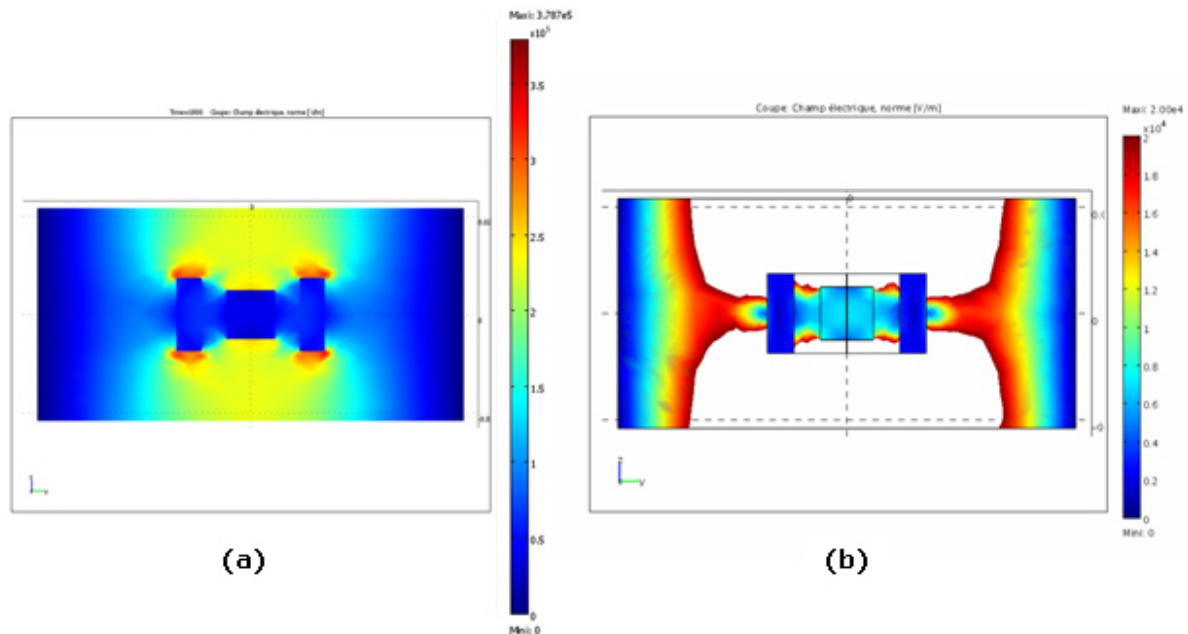
**Figure 32 : Modélisation des évolutions de la température et de la densité relative au cours du frittage d'un échantillon partiellement isolé**

La vitesse de chauffage est d'environ 200 K/min les cinq premières minutes. La température passe par un maximum à 1700 K au bout de 10 à 12 min de chauffage avant de diminuer jusqu'à 1650 K environ. Ce cycle thermique est le résultat d'un chauffage à puissance électromagnétique incidente constante. La vitesse de chauffage pourrait être maîtrisée en ajustant la puissance incidente au cours de la simulation. On constate que les évolutions de la température en bas et au centre de l'échantillon sont similaires tandis que l'évolution de la température en haut s'écarte des précédentes à partir de 1300 K. Finalement, cette différence de température conduirait à une différence de densité relative finale de l'ordre de 1 %.

#### II.D.2.c. Distribution du champ électrique avec un suscepteur

Dans certains cas, un suscepteur doit être introduit dans le four micro-ondes pour chauffer et fritter des matériaux : on parle de chauffage micro-ondes indirect ou hybride. Ce suscepteur, couplant fortement avec les micro-ondes, absorbe l'énergie électromagnétique qu'il convertit en chaleur : il devient alors une source de chaleur externe pour l'échantillon. Ce mode de chauffage est employé essentiellement dans deux situations : soit pour préchauffer un matériau à faible permittivité diélectrique jusqu'à une température où un couplage avec le champ électromagnétique va pouvoir opérer ; soit pour chauffer de manière indirecte, par rayonnement, des matériaux ne couplant pas avec les micro-ondes. Dans tous les cas, l'introduction d'un suscepteur, une pièce massive et à forte permittivité diélectrique, pose la question de son influence sur la distribution du champ électromagnétique dans la cavité, et particulièrement dans

l'échantillon et à son voisinage. Pour répondre à cette question, une simulation du chauffage micro-ondes avec un suscepteur cylindrique (tube) a été effectuée. La modélisation reprend les dimensions réelles du suscepteur en carbure de silicium utilisé dans notre cavité résonante monomode : 15 mm de hauteur, 20/30 mm de diamètre intérieur/extérieur et donc une épaisseur de paroi de 5 mm. La permittivité du suscepteur a été définie telle que :  $\epsilon_r^s = 100 - 100i$  (valeur supérieure à celle de l'échantillon de zircone).



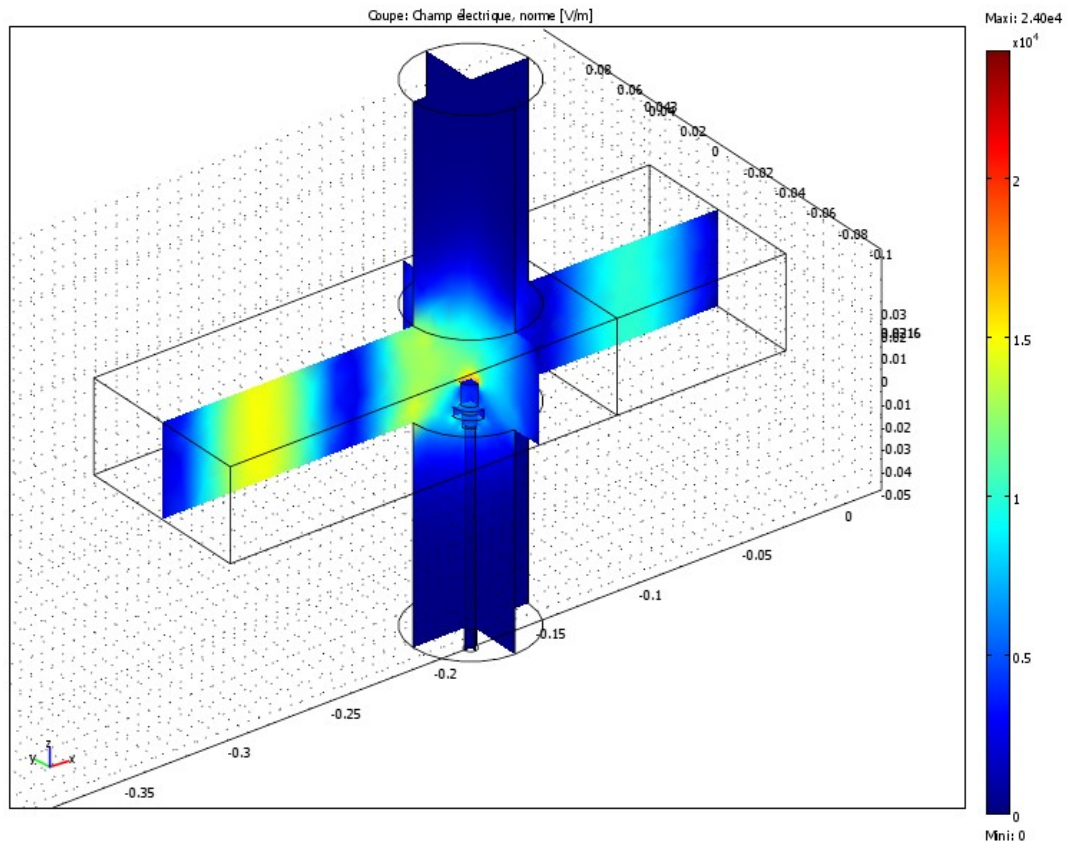
**Figure 33 : Modélisation de la distribution du champ électrique dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation des ondes  
(a) dans toute la cavité (b) dans le suscepteur et dans l'échantillon**

La Figure 33.a montre que l'amplitude du champ électrique dans le suscepteur et dans l'échantillon ( $< 5.10^4$  V/m) est très inférieure au maximum calculé dans le même temps dans la cavité ( $3,8.10^5$  V/m), bien qu'ils soient tous deux placés dans une région de forte intensité du champ électrique. En regardant le résultat de la simulation avec une échelle réduite entre 0 et  $2.10^4$  V/m dans le suscepteur et dans l'échantillon (Figure 33.b - zone blanche  $> 2.10^4$  V/m), on constate que l'amplitude du champ électrique varie entre  $6.10^3$  et  $8.10^3$  V/m dans l'échantillon de zircone et entre  $1.10^3$  et  $3.10^3$  V/m dans le suscepteur en carbure de silicium, soit du même ordre de grandeur. Ce résultat est important car il démontre que le suscepteur ne fait pas écran à l'échantillon vis-à-vis du champ électromagnétique. Dans ce cas, le chauffage avec un suscepteur peut être qualifié de chauffage hybride : l'échantillon est chauffé à la fois par l'énergie thermique rayonnée par le suscepteur et par couplage avec le champ électrique si les propriétés diélectriques du matériau le permettent.



### II.D.2.d. Perturbation du champ électrique par les cheminées, l'échantillon et son support

Les calculs précédents ont été réalisés pour une cavité simplifiée, sans ouvertures (cheminées), et sans le support de l'échantillon. Nous nous sommes interrogés sur l'incidence de l'introduction de ces nouveaux éléments sur la distribution du champ électrique et une partie de la réponse apparaît dans la Figure 34.



**Figure 34 : Modélisation de la distribution du champ électrique dans la cavité avec les ouvertures (cheminées) et un échantillon reposant sur son support**

On constate tout d'abord que la distribution du champ électrique est bien différente selon si on se place côté magnétron (à gauche) ou côté piston (à droite) : l'amplitude du maximum du champ électrique est inférieure côté piston. Par ailleurs, la distribution du champ électrique dans l'environnement de l'échantillon est toujours hétérogène mais la présence du support provoque une certaine asymétrie si on compare cette distribution à celle représentée dans la Figure 30 (b). Un gradient d'amplitude du champ électrique est toujours visible dans la région au-dessus de l'échantillon mais n'apparaît plus en-dessous, certainement en raison du support. Au final, cette simulation d'un cas réel illustre bien toute la complexité du traitement d'un procédé comme le frittage micro-ondes.

### II.D.3. CONCLUSIONS

Les résultats de ces calculs 3D par éléments finis démontrent tout l'intérêt de la modélisation numérique pour une meilleure compréhension du frittage micro-ondes. Les premiers calculs de la distribution du champ électrique dans la cavité vide et dans des échantillons de deux hauteurs différentes montrent que le champ électrique est beaucoup moins intense dans l'échantillon. Cependant, l'intensité et l'homogénéité du champ électrique dans l'échantillon augmentent avec sa hauteur, ce qui souligne l'importance de la géométrie des échantillons. Ensuite, des différences de distribution de températures et de densités ont été mises en évidence en modifiant les conditions d'isolation des échantillons. Finalement, les simulations avec le suscepteur cylindrique autour de l'échantillon indiquent qu'en fonction des paramètres diélectriques choisis pour le suscepteur, le champ électrique dans l'échantillon est plus ou moins intense. Ceci tend à prouver que le suscepteur n'a pas d'effet d'écran total et permet de soutenir l'idée qu'un chauffage hybride de l'échantillon est permis par cette configuration.



## CHAPITRE III

MATERIAUX ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

=

MISE AU POINT D'UNE PROCEDURE

DE PILOTAGE D'UN CYCLE THERMIQUE

EN FRITTAGE MICRO-ONDES

Dans ce chapitre nous présenterons d'une part les caractéristiques des poudres, les techniques de mise en forme, de frittage et de caractérisations des matériaux frittés et d'autre part la mise au point et la justification d'un protocole original de pilotage en température du frittage micro-ondes dans une cavité monomode.

### III.A. MATERIAUX : ORIGINES, PROPRIETES, APPLICATIONS

#### III.A.1. ZIRCONE

La zircone est le nom commun donné au dioxyde de zirconium ou oxyde de zirconium de formule chimique  $ZrO_2$ . Le zirconium Zr se trouve à l'état naturel dans divers minerais ou sables zirconifères essentiellement sous forme de silicates de zirconium ( $ZrSiO_4$ ), appelés aussi zircon. Ces sables zirconifères sont épurés pour séparer le zircon des autres minerais. Le zircon est ensuite lavé à l'acide puis converti en chlorure de zirconyl ( $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ ) à partir duquel la zircone est obtenue soit par décomposition thermique, soit par précipitation sous forme de poudres de haute pureté et de faibles tailles de grains. La zircone peut aussi être obtenue directement sous forme de poudre par concassage, broyage et tamisage de la baddeleyite, le seul minerai où le zirconium est présent naturellement sous forme de zircone avec une pureté de 97,5%. [MOU 08]

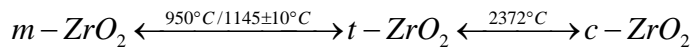
La zircone est un matériau de couleur blanche et d'aspect opaque. Ses principales propriétés physico-chimiques sont présentées dans le Tableau 1.

Tableau 1. Principales propriétés physico-chimiques de la zircone

masse molaire atomique ( $g \cdot mol^{-1}$ )	masse volumique $\rho_{th}$ ( $g \cdot cm^{-3}$ )	température de fusion ( $^{\circ}C$ )	capacité calorifique massique ( $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$ )	conductivité thermique ( $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ )	coefficient de dilatation linéaire ( $K^{-1}$ )
126	5,827 (m) <sup>#</sup> 6,10 (q) <sup>§</sup> 6,09 (c) <sup>§</sup>	2660-2710 <sup>*</sup>	$\approx 500$	1,5-1,9 <sup>§</sup>	$7,5 \cdot 10^{-6}$ (m) <sup>§</sup> $10 \cdot 10^{-6}$ (q) <sup>§</sup> $13 \cdot 10^{-6}$ (c) <sup>§</sup>

<sup>#</sup> [HAU 05], <sup>§</sup> [MOU 08], <sup>\*</sup> [OND 98]

Ce matériau peut exister sous trois formes cristallographiques : monoclinique, quadratique (ou tétragonale) et cubique. Jusqu'à environ 1150°C, sa structure cristallographique stable est monoclinique tandis qu'elle devient quadratique au-delà et cubique à partir de 2377°C.

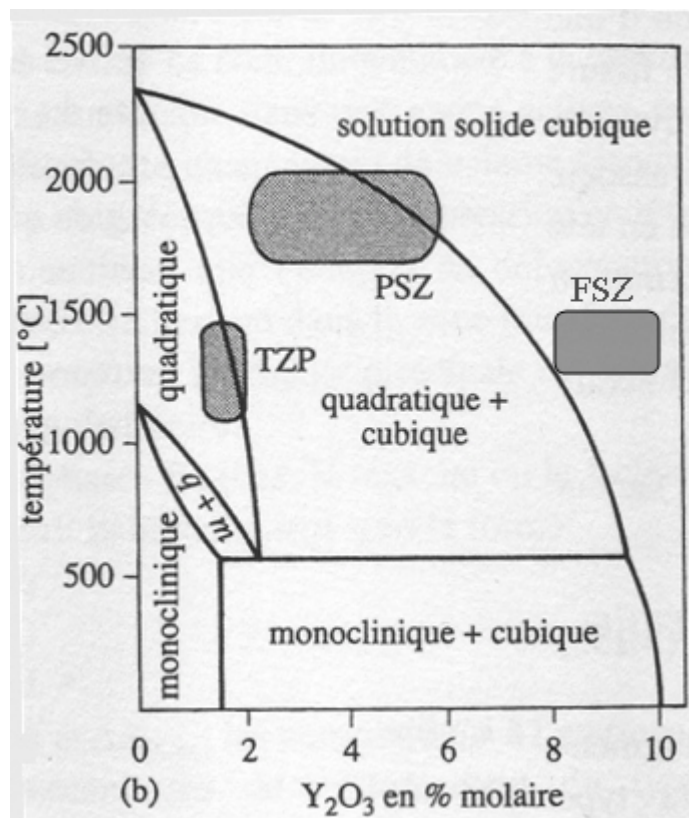


$m \rightleftharpoons t$  950°C, d'après [HAU 05]

$m \rightleftharpoons t$  1145°C +/- 10°C, d'après [OND 98]

$t \rightleftharpoons c$  2372°C, d'après [OND 98]

Une pièce de zircone est généralement obtenue par frittage d'une poudre entre 1300°C et 1500°C. Au cours du refroidissement après frittage, la transformation quadratique → monoclinique s'accompagne d'un changement de volume du matériau ( $\Delta V/V = +4\%$ ) souvent préjudiciable. En effet, cette augmentation de volume génère de fortes contraintes internes entraînant la fissuration de la pièce. C'est pourquoi la zircone doit être dopée, le plus fréquemment avec les oxydes MgO, CaO ou  $\text{Y}_2\text{O}_3$  en solution solide dans la zircone, afin de conserver à température ambiante, au moins partiellement, les phases stables à haute température (quadratique ou cubique) au détriment de la phase monoclinique. On parle alors de zircone (partiellement) stabilisée.



**Figure 35 : Région riche en zircone du diagramme de phase  $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$  [HAU 05]**

La Figure 35 montre la région riche en zircone du diagramme de phase  $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$  pour lequel les domaines d'existence des phases monoclinique, quadratique et cubique sont représentés. Les zones grisées et annotées TZP et PSZ illustrent les domaines d'élaboration (composition et température de frittage) de quelques zircons partiellement

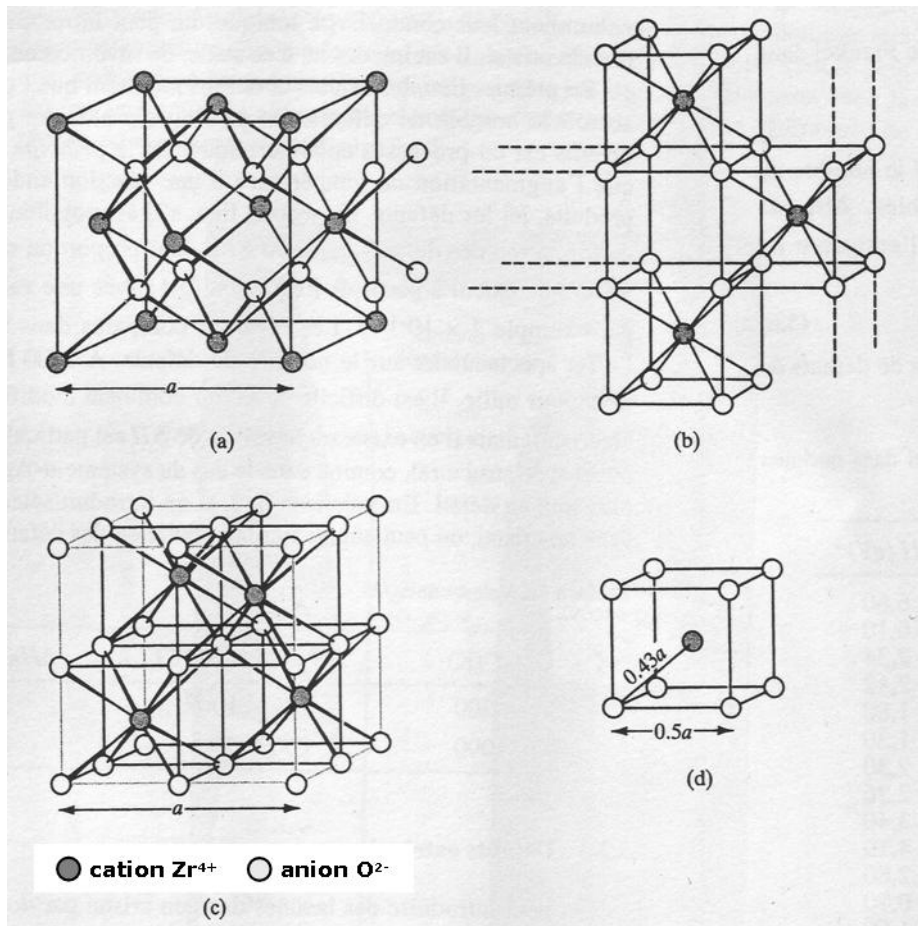
stabilisées. Parmi les zircons dopés à l'oxyde d'yttrium, on distingue trois types de zircon en fonction de la quantité de dopant et de la forme cristalline stabilisée :

- la zircon TZP (Tetragonal Zirconia Polycrystal) : zircon à matrice quadratique partiellement stabilisée (< 3 % d' $Y_2O_3$ ) ;
- la zircon PSZ (Partially Stabilized Zirconia) : zircon à matrice cubique partiellement stabilisée et contenant une dispersion de fins précipités de zircon quadratique (3 à 8 % d' $Y_2O_3$ ) ;
- la zircon FSZ (Fully Stabilized Zirconia) : zircon stabilisée seulement sous forme cubique (> 8 % d' $Y_2O_3$ ).

La zircon, dite TZP, présente une propriété physique particulièrement intéressante, appelée renforcement par transformation de phase, qui est liée à la différence entre la phase monoclinique plus volumineuse de 4 % que la phase quadratique. L'apport d'énergie en tête de fissure est suffisant pour engendrer la transformation de la phase quadratique en phase monoclinique plus stable et plus volumineuse. L'énergie de propagation de la fissure est absorbée et la fissuration est fortement ralentie ou même stoppée par l'augmentation de volume des grains de zircon en tête de fissure. Ceci explique l'exceptionnelle ténacité de la zircon 3Y-TZP, pouvant aller jusqu'à 15 MPa.m<sup>1/2</sup>.

[HAU 05]

Lorsque la zircon est stabilisée dans sa forme cristalline cubique (FSZ), sa structure est apparentée à des empilements de cations de type cubique à faces centrées (Figure 36 (a)) et des empilements compacts d'anions de type cubique simple (Figure 36 (b) (c)) : c'est la structure fluorine  $CaF_2$ , une structure cristalline de type  $MX_2$  (comme  $SrF_2$ ,  $PbF_2$ ,  $ThO_2$ ,  $UO_2$ ). La structure fluorine est fondée sur un arrangement cfc des cations où les sites tétraédriques sont tous occupés par les anions (Figure 36 (a)).



**Figure 36 : Structure cristalline de la fluorine  $MX_2$ .**  
**(a) Maille de l'empilement cfc des cations. (b) (c) Structure dessinée à partir de l'empilement cubique simple des anions. (d) Dimensions de la maille [SMA 97]**

La particularité de cette structure est d'être très ouverte car elle comporte des sites octaédriques plus grands et vides (au centre sur la Figure 36 (a)). Le dessin de la structure à partir du réseau cubique d'anions  $O^{2-}$  (Figure 36 (c)) le montre clairement : la maille est constituée de huit petits octants dont la moitié est vide. Ces sites interstitiels peuvent accueillir un ion interstitiel à l'origine d'un défaut de Frenkel et de lacunes. Lorsqu'un dopant, comme l'oxyde d'yttrium, est ajouté pour stabiliser la zircone, les cations  $Y(+III)$  prennent la place d'ions  $Zr(+IV)$  dans le réseau. La compensation de charge est effectuée par la création de lacunes anioniques dans le sous-réseau de l'oxygène. Toutes ces lacunes, liées à la structure fluorine et à l'ajout d'éléments dopants, sont à l'origine d'une grande population de défauts d'oxygène et donc d'une très bonne conductivité ionique (des anions  $O^{2-}$ ) en présence d'un champ électrique externe. Ces matériaux trouvent naturellement des applications en tant qu'électrolytes solides.

Les principales caractéristiques de la zircone yttrée sont :

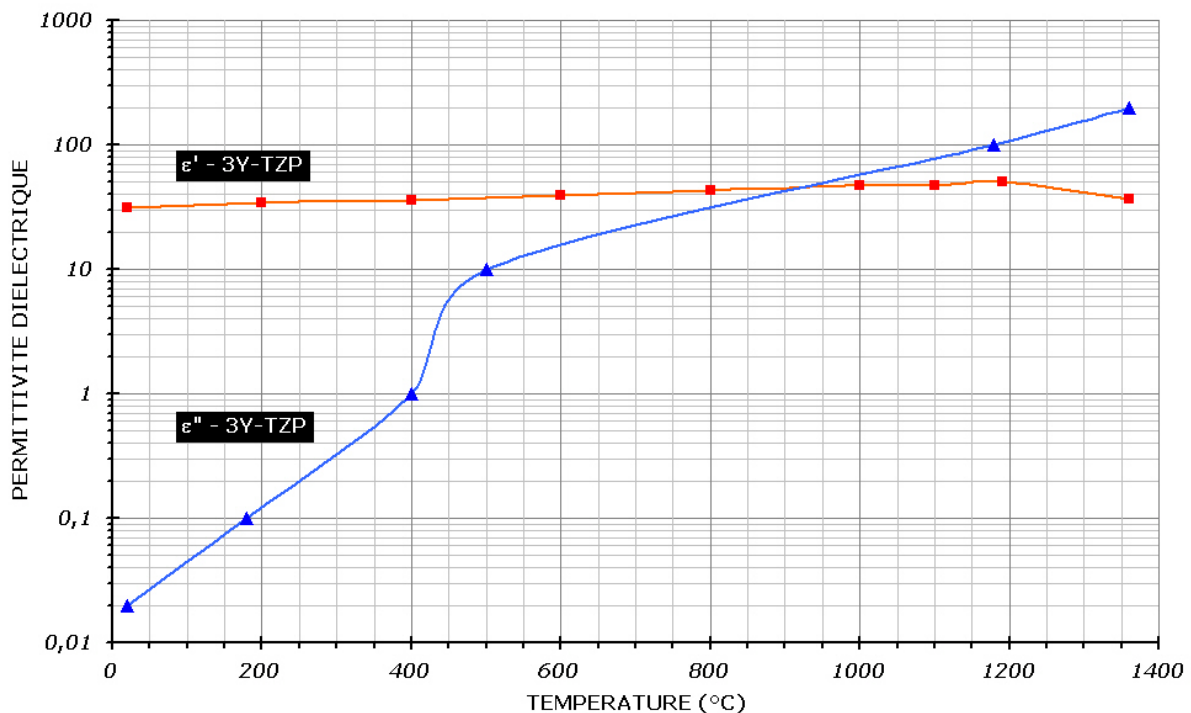
- une très faible conductivité thermique



- un point de fusion élevé
- une inertie chimique vis-à-vis des principaux acides et bases
- une grande dureté
- une excellente résistance à l'abrasion mécanique
- une ténacité exceptionnelle pour une céramique
- une bonne biocompatibilité

Toutes ces propriétés font de la zircone un matériau incontournable pour des applications telles que les barrières thermiques, les parois de fours, les prothèses dentaires et autres biomatériaux, etc.

Enfin, la zircone est un matériau diélectrique connu pour coupler modérément avec les micro-ondes. Les variations de ses propriétés diélectriques permettront d'interpréter le comportement de la zircone lors de son chauffage sous champ électrique. La Figure 37 montre les variations des parties réelle et imaginaire de la permittivité complexe en fonction de la température pour une zircone 3Y-TZP.



**Figure 37 : Variations des parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique complexe de la zircone 3Y-TZP d'après les mesures de Batt & al. [BAT95]**

Ces résultats, extraits de l'article de Batt & al. [BAT 95], ont été obtenus à partir d'expériences reposant sur des mesures de la perturbation du champ électromagnétique dans une cavité  $TM_{0n0}$ , à la fréquence de 2,45 GHz et entre 20°C et 1360°C. L'échantillon

massif chauffé dans un four conventionnel est introduit rapidement dans la cavité où règne un champ intense. La permittivité diélectrique complexe est déduite, par le calcul, des mesures de la fréquence de résonance et du facteur de qualité de la cavité [HUT 92a] [HUT 92b].

On remarque qu'à basse température, la partie imaginaire de la permittivité complexe est très faible ( $\varepsilon'' \approx 0,02$ ) : la zircone couple très faiblement avec le champ électrique. A partir de 400°C environ, les propriétés diélectriques de la zircone évoluent rapidement avec la température. On constate que la partie imaginaire de la permittivité diélectrique complexe est multipliée par 10 entre 400°C et 500°C et par 100 entre 400°C et 1200°C. Ainsi, la tangente des pertes diélectriques augmente nettement ce qui se traduit par un accroissement proportionnel de la puissance dissipée par le matériau (cf. I.D.4.a. - Equation 92) pour une intensité du champ électrique identique dans la cavité.

Les effets d'une telle variation des propriétés diélectriques de la zircone seront clairement mis en évidence lors de la recherche et de l'optimisation d'une procédure de frittage permettant de maîtriser la vitesse de chauffage et la température des échantillons.

### III.A.2. NICKEL

Le nickel, dont quelques propriétés physico-chimiques figurent dans le Tableau 2, est un corps simple, élément 28 de la classification périodique des éléments de Mendeleïev, qui fait partie du groupe VIII des métaux de transition avec le cobalt et le fer. Le nickel pur est un métal gris-blanc, brillant, dur, malléable, ductile et magnétique jusqu'à 353°C environ. Sa structure cristalline est cubique face centrée.

Tableau 2. Principales propriétés physico-chimiques du nickel

masse molaire atomique (g.mol <sup>-1</sup> )	masse volumique $\rho_{th}$ (g.cm <sup>-3</sup> )	température de fusion (°C)	capacité calorifique massique (J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	conductivité thermique (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	coeff. de dilatation thermique (K <sup>-1</sup> )
58,69	8,90	1454	440	83,7	12,8.10 <sup>-6</sup>

Le nickel est l'un des principaux métaux de base de l'industrie sidérurgique. C'est un métal d'addition utilisé dans de très nombreux alliages, notamment les aciers inoxydables. Le nickel améliore les propriétés de nombreux alliages ferreux :

- amélioration de la résistance à la corrosion chimique à froid et à chaud : aciers inoxydables austénitiques et aciers réfractaires ;

- amélioration de la ténacité et de la trempabilité : aciers de construction, aciers à outils pour travail à chaud au Ni-Cr-Mo ;
- développement d'aciers à durcissement structural et à hautes caractéristiques mécaniques : aciers Maraging ;
- amélioration de la ténacité, de la résistance à l'usure ou aux chocs des fontes : fontes perlitiques ou martensitiques ;

La métallurgie non ferreuse constitue un autre secteur important d'application du nickel : en particulier, les superalliages base nickel utilisés dans de nombreux secteurs comme l'aéronautique (aubes de réacteurs), la production d'énergie (aubes de turbines à gaz) mais aussi dans l'industrie spatiale (moteurs de fusée) et dans l'industrie nucléaire (générateurs de vapeur). Par ailleurs, le nickel entre dans la composition des alliages à mémoire de forme avec le titane et dans de nombreux autres alliages comme les alliages fer-nickel pour modifier les propriétés magnétiques et aussi dans les alliages nickel-chrome, nickel-aluminium, les cupronickels, les bronzes et laitons au nickel, où le nickel améliore la résistance à la corrosion.

Les traitements de surface au nickel sont également très répandus (nickelage par galvanoplastie et nickelage chimique) pour protéger de la corrosion, pour la décoration ou l'amélioration de la conductivité électrique.

Enfin l'utilisation de nickel en métallurgie des poudres permet d'obtenir, respectivement par frittage à chaud ou par laminage à froid, des pièces mécaniques frittées et des produits laminés : filtres à taille de pores calibrée, électrodes poreuses pour les piles à combustibles, électrodes des batteries rechargeables nickel-cadmium et nickel-hydrures métalliques.

[ERA 96]

### III.B. CARACTERISATION DES POUDRES / DES MATERIAUX FRITTES

#### III.B.1. LES POUDRES

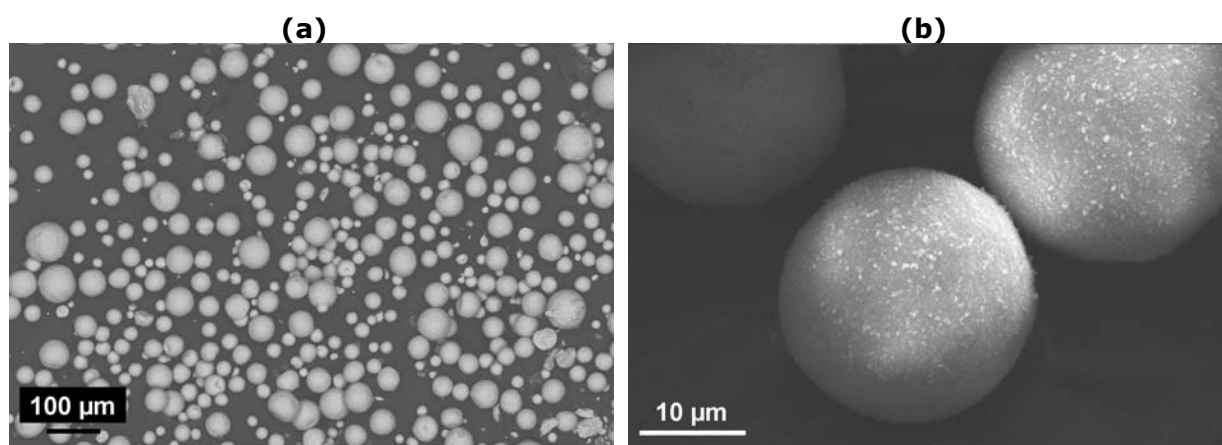
##### III.B.1.a. Zircone yttrée à 2% molaire - 2Y-TZP

La zircone mise en œuvre est une poudre commerciale produite par Tosoh Co. (Tokyo, Japon). Cette zircone Y-TZP est partiellement stabilisée par 2 % molaire d'oxyde d'yttrium ( $Y_2O_3$ ) et sa désignation commerciale est TZ-2Y. Sa masse volumique est de  $6,05 \text{ g/cm}^3$ . La composition chimique de la poudre (analyses du fournisseur) est donnée dans le Tableau 3.

Tableau 3. Composition du lot de poudre Tosoh TZ-2Y n°Z208652P

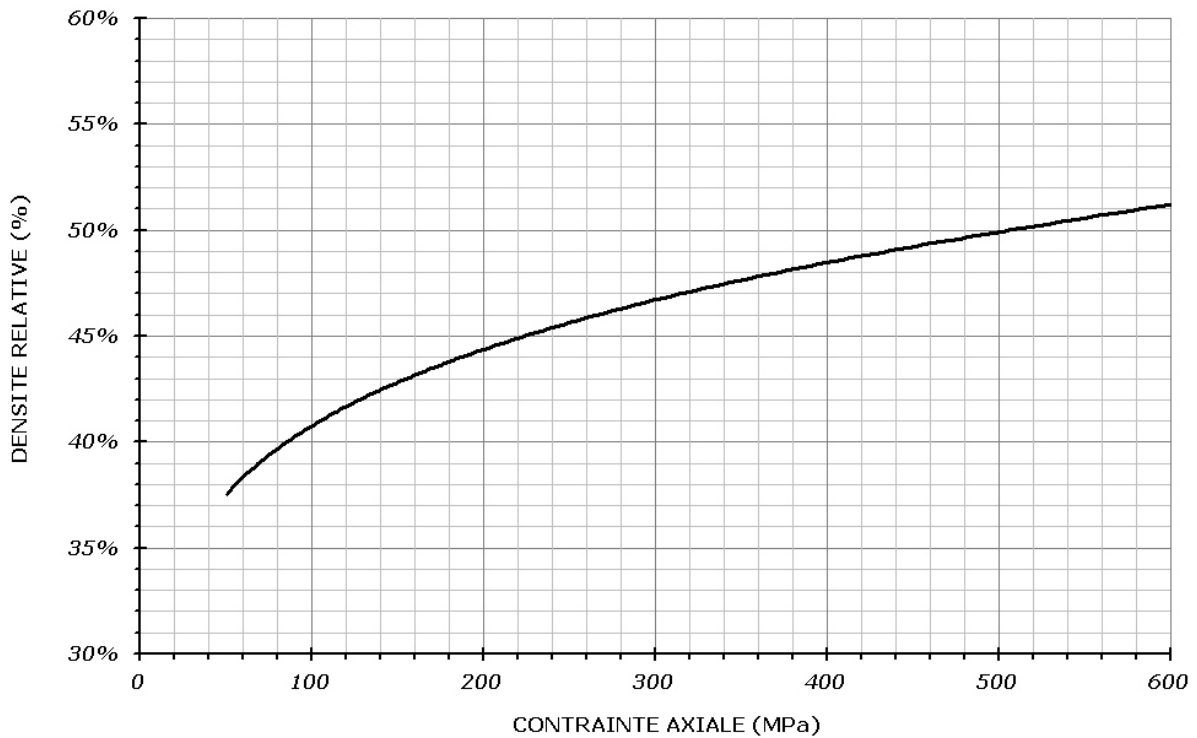
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (mol%)	SiO <sub>2</sub> (ppm)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (ppm)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (ppm)	Na <sub>2</sub> O (ppm)	Tot. Imp. (ppm)
2,01	< 20	< 50	< 20	160	< 250

Cette poudre très pure se présente sous forme de granules de forme sphérique dont le diamètre est compris entre 10 et 80 µm (Figure 38). Leurs tailles et leur forme lui confèrent de très bonnes propriétés d'écoulement (coulabilité) et facilitent le remplissage de la matrice ou du moule. Ces granules, contenant plusieurs millions de particules primaires, sont obtenus par atomisation-séchage d'une suspension.



**Figure 38 : Poudre commerciale Tosoh TZ-2Y observée au microscope électronique à balayage (a) x 100 – (b) x 2000**

La courbe de compressibilité (Figure 39) de la poudre en compression uniaxiale double-effet dans une matrice cylindrique de 8 mm de diamètre montre que la densité relative évolue de 41 % pour 100 MPa à 51 % pour 600 MPa. Cette densité relative à vert est conforme aux valeurs attendues pour des poudres céramiques dont l'augmentation de densité se fait essentiellement par désagrégation des granules et réarrangement des fragments, sans déformation plastique des cristallites.



**Figure 39 : Courbe de compressibilité de la poudre de zirconium yttrium**

La surface spécifique BET  $S_{BET}$  de la poudre est de  $17 \text{ m}^2/\text{g}$  ( $\pm 2$ ), ce qui permet d'estimer le diamètre équivalent BET des particules primaires  $\Phi_{BET}$  en faisant l'hypothèse que ces particules sont sphériques, denses et non agglomérées :

$$\Phi_{BET} = \frac{6}{\rho_{th} \cdot S_{BET}} \quad \text{Équation 125}$$

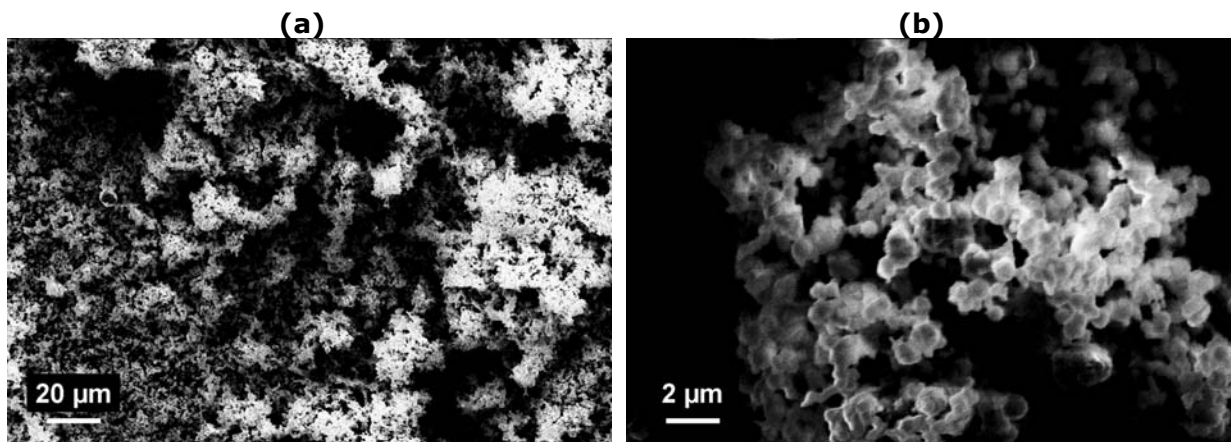
De l'équation 125, on déduit un diamètre équivalent BET de la poudre de  $58 \text{ nm} \pm 7$ .

Cette poudre contient par ailleurs des agents organiques ajoutés lors de la granulation pour faciliter la déformation des granules pendant le pressage (plastifiants) et pour offrir une bonne tenue des pièces en cru (liants).

### III.B.1.b. Nickel pur

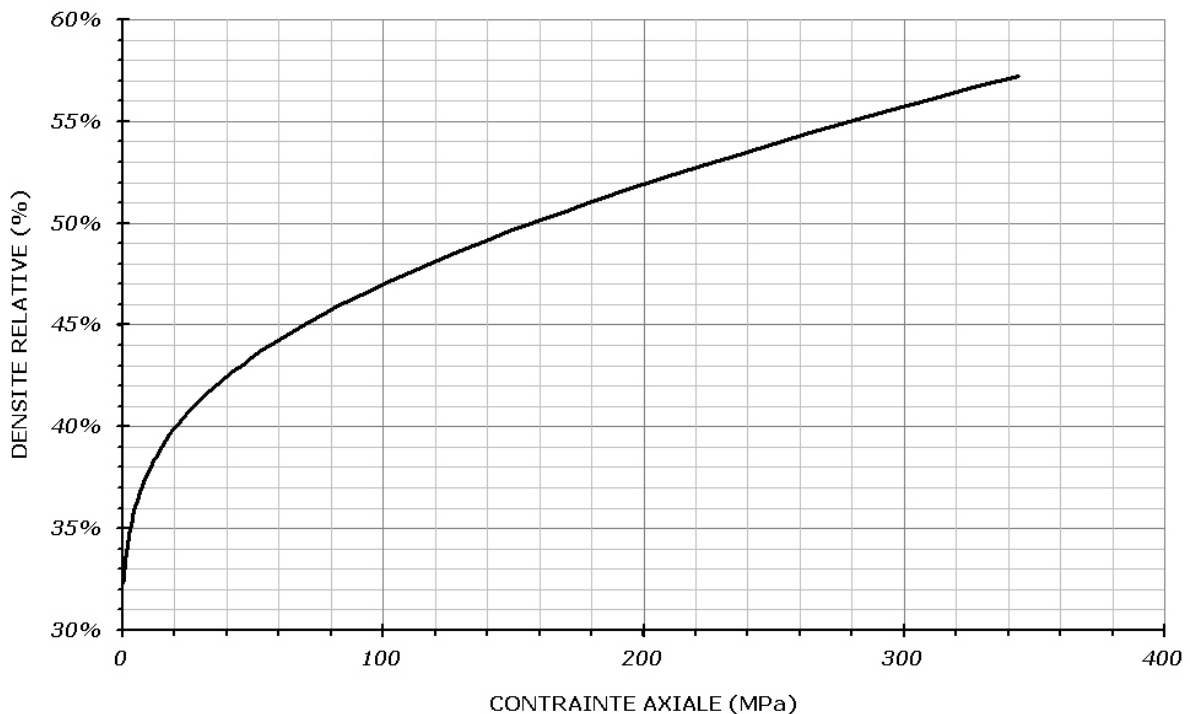
La poudre de nickel est une poudre commerciale d'EuroTungstene Poudres, de dénomination "Inco-type 110 PM nickel powder". Cette poudre obtenue par voie carbonyle est constituée d'un enchevêtrement d'agrégats, très poreux et sans forme

caractéristique, de particules préfrittées, plutôt arrondies et inférieures à  $2\ \mu\text{m}$ , comme l'illustrent les micrographies obtenues au MEB (Figure 40).



**Figure 40 : Poudre commerciale EuroTungstene Poudres Ni observée au microscope électronique à balayage (a) x 500 – (b) x 5000**

La courbe de compressibilité (Figure 41) de la poudre en compression uniaxiale double-effet dans une matrice de section carrée  $8 \times 8\ \text{mm}^2$  montre que la densité relative évolue rapidement pour atteindre 57 % sous 350 MPa.



**Figure 41 : Courbe de compressibilité de la poudre de nickel**

La surface spécifique BET  $S_{BET}$  de la poudre est de 0,89 m<sup>2</sup>/g, ce qui permet d'estimer un diamètre équivalent BET  $\Phi_{BET}$  de la poudre de l'ordre de 760 nm.

### III.B.2. LES MATERIAUX FRITTES

#### III.B.2.a. Masse volumique géométrique

La masse volumique  $\rho$  [g/cm<sup>3</sup>] de pièces ou échantillons de forme simple peut être déterminée géométriquement à partir de leur masse  $m$  et de leur volume  $V$ . Dans notre cas, les échantillons étant supposés cylindriques, le volume est :

$$V = \pi \cdot \frac{\Phi^2}{4} \cdot h \quad \text{Équation 126}$$

$\Phi$  : diamètre moyen

$h$  : hauteur

La masse volumique est alors :

$$\rho = \frac{4m}{\pi \cdot \Phi^2 \cdot h} \quad \text{Équation 127}$$

Cette méthode est simple à réaliser pour une détermination rapide de la masse volumique d'échantillons de forme régulière. Cependant, la plupart du temps, les surfaces ou les angles des pièces présentent des irrégularités ce qui peut conduire à des erreurs importantes sur l'estimation du volume et donc sur celle de la masse volumique. C'est pourquoi on préférera la méthode de détermination de la masse volumique par immersion.

#### III.B.2.b. Masse volumique par immersion

La méthode de détermination de la masse volumique des matériaux frittés repose sur le principe d'Archimède. La masse volumique du matériau est déterminée à partir de trois pesées successives à la température  $T$  :

- la masse  $m_1$  de l'échantillon à l'air libre

- la masse  $m_2$  de l'échantillon immergé dans un liquide de masse volumique connue

$\rho_L(T)$

- la masse  $m_3$  de l'échantillon imprégné du liquide

La masse volumique du matériau est :

$$\rho = \frac{m_1}{V_{app}} \quad \text{Équation 128}$$

où  $V_{app} = V_{mat} + V_{por}$  est le volume apparent de l'échantillon avec

$V_{mat}$  : volume du matériau et de la porosité fermée

$V_{por}$  : volume de la porosité ouverte

Le volume du matériau et de la porosité fermée se déduit de la pesée de l'échantillon immergé :

$$m_2 = m_1 - \rho_L(T).V_{mat} \Leftrightarrow V_{mat} = \frac{m_1 - m_2}{\rho_L(T)} \quad \text{Équation 129}$$

Le volume de la porosité ouverte se déduit de la pesée de l'échantillon imprégné :

$$m_3 = m_1 + \rho_L(T).V_{por} \Leftrightarrow V_{por} = \frac{m_3 - m_1}{\rho_L(T)} \quad \text{Équation 130}$$

Ainsi, la masse volumique de l'échantillon est :

$$\rho = \rho_L(T). \frac{m_1}{m_3 - m_2} \quad \text{Équation 131}$$

### III.B.3. CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE

#### III.B.3.a. Techniques céramographiques et métallographiques

Après mesure de leurs dimensions (hauteur, diamètre, masse) et détermination de leur densité, les matériaux frittés sont préparés afin d'observer leur microstructure. L'ensemble des étapes de la préparation des échantillons fait appel aux techniques céramographiques et métallographiques. Les techniques mises en œuvre dépendent non seulement de la nature du matériau et de ses propriétés mécaniques (composition, dureté, ductilité/friabilité) mais aussi des dimensions de la pièce. Les échantillons étudiés sont de forme cylindrique et d'un volume de l'ordre d'1 cm<sup>3</sup>.



### **(i) Découpe et polissage**

La première étape est un tronçonnage longitudinal du cylindre en deux moitiés selon son axe de révolution ou de symétrie. Pour les matériaux très durs ( $H_v > 800$ ), on utilise une meule constituée d'un abrasif (grains de diamant) et d'un liant (métallique) montés sur une âme métallique (acier ou cuivre). L'épaisseur des meules est de l'ordre de 0,3 à 0,9 mm.

La surface découpée est ensuite prépolie (prépolissage plan) afin d'obtenir une surface plane et similaire pour tous les échantillons en dépit de leur état initial et des traitements subis auparavant. Le prépolissage fin fait disparaître les dommages et déformations de la surface induit par le tronçonnage en introduisant un degré de déformation faible. Le prépolissage a été réalisé sur des papiers abrasifs (320-600-800-1200) contenant des grains de carbure de silicium (SiC), d'abord assez grossiers puis de plus en plus fins. Le polissage sous eau permet de limiter l'échauffement de la surface du matériau poli et d'évacuer les grains arrachés. Le temps de polissage sur chaque disque varie entre 1 et 4 min selon la dureté du matériau. Avant chaque changement de papier, la surface du matériau poli est rincée à l'eau puis nettoyée à l'éthanol dans une cuve à ultrasons pendant 30 à 60 secondes. L'état de surface est contrôlé au microscope optique afin de s'assurer de la régularité des rayures et de l'homogénéité du polissage.

Le polissage de finition s'effectue sur des draps de polissage imprégnés d'abrasif (pâtes ou suspensions diamantées) allant de 9 à 1  $\mu\text{m}$ . Le temps de polissage est un peu plus long, de l'ordre de 3 à 5 min, avec une pression faible de la surface sur le disque. Avant chaque changement de disque, la surface est soigneusement rincée et nettoyée à l'éthanol dans une cuve à ultrasons.

### **(ii) Révélation de la microstructure**

Selon la nature et la composition du matériau poli, il existe différents procédés pour révéler sa microstructure : les attaques chimiques (réactifs à base d'acides, d'oxydants ou de bases) et les attaques thermiques (traitements en température). Une attaque permet de révéler des éléments particuliers de la microstructure : porosité, fissures, inclusions, joints de grains. Sur nos matériaux monophasés, l'objectif des attaques thermiques est de révéler les joints de grains afin d'évaluer leur taille moyenne.

Pour la zircone, différentes attaques chimiques sont rapportées dans la littérature [PET99] : immersion jusqu'à 2 min à 250°C dans de l'acide phosphorique (85%), immersion 5 min à ébullition dans un mélange (1/1) eau/acide sulfurique (95-97%) ou immersion jusqu'à 6 min dans de l'acide fluorhydrique (40%). En raison de la dangerosité de ces attaques chimiques, des attaques thermiques sous air ont été

préférées. Généralement, l'attaque thermique s'effectue dans un four électrique à des températures comprises entre 1300°C et 1400°C pour des temps allant de quelques minutes à une heure. Les échantillons sont introduits dans le four à la température d'attaque et déplacés dans une zone froide du four à la fin du traitement. Dans cette étude, les températures de frittage étant très variables (1200°C à 1550°C), la température et la durée des attaques ont été adaptées pour chaque échantillon. La température était inférieure de 50°C à 70 °C à la température de frittage et le temps variait de 15 à 30 min.

Pour le nickel, les attaques chimiques existantes sont plus nombreuses et faciles à mettre en œuvre. Parmi celles-ci, l'attaque au réactif de Marble a été utilisée pour la révélation des joints de grains. Le réactif de Marble est un mélange eau distillée/acide chlorhydrique (32%) (1/1) avec du sulfate de cuivre  $\text{CuSO}_4$  (10 g / 100 mL).

### III.B.3.b. Observations microstructurales

L'objectif de ces observations est d'évaluer l'évolution de la microstructure des matériaux (pores et grains) pendant le frittage. La microstructure est observée dans différentes régions de l'échantillon pour évaluer l'homogénéité ou non de la microstructure et pour différentes températures de frittage afin de suivre les évolutions microstructurales du matériau avec la densité et la température. Etant donné la taille des éléments observés (grains et pores) qui est de l'ordre de 10 nm – 10  $\mu\text{m}$ , on utilise un microscope à balayage électronique.

#### **(i) Microscopie électronique à balayage : principe et préparation des échantillons**

Un canon à électrons génère un faisceau d'électrons qui est envoyé sur la surface de l'échantillon. Des interactions entre ces électrons et la matière s'en suit une émission de particules (électrons rétrodiffusés, secondaires, Auger...) et de rayonnements (fluorescent, rayons X...). Différents détecteurs permettent de collecter sélectivement ces informations afin de nous renseigner sur la composition chimique ou en phase, la topographie, etc.

Pour l'observation d'échantillons de céramiques non conductrices, comme la zircone, un dépôt doit être effectué pour conduire et évacuer de la surface les électrons du faisceau incident et éviter ainsi des effets de charge. Sur la surface analysée, ce dépôt doit être nanométrique pour ne pas être visible : dépôt carbone ou dépôt d'un alliage or-palladium

(Au-Pd). Pour rendre les autres surfaces conductrices, on effectue avec de la laque d'argent des ponts de connexion avec le support métallique.

Pour les échantillons métalliques, il n'y a aucun dépôt à effectuer.

## **(ii) Estimation d'une taille moyenne des grains**

Une taille moyenne de grain a été évaluée dans les différentes régions d'observation des échantillons (haut, centre, bas) par comptage à partir de micrographies contenant au moins une centaine de grains. Cette dimension correspond à un diamètre équivalent de l'aire interceptée du grain.

Lors du comptage, on distingue deux populations de grains  $N_1$  et  $N_2$  :

- $N_1$  est le nombre de grains entièrement visibles sur l'image ;
- $N_2$  est le nombre de grains non entièrement visibles sur l'image.

Soit  $A$ , l'aire réelle de l'image, le diamètre moyen déduit de l'aire interceptée du grain est donné par l'équation 132 :

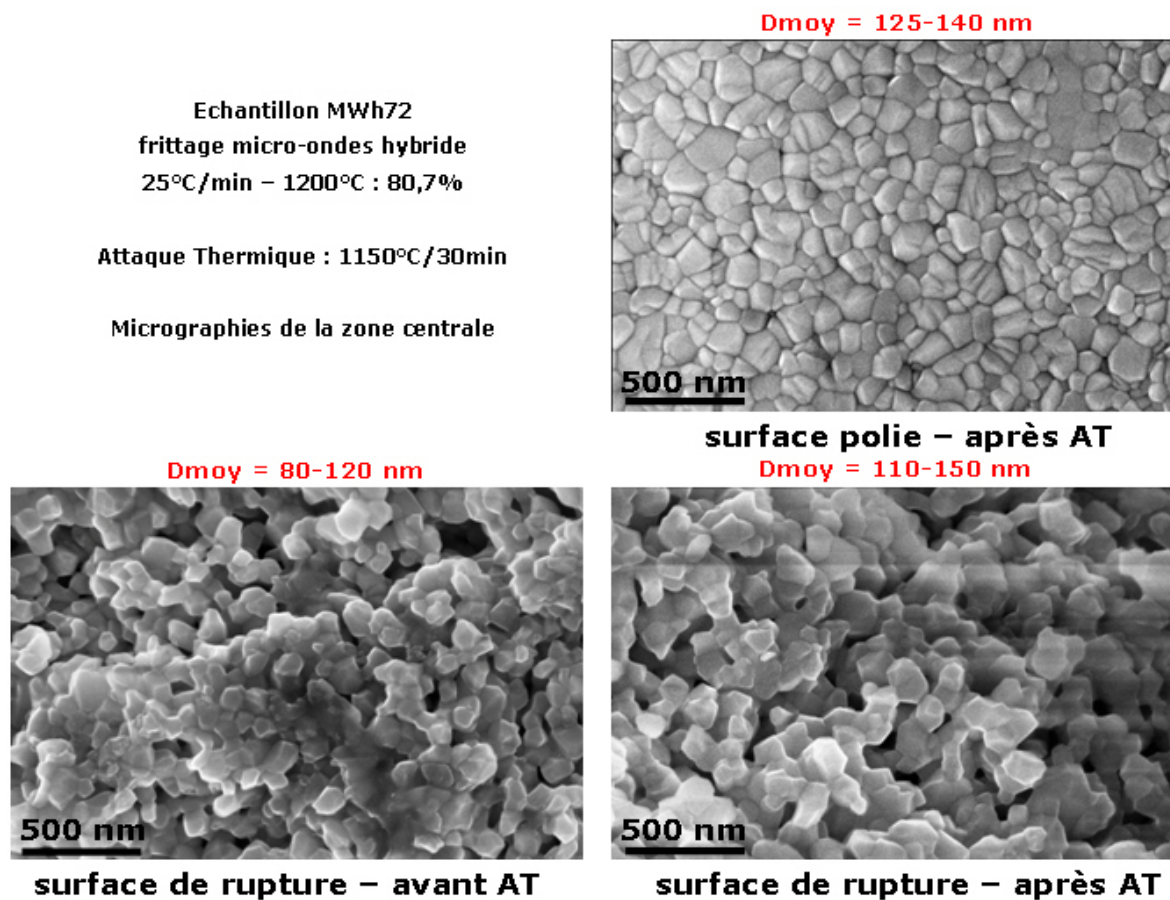
$$d_{eq} = 1,38 \cdot \sqrt{\frac{A}{N_1 + \frac{N_2}{2}}} \quad \text{Équation 132}$$

### III.B.3.c. Limite de l'attaque thermique

Pour révéler la microstructure de la zircone, nous avons eu recours à des attaques thermiques. La température d'attaque thermique étant proche de la température de frittage des échantillons, ce traitement pourrait conduire dans certains cas à un grossissement des grains. Bien entendu on peut supposer qu'une attaque thermique de 30 min à 1450°C sur un échantillon de zircone fritté à 1500°C pendant 2 heures n'a que peu d'influence sur la microstructure. En revanche, dans notre cas, la vitesse de chauffage est assez rapide (25°C/min), il n'y a pas de maintien à la température de frittage et les échantillons ne sont pas toujours complètement denses ; en particulier, entre 1200°C et 1350°C, la vitesse de densification est élevée. Si bien que ce traitement thermique pourrait conduire à une évolution de la densité et de la microstructure. Conscients de cette éventualité, nous avons souhaité le vérifier et estimer le cas échéant l'erreur sur l'estimation de la taille moyenne des grains.

L'échantillon expertisé a été fritté par chauffage micro-ondes hybride à la vitesse de 25°C/min jusqu'à 1200°C (densité ~ 80%). La masse volumique et la surface spécifique BET ont été mesurées avant et après attaque thermique. Les surfaces de fracture avant

et après attaque thermique ainsi que la surface polie après attaque thermique ont été observées au MEB-FEG (Figure 42).



**Figure 42 : Comparaison des micrographies MEB sur surfaces de fracture et surface polie avant et après attaque thermique (AT) 1150°C/30min de l'échantillon de zircone 2Y-TZP MWh72**

De ces analyses et observations ont été déduites différentes données récapitulées dans le Tableau 4.

Tableau 4. Comparaison de la densité, de la surface spécifique et de la taille des grains de l'échantillon MWh72 avant et après attaque thermique

Echantillon MWh72 25°C/min-1200°C	avant attaque thermique	après attaque thermique
Densité relative (%)	79,8	81,7
Surface spécifique BET (m <sup>2</sup> /g)	1,91	1,85
Taille moyenne des grains sur surface de fracture (nm)	80-120	110-150
Taille moyenne des grains sur surface polie (nm)	-	125-140

Durant l'attaque thermique de 30 min à 1150°C, la densité a augmenté de près de 2% et s'est accompagnée d'une diminution de la surface spécifique BET de 1,91 à 1,85 m<sup>2</sup>/g. Les micrographies MEB sur surface de fracture montrent qu'il y a eu un grossissement des grains : de 80-120 nm avant attaque thermique à 110-150 nm après attaque thermique. Sur surface polie, la taille moyenne des grains a été estimée à environ 125-140 nm. Ces données confirment qu'il y a eu densification et croissance des grains durant l'attaque thermique. L'augmentation de la taille des grains est de l'ordre de 30% dans ce cas.

Malgré ce biais systématique dû à l'attaque thermique, on peut raisonnablement penser que l'estimation de la taille des grains permettra :

- (i) de mettre en évidence des hétérogénéités de microstructure au sein d'un même échantillon ;
- (ii) de comparer pour une même température les microstructures des échantillons frittés conventionnellement ou par micro-ondes ;
- (iii) de tracer une évolution pertinente de la taille des grains en fonction de la température ou de la densité.

### III.C. MISE EN FORME DES POUDRES & FRITTAGE

#### III.C.1. COMPACTION

L'objectif de cette étape est d'obtenir une pièce cohérente avec une géométrie déterminée et des dimensions précises. La manière d'exercer la pression sur la poudre a une incidence sur la structure de l'empilement granulaire et donc sur les caractéristiques finales de la pièce. On distingue ainsi le pressage en matrice du pressage isostatique où les contraintes sont isotropes. Ces deux techniques de mise en forme sont des procédés dits en voie sèche, par différenciation des procédés en voie plastique/pâteuse (injection, extrusion) ou en voie humide (coulage).

L'étape de pressage permet d'augmenter la cohésion et la densité du milieu granulaire sous l'action d'une pression extérieure. Pour les poudres céramiques, la consolidation est généralement assurée par l'ajout de liants et de plastifiants lors de la granulation de la poudre. Cet ajout permet la déformation des granules et la formation de ponts entre les particules afin d'assurer à la structure granulaire une certaine cohésion ou tenue. Pour les poudres métalliques, la consolidation est plutôt due à l'enchevêtrement des particules déformées et aux surfaces de contact (interactions faibles).

On peut décrire le comportement d'une poudre céramique granulée pendant le pressage en trois étapes :

- le réarrangement des granules entre eux sans déformation de ceux-ci ;
- l'élimination de la porosité intergranulaire (entre les granules) par déformation ou fragmentation des granules ;
- l'élimination de la porosité intragranulaire (dans les granules) par réarrangement des grains de poudre (particules primaires) dans les granules ou leurs fragments ; cette étape se traduit par une augmentation du nombre de coordinence entre grains.

Dans le cas d'une poudre métallique, les particules peuvent également se déformer plastiquement pour de fortes pressions, ce qui augmente encore la densité à vert.

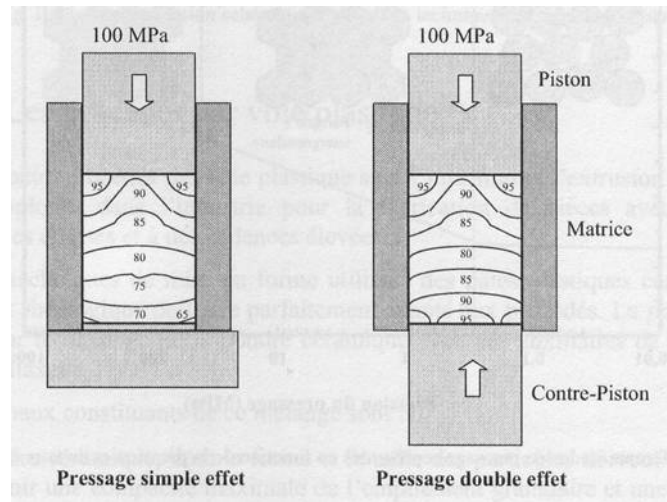
### III.C.1.a. Compaction en matrice simple et double effet

Pendant la compaction en matrice, la poudre est comprimée entre deux pistons dans une matrice rigide. Les forces de frottement entre la poudre et les parois de la matrice sont à l'origine de gradients de densité dans la pièce en cru. D'autre part, l'état de contrainte anisotrope induit une microstructure plus ou moins anisotrope. Ces gradients de densité et cette anisotropie conduisent à des retraits différentiels pendant le frittage et à une déformation non homothétique de la pièce frittée. On distingue deux techniques (Figure 43) :

- la compaction simple effet avec un seul piston mobile ;
- la compaction double effet avec deux pistons mobiles.

Avec cette dernière technique la pression de compaction est plus homogène pour une même hauteur de comprimé.

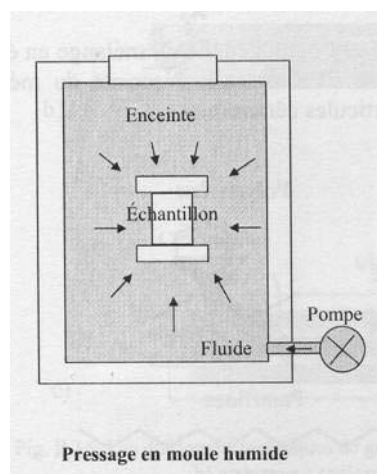
La compaction des poudres de zircon et de nickel a été réalisée en mode simple effet dans une matrice rigide en acier de 8 mm de diamètre à l'aide d'une presse hydraulique. Compte tenu de ce diamètre, la force appliquée sur le piston est de 5 kN pour une pression de 100 MPa, 10 kN pour 200 MPa, etc. Les pressions appliquées sont comprises entre 50 MPa et 600 MPa.



**Figure 43 : Représentation schématique du pressage en matrice et des courbes isobares dans une pièce pressée en mode simple et double effet [BOU 02]**

III.C.1.b. Compaction isostatique à froid

Pendant le pressage isostatique (ou hydrostatique) représenté dans la Figure 44, la poudre est contenue dans une membrane ou un moule déformable, souvent en polyuréthane (PU), l'isolant du fluide de compression. Ce moule est plongé dans un fluide (eau, huile) qui, mis sous pression à l'aide d'une pompe, exerce des contraintes identiques dans toutes les directions. Le pressage isostatique permet d'obtenir des pièces avec des densités plus homogènes et une structure plus isotrope que dans le cas de la compaction en matrice rigide. Cette technique est surtout utilisée pour la réalisation de pièces avec des formes complexes et/ou volumineuses, ou avec des rapports hauteur/diamètre élevés.



**Figure 44 : Représentation schématique de la compaction isostatique à froid (CIP) en moule humide [BOU 02]**

Seule la poudre de zircon a été compactée avec ce procédé. Deux méthodes ont été employées. La première consiste à mettre en forme des barreaux dans des gaines cylindriques en PU de 6 à 12 mm de diamètre pour une hauteur de 140 mm environ. Les géométries des pièces obtenues sont assez irrégulières et leur état de surface médiocre. De plus, du fait de la fragilité des barreaux en cru, ces pièces sont difficilement usinables en cylindres réguliers. La seconde technique est en fait la succession d'une compaction en matrice à faible pression (50-100 MPa) suivie d'un pressage isostatique dans des films plastiques à plus forte pression (250 MPa). Cette méthode employée pour la zircon assure une bien meilleure maîtrise de la géométrie des pièces. Le résultat de cette compaction en deux étapes s'est donc révélé très satisfaisant.

### III.C.2. DELIANTAGE

L'amélioration de la coulabilité des poudres ou la mise en forme des pièces impose souvent la granulation des particules primaires à l'aide d'une quantité variable de liants et de plastifiants. Cette matière organique assure la cohésion de la pièce en cru avant le frittage. Il est cependant nécessaire d'éliminer ces additifs de mise en forme avant la consolidation et la densification de la poudre au cours d'une étape appelée déliantage, qui précède le frittage à haute température.

Généralement incluse dans le cycle de frittage, cette opération de déliantage est délicate car elle fragilise la pièce en cru après élimination des liants et plastifiants de la structure granulaire et peut provoquer l'apparition de fissures sous l'action de contraintes internes résiduelles dues à la mise en forme ou des gaz issus du déliantage. Les conditions de déliantage sont ajustées pour obtenir une élimination progressive des additifs organiques, surtout pour les pièces volumineuses ou épaisses. En général, les vitesses de chauffage sont très lentes, de l'ordre de 100°C/h. L'évacuation des liants et des plastifiants peut être suivie par analyse thermogravimétrique (ATG), ce qui permet de déterminer la température et le temps de déliantage. Parmi les différentes techniques de déliantage, on peut citer le déliantage thermique par pyrolyse des composés organiques, le déliantage par sous-pression, le déliantage par chauffage micro-ondes, etc.

Après la mise en forme, un déliantage thermique par pyrolyse des échantillons de zircon est réalisé dans un four électrique tubulaire sous flux d'air. La vitesse de chauffage est de 300°C/h (5°C/min), ce qui n'engendre pas de fissuration des pièces en cru étant donné la petite taille des échantillons (< 1 cm<sup>3</sup>) et leur faible teneur en additifs organiques (0,5% massique). La température de déliantage est maintenue à 600°C pendant une durée de 3h.

Il n'y a pas de liant à éliminer dans la poudre de nickel.



### III.C.3. PROCEDURE D'ETUDE DU FRITTAGE CONVENTIONNEL

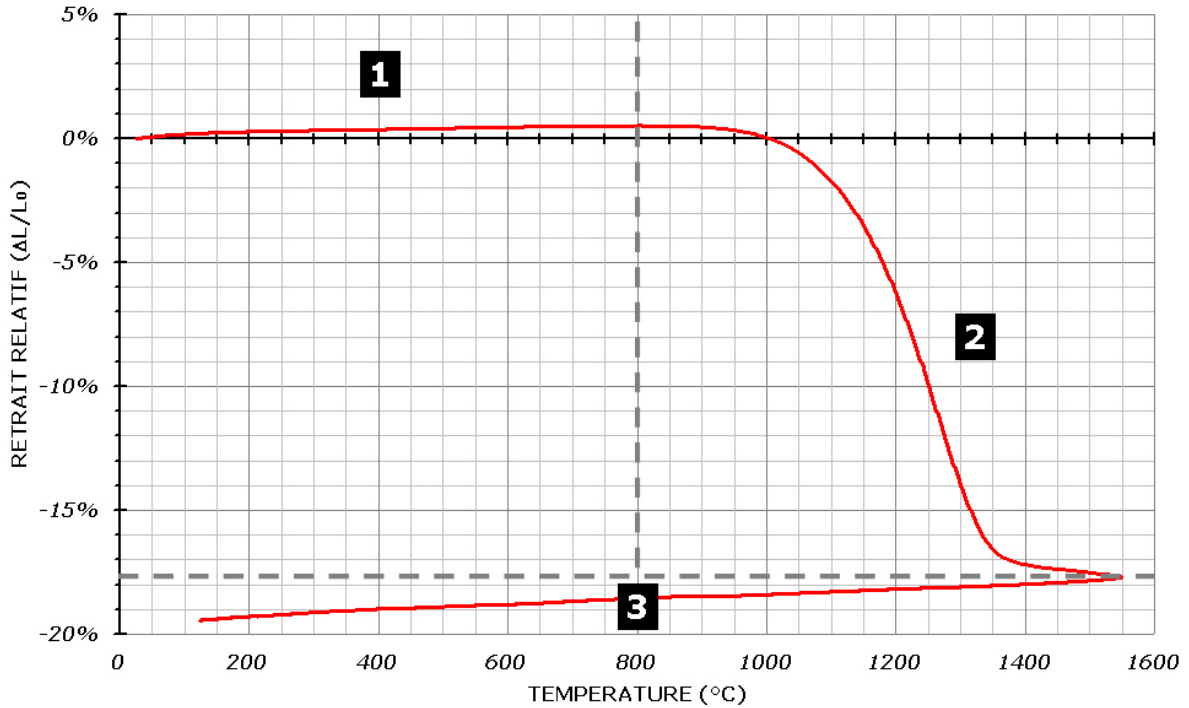
Le frittage est un processus activé thermiquement qui permet la transformation d'un empilement de particules individuelles en un matériau cohérent plus ou moins dense. Les différentes étapes de transformation du matériau ainsi que les mécanismes de frittage en phase solide seront exposés plus en détails dans le préambule du chapitre IV. A ce niveau, on retiendra seulement que la conversion du corps cru en un solide dense a lieu par le remplacement des interfaces solide-gaz par des interfaces solide-solide, par disparition de la porosité et par changement de la forme et de la taille des grains. Ces mécanismes du frittage à l'échelle des grains provoquent des changements macroscopiques du matériau (augmentation de la rigidité, changement de dimensions). L'étude du frittage des matériaux fait généralement appel à des techniques de mesure de grandeurs macroscopiques pour remonter aux aspects microscopiques.

Le frittage d'un matériau peut être mis en évidence expérimentalement par la réduction de sa surface spécifique (méthode d'adsorption BET), un changement des dimensions de l'échantillon (dilatométrie) ou encore l'évolution des porosités ouverte et fermée (porosimétrie, pycnométrie).

La procédure d'analyse mise en œuvre ici est la dilatométrie. Le dilatomètre est un appareil de mesure permettant de suivre les variations de la longueur d'un échantillon de poudre comprimée pendant un cycle thermique. Soit  $L$ , la longueur de l'échantillon à la température  $T$ , et  $L_0$ , sa longueur initiale, alors on définit la variation relative de longueur, appelée aussi le retrait relatif,  $\frac{L - L_0}{L_0}$  ou  $\frac{\Delta L}{L_0}$  en fonction de la température.

La Figure 45 montre la courbe de retrait obtenue pour un échantillon de zircone yttrée 2Y-TZP (essai L215/C2) dont le cycle de frittage comprend un chauffage à 25°C/min jusqu'à 1550°C sans palier à cette température, suivi d'un refroidissement à la même vitesse. On peut distinguer trois phases :

- 1- une augmentation de la longueur correspondant à la dilatation du comprimé sous l'effet de la chaleur ;
- 2- une diminution importante de cette longueur à partir d'une certaine température, qui caractérise une densification du matériau induite par le frittage, puis une stabilisation en fin de densification ;
- 3- une diminution de la longueur avec la température correspondant, non plus à un retrait, mais à la dilatation thermique négative (contraction) du matériau fritté ; on peut déduire de la pente de cette droite le coefficient d'expansion thermique du matériau (CTE =  $12,2 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )



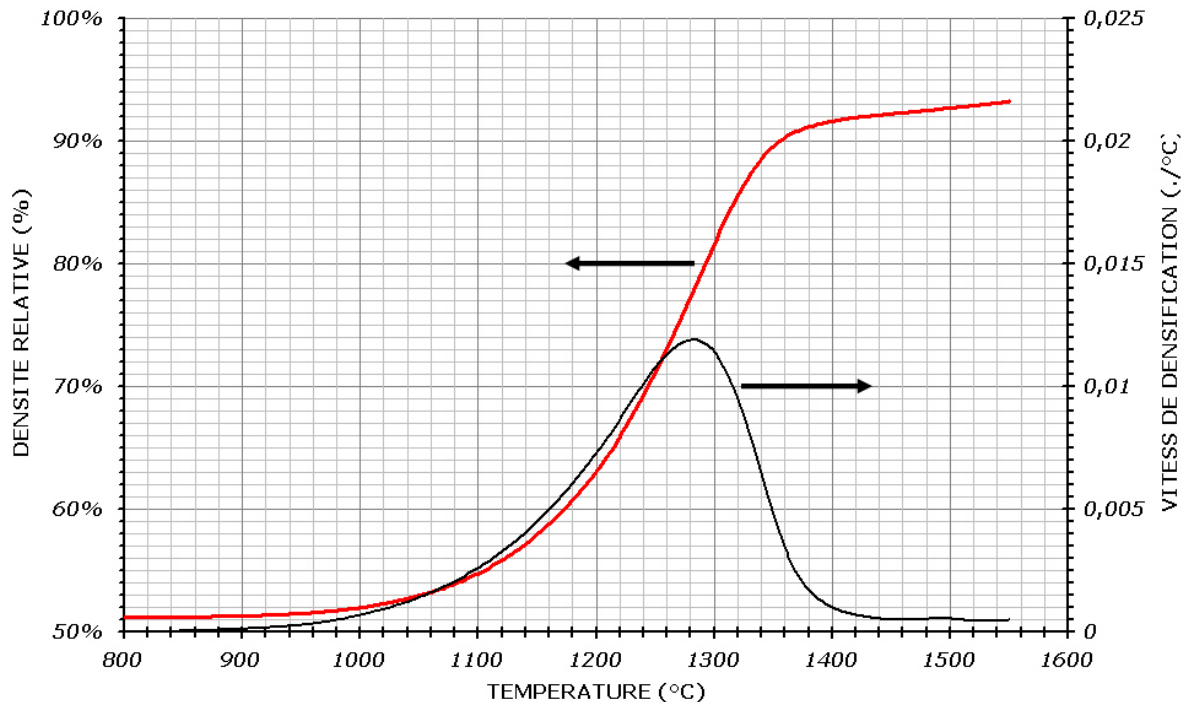
**Figure 45 : Courbe de retrait d'un échantillon de zircon (2Y-TZP) : variation du retrait relatif en fonction de la température**

En faisant l'hypothèse d'un retrait isotrope et en ayant mesuré la densité finale  $\rho_f$  et le retrait final  $\Delta L_f$ , on en déduit les variations de la densité relative ( $\rho_r = \rho / \rho_{th}$ , Equation 133) et de la vitesse de densification (Equation 134) en fonction de la température :

$$\rho_r(T) = \frac{\rho_f}{\rho_{th}} \cdot \frac{\left(1 + \frac{\Delta L_f}{L_0}\right)^3}{\left(1 + \frac{\Delta L(T)}{L_0}\right)^3} \quad \text{Équation 133}$$

$$\frac{d\rho_r(T)}{dT} = -3 \frac{\rho_f}{\rho_{th}} \cdot \frac{\left(1 + \frac{\Delta L(T_{MAX})}{L_0}\right)^3}{\left(1 + \frac{\Delta L(T)}{L_0}\right)^4} \cdot \frac{d\left(\frac{\Delta L(T)}{L_0}\right)}{dT} \quad \text{Équation 134}$$

Ceci permet de tracer la courbe de densification et des variations de la vitesse de densification (Figure 46).



**Figure 46 : Tracés des variations de la densité relative et de la vitesse de densification en fonction de la température**

La densité relative initiale du matériau est d'environ 52%. Le matériau commence à densifier à partir de 900°C. La vitesse de densification augmente ensuite pour atteindre un maximum à 1285°C, où le matériau a une densité de 77%, avant de décroître assez rapidement. La densité du matériau augmente alors de plus en plus lentement, notamment à partir de 90% de densité relative (1360°C). Au-delà, lors du dernier stade du frittage, la densité augmente régulièrement mais lentement avec la température pour atteindre 93,3% à la température de 1550°C avant refroidissement.

Cette méthode permet donc de suivre en continu l'évolution de la densité de la poudre pendant un cycle de frittage, de caractériser son comportement au frittage et de déterminer les meilleures conditions d'élaboration.

Pour le dilatomètre vertical utilisé dans cette étude (LINSEIS L75/1550, Allemagne), la vitesse de chauffage maximale est de l'ordre de 30°C/min et la température maximale est de 1600°C.

### III.C.4. PROCEDURE D'ETUDE DU FRITTAGE MICRO-ONDES

Cette partie traite de la mise en œuvre du frittage micro-ondes dans notre cavité monomode. Cette cavité offre plusieurs configurations de chauffage comme cela a été présenté dans le chapitre II (cf. II.B.2.c.). La procédure de chauffage choisie devra être la plus adaptée à la nature et aux propriétés du matériau ainsi qu'aux paramètres du procédé d'élaboration.

#### III.C.4.a. Détermination de la température par thermographie IR

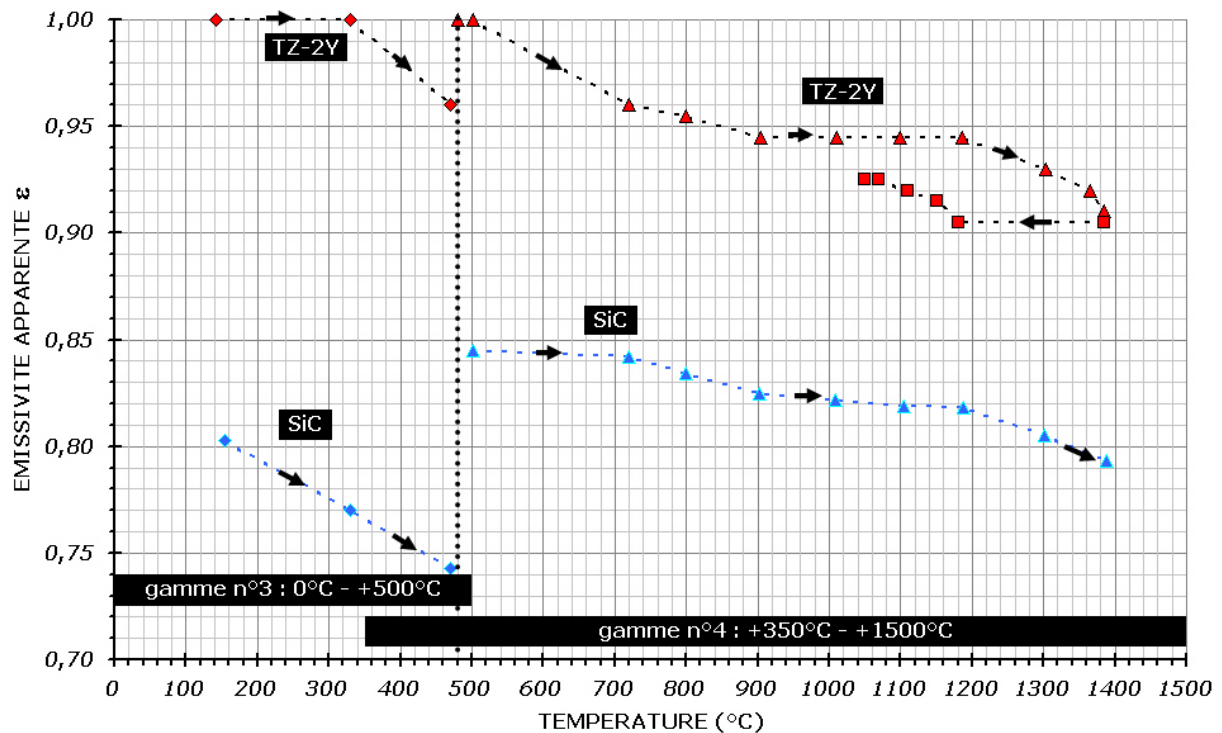
Le maîtrise de la vitesse de chauffage des échantillons et de leurs températures de frittage nécessite certes une bonne connaissance des conditions et paramètres expérimentaux influant sur la puissance transmise aux échantillons, mais surtout une mesure fiable et en temps réel de leur température.

Le principe de la thermographie ayant été décrit dans le chapitre II, nous allons nous intéresser dans cette partie à la manière de déterminer la température des matériaux placés dans la cavité micro-ondes avec la caméra IR. Tout d'abord, avant d'effectuer une mesure avec la caméra IR, il convient de déterminer quelques paramètres relatifs à l'objet, à l'atmosphère et à l'optique externe (fenêtre ZnSe).

Parmi tous ces paramètres, l'émissivité du matériau (cf. II.B.1.b - Equation 112) est celui devant être estimé le plus précisément possible, mais c'est aussi le plus difficile à déterminer. En effet, même si l'émissivité de certains matériaux est connue, ce qui n'est d'ailleurs pas le cas de la zircone et du carbure de silicium, elle l'est le plus souvent des températures relativement modestes ( $< 500^{\circ}\text{C}$ ) comparées aux températures de frittage ( $> 1000^{\circ}\text{C}$ ). De plus, l'émissivité est définie théoriquement pour une longueur d'onde ; généralement ce paramètre est donné pour une gamme de longueurs d'ondes. Par conséquent, l'émissivité dépend du détecteur de la caméra IR ou du pyromètre. Par ailleurs, même si l'émissivité dépend principalement de la température et de la longueur d'onde, elle varie aussi avec l'état de surface du matériau. Or, la microstructure de notre matériau évolue et son état de surface change au cours du frittage.

La détermination des variations de l'émissivité de la zircone yttrée 2Y-TZP et du carbure de silicium SiC constituant le suscepteur a été réalisée dans un four électrique tubulaire en comparant la température mesurée par le thermocouple du four et celle estimée avec la caméra IR. La valeur de l'émissivité, dite apparente, de l'objet est modifiée dans le logiciel d'acquisition et d'analyse des images provenant de la caméra IR de manière à ce que la température affichée par la caméra IR corresponde à celle mesurée par le thermocouple. La Figure 47 montre les évolutions de l'émissivité apparente de la zircone

et du carbure de silicium en fonction de la température. Les températures mesurées allant de l'ambiante à près de 1400°C, la caméra a été utilisée sur deux gammes de mesure de température (gamme n°3 : 0°C - +500°C & gamme n°4 : +350°C - +1500°C – cf. II.B.1.d. Figure 25), ce qui explique les discontinuités observées vers 480°C.



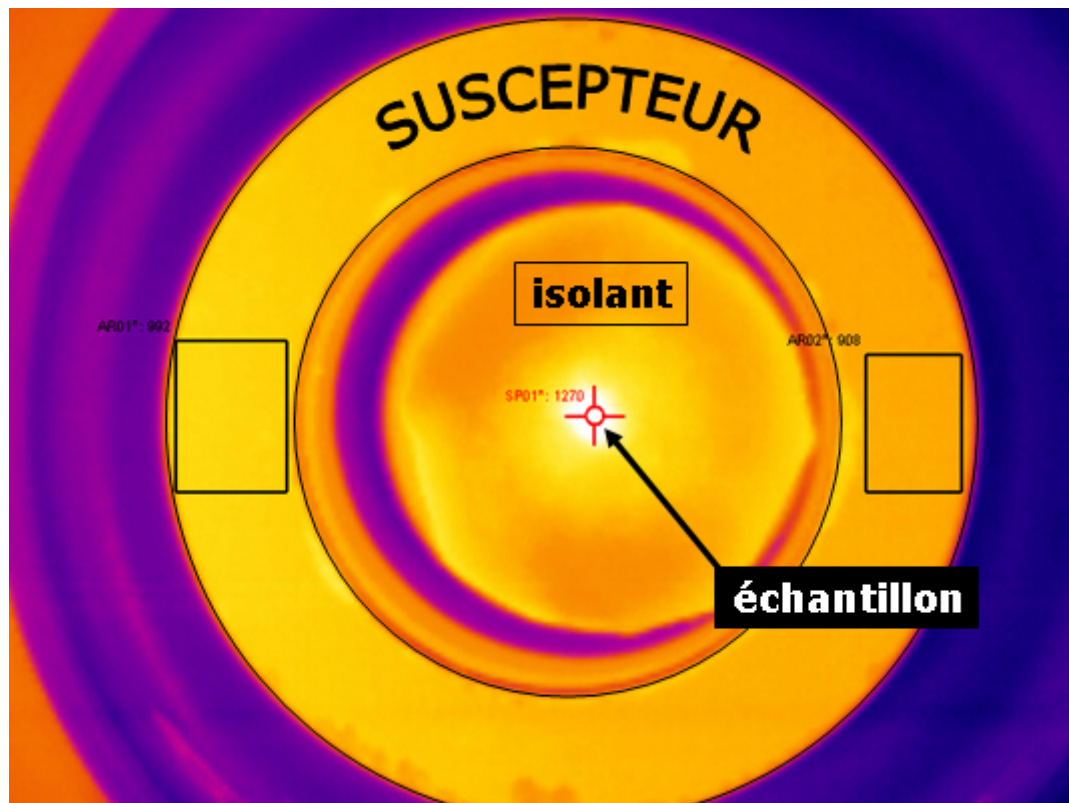
**Figure 47 : Variations de l'émissivité apparente de la zircone yttrée 2Y-TZP et du carbure de silicium SiC en fonction de la température**

Pour le carbure de silicium, nous avons trouvé que son émissivité apparente variait entre 0,80 et 0,74 jusqu'à 400°C, puis entre 0,85 et 0,79 de 400°C à 1400°C.

Pour la zircone, l'émissivité apparente varie entre 1,00 et 0,96 jusqu'à 400°C, et entre 1,00 et 0,90 de 400°C à 1400°C. On remarque que les variations de l'émissivité en fonction de la température ne sont pas identiques au chauffage et au refroidissement : ceci souligne l'effet de la microstructure du matériau et de son état de surface. Au chauffage, on estime l'émissivité du matériau en cours de densification alors qu'au refroidissement on estime celle du matériau fritté et dense : l'émissivité du matériau fritté et sensiblement plus faible.

Connaissant les variations de l'émissivité apparente de ces deux matériaux avec la température, il devient possible de déterminer avec la caméra IR leur température de surface à tout instant au cours d'un cycle de chauffage. Contrairement à un pyromètre qui calcule la température moyenne de la surface comprise dans son cône de visée, la caméra fournit une image des objets. Dans notre cas, la caméra est placée au-dessus de

la cavité, dans le prolongement de la cheminée, on obtient donc une image des surfaces supérieures des objets (Figure 48). A partir des images, on peut connaître simultanément l'évolution des températures (minimale, moyenne et maximale) de la surface sélectionnée de chaque objet.



**Figure 48 : Image provenant de la caméra IR au cours du chauffage d'un échantillon de zircone yttrée TZ-2Y avec suscepteur**

Dans la suite de cette étude, sauf indication contraire, la température mesurée pour l'échantillon correspond à la température mesurée au centre de la croix (moyenne sur quelques pixels) placée sur l'image à l'emplacement du trou percé dans l'isolant (cf. II.B.2.c.). Pour le suscepteur en carbure de silicium (anneau visible autour de l'échantillon), la température est mesurée dans deux zones (rectangles) situées de part et d'autre de la pièce, puis moyennée.

#### III.C.4.b. Paramètres contrôlant le chauffage

Au cours des essais de frittage, la maîtrise de la température de l'échantillon et de la vitesse de chauffage ont été recherchées. Dans le cas de matériaux diélectriques, ces deux grandeurs dépendent de la puissance électrique convertie en chaleur par le matériau : cette puissance a été appelée puissance dissipée par le matériau et notée  $P_M$

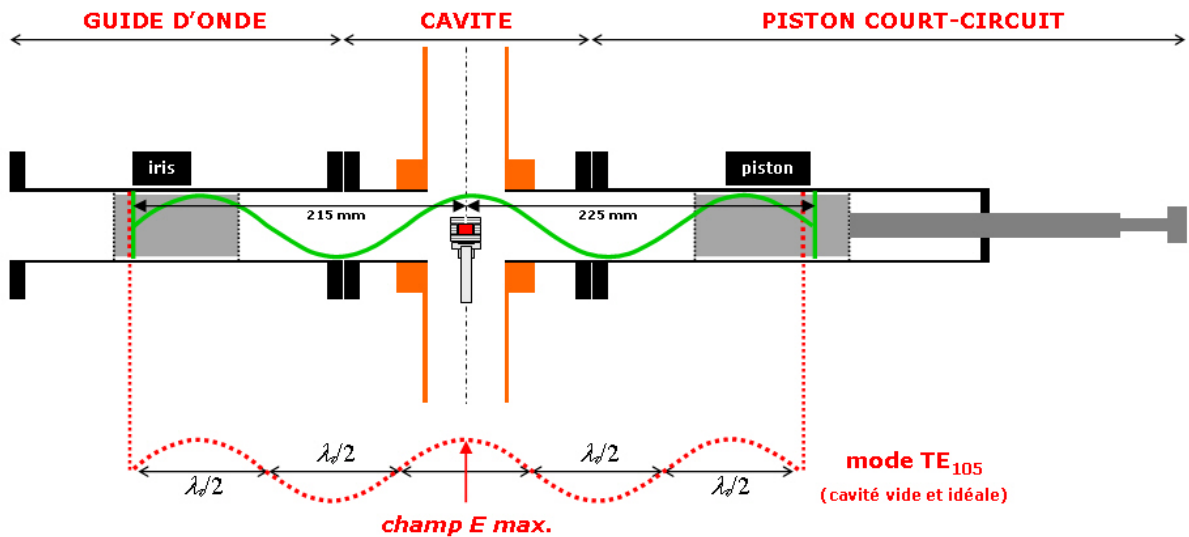
(cf. I.E.1.). Or, cette puissance ne peut être ni mesurée, ni maîtrisée. Cependant, on sait que la distribution de la puissance électromagnétique dans la cavité et au sein même du matériau va dépendre de plusieurs paramètres : les caractéristiques de l'échantillon (propriétés diélectriques ou magnétiques, géométrie, position), la position de l'iris, la puissance incidente et la position du piston.

Les propriétés du matériau sont ce qu'elles sont et il faudra s'en accommoder. Quant à la géométrie, elle doit également être fixée pour réaliser une étude comparative car la taille de l'échantillon a une influence sur la distribution du champ électromagnétique (cf. II.D.). Enfin, la conception de la cavité impose de placer l'échantillon au centre de la cavité à une position fixe.

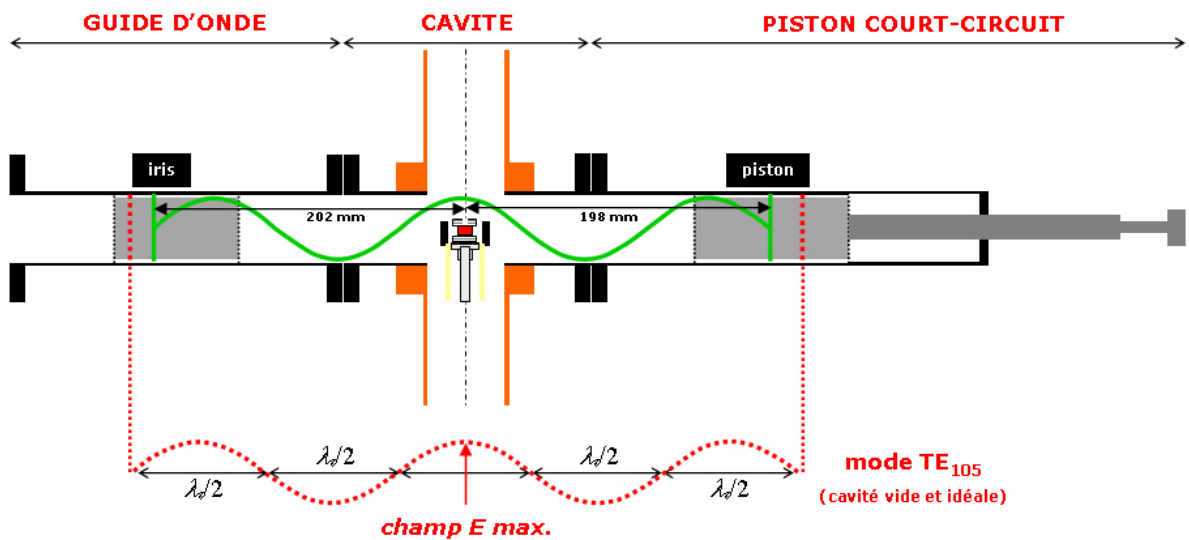
La position de notre iris est fixée avant chaque expérience en fonction de la nature du matériau à fritter, de la géométrie des échantillons et du type de chauffage (champ électrique ou magnétique, avec ou sans suscepteur). La distance iris-échantillon doit être choisie égale à la moitié de la distance iris-piston conduisant à la résonance, sachant que la résonance est mise en évidence par un minimum de puissance réfléchie  $P_R$  mesurée par le porte-cristal détecteur situé au-dessus de l'isolateur. Ceci revient à un maximum de puissance électromagnétique  $P_C$  dans la cavité. Ainsi, l'échantillon sera positionné à un maximum du champ électrique (ou magnétique) pour le mode de résonance  $TE_{105}$  (ou  $TE_{104}$ ). Théoriquement, la longueur de la cavité (distance entre l'iris et le piston) est pour le mode de résonance  $TE_{105}$  de 431,8 mm (5 fois la demi-longueur d'onde guidée) dans une cavité vide, parfaite (résistivité nulle des parois) et fermée (sans liaisons et sans ouvertures).

En réalité, on sait que la configuration du champ électromagnétique est un peu modifiée en raison de la conception de la cavité, avec des ouvertures de part et d'autre pour l'introduction des matériaux et la mesure de la température, et du fait de la présence de matériaux dans la cavité (échantillon, supports en quartz et en alumine, suscepteur, matériaux isolants). La longueur d'onde est différente puisqu'on constate expérimentalement que la longueur de la cavité pour le mode de résonance correspondant varie de quelques millimètres à quelques centimètres. Pour le mode de résonance  $TE_{105}$ , cette longueur est d'environ 440 mm en configuration chauffage direct (Figure 49), alors qu'en configuration chauffage indirect, avec le suscepteur, elle n'est plus que de 400 mm (Figure 50).

Finalement, pour une expérience, ils restent deux paramètres ajustables au cours du temps : la puissance incidente et la position du piston.



**Figure 49 : Chauffage direct par micro-ondes (sans suscepteur)  
Distances entre l'iris, l'échantillon et le piston  
dans des conditions proches de la résonance pour le mode TE<sub>105</sub>**



**Figure 50 : Chauffage par micro-ondes avec suscepteur  
Distances entre l'iris, l'échantillon et le piston  
dans des conditions proches de la résonance pour le mode TE<sub>105</sub>**

La représentation du champ électrique sous la forme d'une onde sinusoïdale est évidemment trop simpliste pour refléter la réalité où la distribution du champ électrique est beaucoup plus complexe (cf. II.D.). Cependant les figures 14 et 15 illustrent le fait que les positions de l'iris et du piston doivent être adaptées, respectivement avant et pendant l'expérience, en fonction du type de chauffage (direct ou avec suscepteur), afin d'obtenir le couplage adéquat entre le champ électrique et l'échantillon. Ce couplage doit, on le rappelle, permettre au matériau de convertir la puissance électrique qu'il absorbe en une puissance dite dissipée par le matériau et notée  $P_M$ . La valeur de cette puissance



$P_M$  impose à chaque instant à l'échantillon une vitesse de chauffage instantanée et une température.

#### III.C.4.c. Optimisation de la procédure de chauffage

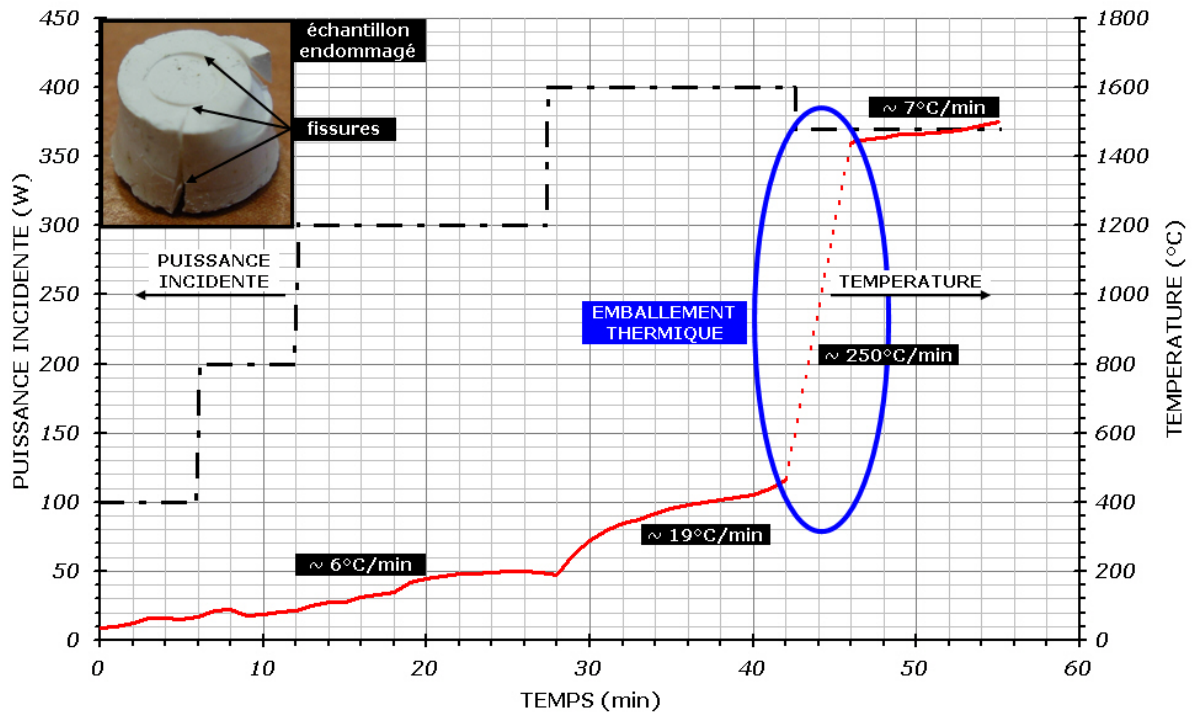
La maîtrise du procédé de chauffage par micro-ondes et l'optimisation de la procédure doivent permettre d'atteindre nos objectifs qui comprennent d'une part la réalisation d'une étude comparative entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel de la zircone yttrée et d'autre part l'étude du frittage par micro-ondes de poudres métalliques. L'enjeu est de maîtriser la vitesse de chauffage et la température de frittage afin d'étudier l'évolution microstructurale de la zircone pendant le chauffage par micro-ondes. Dans une cavité multimode, le paramètre pilotant le chauffage est la puissance délivrée par le magnétron : c'est une régulation en puissance. La puissance peut, si nécessaire, être ajustée pour faire suivre à l'échantillon un cycle thermique. Dans notre cavité monomode, il y a au plus deux paramètres à ajuster simultanément : la puissance incidente et la position du piston.

Il pourrait aussi y avoir un autre paramètre qui est l'iris mais dans notre installation ce dernier a une géométrie unique et n'est pas déplaçable pendant un essai.

##### **(i) procédure 1 :**

##### **→ régulation par ajustements discontinus et successifs de la puissance incidente et de la position du piston court-circuit**

La procédure de chauffage la plus naturelle consiste à appliquer une puissance incidente croissante par palier afin d'augmenter régulièrement la température de l'échantillon. Pour chaque valeur de puissance incidente, la position du piston est ajustée pour atteindre progressivement la résonance (maximum de puissance électromagnétique dans la cavité).



**Figure 51 : Résultat d'un essai de frittage micro-ondes direct d'un échantillon de zircone (2Y-TZP) avec puissance incidente variable de 100 W à 400 W**

La Figure 51 montre que la température de l'échantillon augmente dans un premier temps plutôt lentement ( $\sim 6^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) avant de se stabiliser. La puissance incidente doit alors être augmentée à nouveau, puis la position du piston (non représentée) doit être modifiée sensiblement pour satisfaire aux conditions de résonance ; ainsi la température de l'échantillon augmente et ainsi de suite. A partir de  $200^{\circ}\text{C}$ , la vitesse de chauffage moyenne atteint presque  $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$  avec une puissance incidente de 400 W. Et lorsque la température dépasse  $400^{\circ}\text{C}$ , une augmentation extrêmement rapide, et surtout incontrôlée, de la température est observée une puissance incidente identique. La vitesse de chauffage atteint alors plus de  $250^{\circ}\text{C}/\text{min}$ . Lorsque la température de l'échantillon atteint environ  $1400^{\circ}\text{C}$ , la vitesse de chauffage revient très rapidement à une valeur inférieure à  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ .

La conclusion de cette expérience est qu'il n'est pas possible de maintenir une vitesse de chauffage constante durant tout le cycle de frittage par une augmentation croissante de la puissance incidente et des ajustements successifs de la position du piston. En effet, la vitesse de chauffage est plutôt lente à basses températures ( $\sim 6^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ), tandis qu'une augmentation extrêmement rapide de la vitesse de chauffage à partir de  $400^{\circ}\text{C}$  ( $\sim 250^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) semble difficilement évitable. Celle-ci conduit d'ailleurs à un endommagement important de l'échantillon de zircone, comme on peut l'observer sur la Figure 51.

Une explication de ce phénomène d'emballlement peut se trouver dans le changement des propriétés diélectriques de la zircone avec la température [BAT95] [LAS00]. On rappelle que la zircone est un matériau à faibles pertes diélectriques, donc qui couple faiblement avec les micro-ondes, à basse température. En revanche, à partir de 400°C environ, le facteur des pertes diélectriques augmente significativement ce qui se traduit par un meilleur couplage avec les micro-ondes (cf. III.A.1.). C'est-à-dire que, dans l'expérience précédente, pour une même puissance incidente (400 W), la conversion d'énergie électromagnétique en chaleur au sein même du matériau devient beaucoup plus importante ( $P_M$  augmente rapidement) : vers 400°C, la vitesse de chauffage passe ainsi de 20°C/min à plus de 250°C/min alors que la puissance incidente est de l'ordre de 400 W puis 350 W. Par conséquent, pour éviter une augmentation trop rapide de la puissance dissipée dans le matériau et donc de sa température, il faut diminuer la puissance électromagnétique dans la cavité.

Ce changement des propriétés diélectriques avec la température est un des facteurs clés à l'origine de l'endommagement des échantillons mais un autre phénomène peut aussi expliquer cet endommagement. A cause du positionnement de l'échantillon par rapport au champ électromagnétique ou de la profondeur de pénétration de ce champ dans le matériau, la distribution du champ électrique, et donc de la température, peut être non uniforme et dans ce cas, la température locale peut varier à l'intérieur de l'échantillon. Si un petit volume atteint la température critique avant le reste de l'échantillon alors cette zone va chauffer beaucoup plus rapidement. Ceci forme alors un point chaud (hot spot) dû à un emballlement thermique localisé (localized thermal runaway) qui peut générer des contraintes internes assez élevées pour causer la fissuration ou l'éclatement de l'échantillon (Figure 51) [BRA 92]. En l'absence d'isolant placé autour des échantillons, les hétérogénéités de distribution de la température dans les matériaux sont encore accrues comme c'était le cas au cours de cette expérience.

Bien que cette méthode de régulation à deux paramètres soit peu réactive et peu satisfaisante, elle peut permettre de déterminer les positions relatives de l'iris, de l'échantillon et du piston à la résonance et de connaître la puissance incidente minimale pour atteindre la température de frittage.

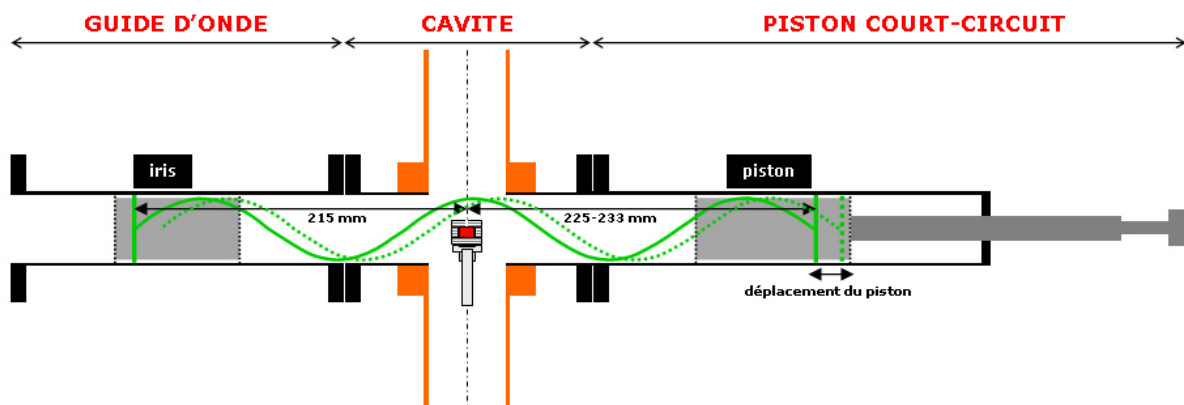
## **(ii) procédure 2 :**

### **→ régulation par ajustement continu de la position du piston court-circuit à puissance incidente constante**

Une seconde procédure de régulation du chauffage a été développée à partir des expériences précédentes, avec pour objectif la maîtrise d'une vitesse de chauffage constante. Cette fois, la puissance incidente est fixée à une valeur permettant d'atteindre

la température maximale de frittage du matériau. Cette puissance est déterminée par tâtonnements selon la procédure 1, en réalisant quelques expériences sur des échantillons identiques pour des puissances incidentes croissantes. A cette puissance incidente correspond une distance iris-piston optimale  $L_{opt}$  pour qu'il y ait résonance dans la cavité. L'iris est alors placé à  $L_{opt}/2$  du centre de la cavité où est positionné l'échantillon. Le piston est positionné alors non pas  $L_{opt}/2$ , pour éviter la résonance, mais à  $L_{opt}/2 + 15$  mm environ.

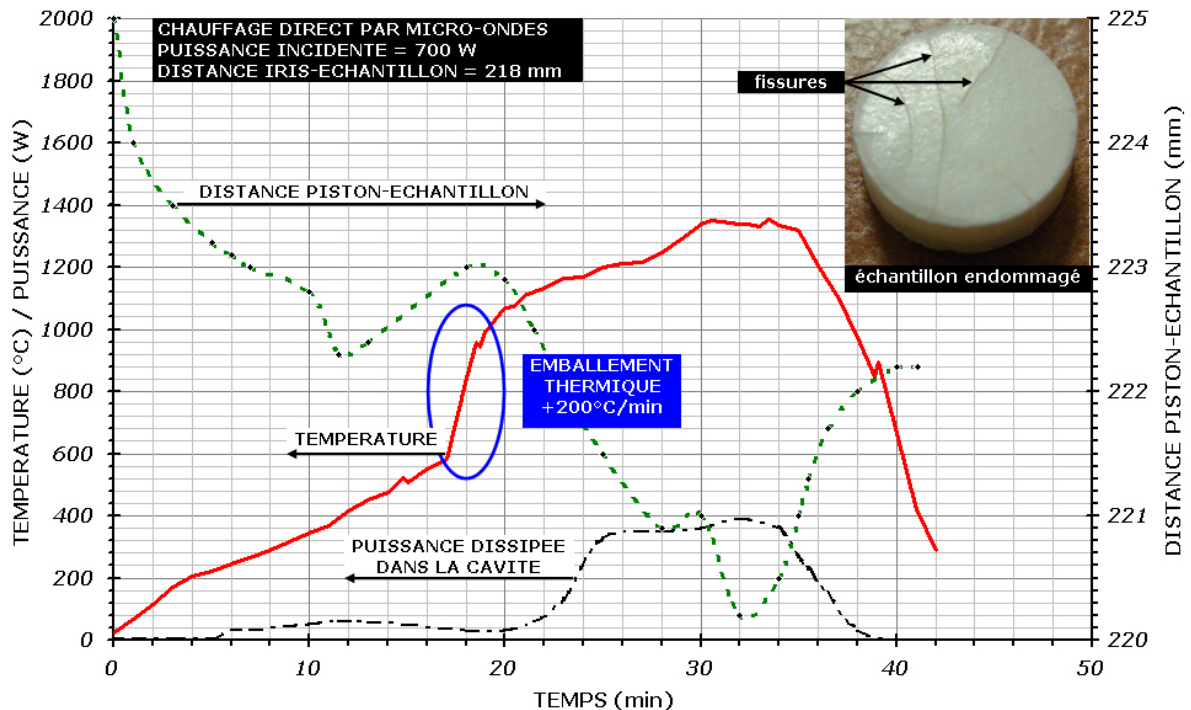
La situation illustrée dans la Figure 52 est simple: si le piston est approché de la position où il y a résonance (le piston est avancé donc la distance piston-échantillon diminue), la puissance électromagnétique dans la cavité augmente. Au contraire, s'il s'en éloigne (le piston est reculé donc la distance piston-échantillon augmente), cette puissance électromagnétique diminue.



**Figure 52 : Maîtrise du chauffage par déplacement du piston court-circuit à puissance incidente constante**

#### # 1<sup>er</sup> essai

La Figure 53 montre l'évolution de la température d'un échantillon de zircone (2Y-TZP), de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité  $P_c$  (différence entre la puissance incidente et la puissance réfléchie) et de la distance piston-échantillon. Cet essai de frittage micro-ondes direct a été réalisé avec une distance iris-échantillon de 218 mm et une puissance incidente constante de 700 W.



**Figure 53 : Résultat d'un essai de frittage micro-ondes direct d'un échantillon de zircon (2Y-TZP) à puissance incidente constante de 700 W**

Pendant les 12 premières minutes, le piston a été avancé vers l'échantillon (la distance piston-échantillon diminue) ; on observe alors une lente augmentation de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité jusqu'à une valeur de 70 W. La vitesse de chauffage est d'environ 45°C/min les 4 premières minutes puis d'environ 25°C/min entre les 4<sup>ème</sup> et 12<sup>ème</sup> min : le matériau atteint 400°C en 12 min. Ensuite, le piston a été éloigné de l'échantillon de 222,3 mm à 223,0 mm ; la puissance dissipée dans la cavité diminue de 70 W à 30 W environ. Dans le même temps, la vitesse de chauffage du matériau reste constante entre 400°C et 600°C avant d'augmenter soudainement pour atteindre 1000°C en seulement 2 min. Entre les 17<sup>ème</sup> et 19<sup>ème</sup> minutes de cette expérience, la vitesse de chauffage de la zirconie passe de 25°C/min à environ 200°C/min alors que la puissance incidente est constante (700 W), que la position du piston ne change quasiment pas (~ 223 mm) et que la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité diminue. Ensuite, le piston est à nouveau avancé vers l'échantillon jusqu'à une distance minimale de 220,2 mm. Entre 1000°C et 1360°C, la vitesse de chauffage de l'échantillon est plus modérée tandis qu'on mesure une augmentation significative de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité qui atteint 400 W.

L'analyse de cette expérience confirme tout d'abord qu'à puissance incidente constante, le déplacement du piston fait directement varier la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité ( $P_C = P_M + P_C''$ ). De plus, les variations de cette puissance dissipée dans la

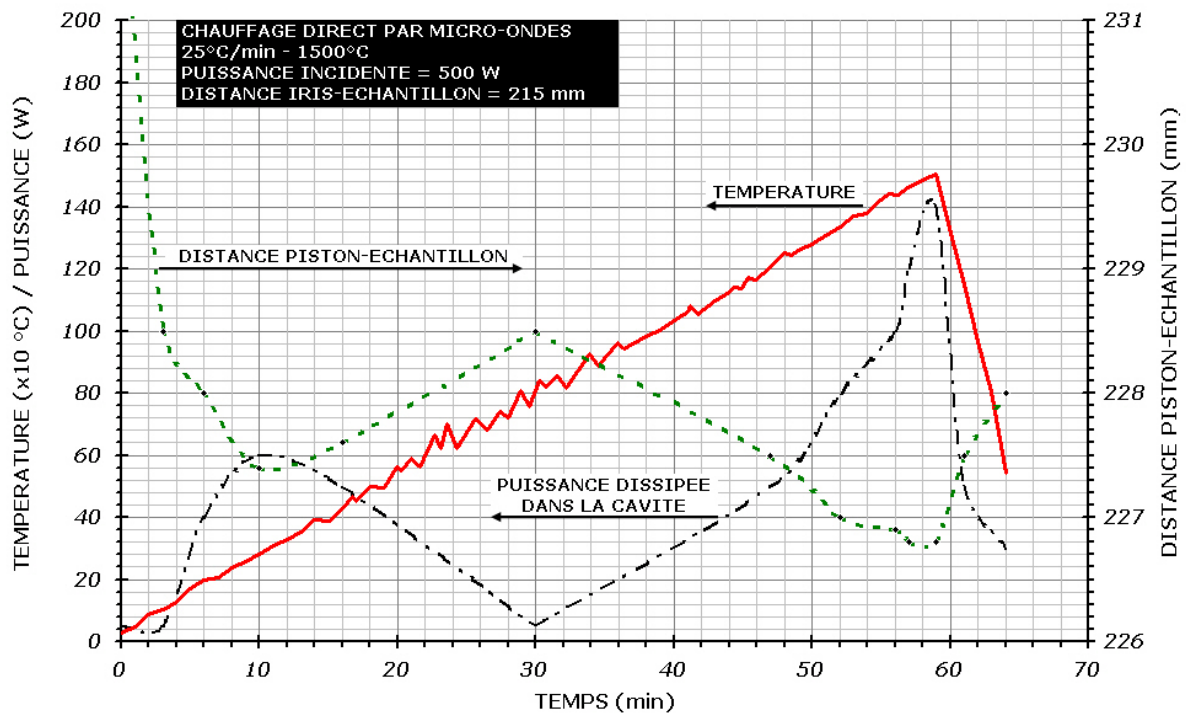
cavité suivent de manière monotone les variations des intensités moyennes des composantes électriques et magnétiques du champ. Ainsi, lorsque le piston est approché de la position optimale conduisant à la résonance, la puissance du champ électromagnétique dans la cavité augmente, indépendamment des propriétés diélectriques de l'échantillon. Au contraire, lorsque le piston est éloigné de cette position, la puissance du champ électromagnétique dans la cavité diminue.

Néanmoins, on constate que les variations de la température de l'échantillon ne suivent pas systématiquement les variations de la puissance électromagnétique dans la cavité. Pour expliquer ce dernier point, il faut revenir encore à la variation des propriétés diélectriques de la zircone avec la température. Si les propriétés diélectriques du matériau restent constantes, la puissance dissipée par le matériau  $P_M$  doit suivre les variations de la puissance électromagnétique dans la cavité (cf. I.D.A.a. - Equation 92). En revanche, lorsque les propriétés diélectriques du matériau changent avec la température, l'analyse devient plus complexe. Pour une distribution du champ électromagnétique identique, si le facteur de pertes diélectriques augmente d'un facteur 10, la puissance dissipée par le matériau  $P_M$  augmente également d'un facteur 10 ce qui entraîne une augmentation très rapide et parfois non maîtrisée de la vitesse de chauffage. Par conséquent, si la puissance électromagnétique dans la cavité  $P_C$  n'est pas réduite suffisamment en déplaçant le piston, alors la vitesse de chauffage peut atteindre et même dépasser plusieurs centaines de degrés par minutes. C'est par exemple le cas dans l'expérience précédente entre 400°C et 1000°C : la puissance électromagnétique dans la cavité est quasi-constante (puissance incidente constante et position du piston fixe) et on observe une augmentation de la température de l'échantillon d'environ 400°C en 2 min. Ceci peut alors entraîner des dommages irréversibles (éclatement, fissures) de l'échantillon comme on peut le voir sur la Figure 51 et la Figure 53.

#### # 2<sup>ème</sup> essai

La connaissance de l'intervalle de température dans lequel les propriétés diélectriques du matériau changent permet d'anticiper cette soudaine accélération de la vitesse de chauffage et donc le moment où il faut diminuer la puissance électromagnétique dans la cavité. La réduction de cette puissance s'effectue simplement, à puissance incidente constante, en déplaçant le piston. Avec un certain entraînement, il devient possible d'imposer à l'échantillon une vitesse de chauffage constante, comme l'illustre la Figure 54. Celle-ci montre l'évolution de la distance entre le piston et l'échantillon, de la puissance électromagnétique dans la cavité et de la température d'un échantillon de zircone TZ-2Y. C'est le résultat d'une expérience de chauffage direct par micro-ondes à la

vitesse de 25°C/min jusqu'à une température de frittage de 1500°C, avec une puissance incidente constante de 500 W.



**Figure 54 : Résultat d'un essai de frittage micro-ondes direct d'un échantillon de zircone (2Y-TZP) à puissance incidente constante de 500 W**

Malgré l'apparente monotonie de ce cycle de chauffage, on peut distinguer trois étapes durant le chauffage que nous allons analyser :

- entre la température ambiante et environ 300°C :

Le piston est avancé rapidement vers l'échantillon (231,0 mm à 227,4 mm) pour augmenter rapidement la puissance électromagnétique dans la cavité ce qui entraîne une augmentation de la puissance dissipée dans la cavité ( $P_C = P_M + P_C''$ ) jusqu'à 60 W. Or, nous avons estimé précédemment (cf. I.E.1.) à moins d' 1 W la puissance nécessaire pour chauffer un tel échantillon de zircone. Le couplage de la zircone étant faible, une infime partie de la puissance  $P_C$  est dissipée par le matériau ( $P_M \approx 0,02.P_C$ ) ; il en résulte que 98% de cette puissance  $P_C$  est dissipée par effet Joule dans les parois de la cavité ( $P_C'' \approx 0,98.P_C$ ).

- entre 300°C et 800°C :

Le piston est éloigné régulièrement de l'échantillon (227,4 mm à 228,5 mm) afin de diminuer progressivement la puissance électromagnétique ; on constate que la puissance dissipée dans la cavité diminue de 60 W à 10 W. Pendant ce temps, l'échantillon continue de chauffer à la même vitesse grâce à un meilleur couplage avec le champ électrique

(augmentation rapide de  $\varepsilon''$ ) : la puissance dissipée par le matériau  $P_M$  continue d'augmenter tandis que  $P_C$  &  $P_C''$  diminuent. Ceci démontre bien que pour maintenir une vitesse de chauffage constante et éviter une augmentation soudaine de la température de l'échantillon, le piston doit être éloigné de l'échantillon pour modifier la distribution du champ électromagnétique et réduire l'intensité de ce champ dans la cavité. Toutefois, comme l'a souligné Goldstein & al. [GOL99], ce changement rapide des propriétés diélectriques du matériau rend très difficile la maîtrise de la vitesse de chauffage dans cette gamme de température. C'est pourquoi on peut remarquer dans la Figure 54 des petites variations de la température de l'échantillon entre 400°C et 1000°C.

- entre 800°C et 1500°C :

Le piston est avancé à nouveau vers l'échantillon (228,5 mm à 226,7 mm) pour augmenter la puissance électromagnétique dans la cavité et maintenir une vitesse de chauffage de 25°C/min. Cette puissance permet de compenser les pertes thermiques, dues principalement au rayonnement, toujours croissantes avec la température de l'échantillon ( $P_{ray} = \alpha.T^4$ ), comme on a pu le voir précédemment (cf. I.E.1.). Par ailleurs, on mesure une augmentation régulière de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité  $P_C$  jusqu'à 60 W puis de plus en plus rapide pour atteindre 140 W lorsque l'échantillon atteint la température maximale de frittage de 1500°C. Le couplage de la zircone étant fort, cette puissance représente quasi intégralement la valeur de la puissance dissipée par le matériau ( $P_M \approx P_{ray} \approx P_C$ ).

En résumé, durant un cycle de frittage, la position du piston est ajustée en continu, à puissance électromagnétique incidente constante, de manière à ce que la température de l'échantillon mesurée par la caméra suive un cycle thermique prédéterminé. Le déplacement du piston par rapport à sa position optimale conduisant à la résonance permet de moduler directement la puissance électromagnétique dans la cavité et indirectement la puissance dissipée par le matériau  $P_M$ , en dépit des changements des propriétés diélectriques du matériau.

Cette procédure de chauffage a été appliquée tout d'abord avec succès à l'élaboration par frittage micro-ondes direct (Figure 52) et avec suscepteur sous champ électrique de zircone yttrée. Avec cette méthode, il est possible de chauffer des poudres céramiques jusqu'à plus de 1500°C avec des vitesses de chauffage plus élevées qu'en chauffage conventionnel ( $> 100^\circ\text{C}/\text{min}$ ) ; généralement, et contrairement au chauffage conventionnel, c'est le matériau qui limite la vitesse et la température de chauffage, s'il ne couple pas ou mal ou s'il se fissure à cause d'un chauffage trop rapide. Ainsi, la



procédure décrite ici peut être étendue au chauffage direct, indirect ou hybride d'autres poudres céramiques et métalliques sous champ électrique ou magnétique et différentes atmosphères de frittage (oxydantes, neutres, réductrices).

CHAPITRE IV

ETUDE COMPARATIVE

FRITTAGE MICRO-ONDES

FRITTAGE CONVENTIONNEL

D'UNE POUDRE CERAMIQUE – zircone yttriée

ET D'UNE POUDRE METALLIQUE – nickel pur

Dans ce chapitre nous présenterons les résultats d'études comparatives entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel d'une poudre céramique (zircone yttrée 2Y-TZP) et d'une poudre métallique (nickel pur). Ces résultats sont analysés et interprétés en termes d'influence du champ électromagnétique sur les mécanismes de densification et de développement microstructural de ces matériaux.

## PREAMBULE : quelques rappels sur le frittage "naturel" en phase solide

Cette étude s'intéresse à la comparaison entre deux modes de chauffage, l'un conventionnel, l'autre par micro-ondes, dit non conventionnel appliqués à l'élaboration de zircone yttrée et de nickel par frittage naturel (sans charge) ; pour ces deux matériaux, le frittage se produit en phase solide.

Cette présentation du frittage se veut synthétique et introduit quelques notions théoriques et principes essentiels concernant le frittage "naturel" en phase solide. Pour une revue plus détaillée sur les différents types de frittage, le lecteur pourra se reporter à quelques ouvrages de référence de R.M. German [GER 85] [GER 96], D. Bernache-Assolant [BER 93], M.N. Rahaman [RAH 95].

Le frittage "naturel", c'est-à-dire sans charge appliquée, et en phase solide permet de passer d'une poudre mise en forme à froid à un matériau consolidé de densité plus ou moins élevée. Il est le résultat d'un traitement thermique à une température inférieure à la température de fusion des constituants afin de conserver une cohérence à l'ensemble de la pièce. La consolidation du matériau découle de la formation de joints de grains, de l'élimination de la porosité et des éventuelles phases volatiles introduites lors de la mise en forme. Généralement, le frittage s'accompagne d'un retrait (réduction des dimensions de la pièce) et donc d'une densification. Ce retrait est d'autant plus important que la porosité et/ou la quantité de phases volatiles dans la pièce à cru est importante.

### A. LES FORCES MOTRICES DU FRITTAGE

L'évolution macroscopique et microstructurale de la pièce en cru au cours du frittage est guidé par des forces motrices, l'une globale et d'autres locales. Ces forces tendent à faire évoluer le système vers un équilibre thermodynamique correspondant à une diminution de l'énergie interfaciale du système dispersé.

### A.1. LA FORCE MOTRICE GLOBALE

La force motrice globale du frittage est la réduction de l'énergie interfaciale. Dans un matériau monophasé, l'énergie interfaciale  $E$  fait intervenir une contribution des interfaces solide-gaz, d'aire  $S_{SG}$  et d'énergie libre interfaciale  $\gamma_{SG}$  ainsi qu'une contribution des interfaces solide-solide (joints de grains), d'aire  $S_{SS}$  et d'énergie libre interfaciale  $\gamma_{SS}$  :

$$E = \gamma_{SG} \cdot S_{SG} + \gamma_{SS} \cdot S_{SS} \quad \text{Équation 135}$$

Généralement, le système réduit son énergie interfaciale en début de frittage par la diminution de l'aire des interfaces solide-gaz (fortement énergétiques) au profit des interfaces solide-solide (moins énergétiques) par la soudure des grains et la formation de joints de grains qui conduisent à une augmentation de la cohésion du matériau : c'est le frittage. La croissance des joints de grains s'accompagne le plus souvent d'une réduction de la porosité, donc d'un retrait (densification) à l'échelle macroscopique. Parallèlement, la croissance des grains tend également à réduire l'énergie interfaciale en diminuant l'aire globale des interfaces solide-gaz.

Finalement, lors de l'élaboration d'un matériau fritté, densification et grossissement de grains apparaissent comme deux processus en compétition bien que tous deux soient motivés par le même résultat : la diminution de l'énergie interfaciale du système.

### A.2. LES FORCES MOTRICES LOCALES

La réduction de l'énergie interfaciale du matériau (ou force motrice globale) nécessite une évolution de la microstructure, qui est encouragée par l'existence de gradients de contraintes à l'échelle locale : ce sont les forces motrices locales. Parmi celles-ci, nous allons présenter les contraintes exercées aux interfaces et sur les lignes triples lors du frittage en phase solide.

#### A.2.a. Contraintes exercées aux interfaces

Au voisinage d'une interface courbe entre deux milieux 1 et 2, la contrainte interfaciale impose un gradient de pression de part et d'autre de l'interface. La condition d'équilibre

mécanique s'exprime pour un élément de surface de courbure moyenne  $1/r$  et d'énergie interfaciale  $\gamma$  selon l'équation de Laplace :

$$P_1 - P_2 = \frac{2\gamma}{r} \quad \text{Équation 136}$$

La courbure moyenne locale est positive pour une surface convexe (centre de courbure dans 1 et  $P_1 > P_2$ ) et négative pour une surface concave (centre de courbure dans 2 et  $P_1 < P_2$ ). Dans le cas où les milieux 1 et 2 sont différents, ce gradient de pression va modifier l'équilibre chimique entre les deux phases. Par exemple, pour un solide (milieu 1) en équilibre avec un gaz (milieu 2), au voisinage d'une surface convexe, l'excès de pression entraîne un excès de potentiel chimique dans le solide, ce qui augmente la pression d'équilibre dans le gaz. Généralement la pression dans le gaz reste inférieure à la pression d'équilibre et les atomes sous contraintes dans le solide tendent à passer dans le gaz.

D'une manière générale, pour une surface de courbure moyenne  $1/r$ , les écarts de pression  $\Delta P_s$  et dans les deux phases par rapport à une surface plane :

$$\Delta P_s = \frac{2\gamma_{SG}}{r} \quad \text{Équation 137}$$

$$\Delta P_G = \frac{2\gamma_{SG} \cdot \Omega_s}{r \cdot k \cdot T} \cdot P_G^\infty \quad \text{Équation 138}$$

$\Omega_s$  : volume atomique du solide.

$P_G^\infty$  : pression de vapeur saturante.

Les effets de la courbure des surfaces sont illustrés sur la Figure 55 pour différentes conditions d'équilibre local.



**Figure 55 : Equilibre à l'interface solide-gaz et courbure**  
**Le signe (+) ou (-) indique respectivement un excès ou un défaut de pression par rapport à une interface plane [BOU 02]**

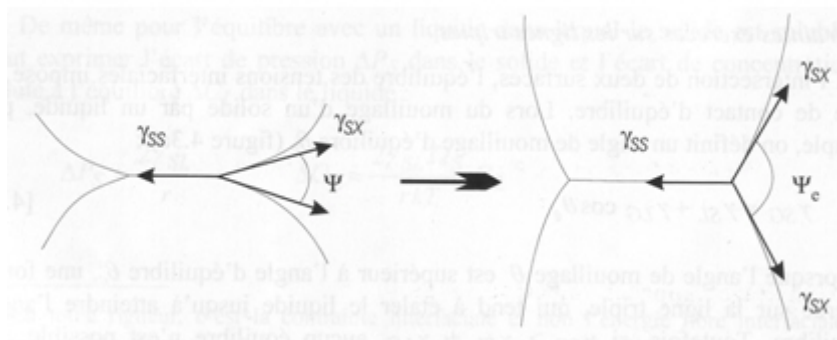
Cette figure montre l'existence de gradients de pression à travers les interfaces courbes .

A.2.b. Contraintes exercées sur les lignes triples

A l'intersection de trois surfaces, l'équilibre des tensions interfaciales impose un angle dièdre d'équilibre  $\psi_e$ . Ainsi, l'équilibre d'un joint de grains avec une seconde phase gazeuse s'écrit :

$$\gamma_{ss} = 2\gamma_{sg} \cos \frac{\psi_e}{2} \quad \text{Équation 139}$$

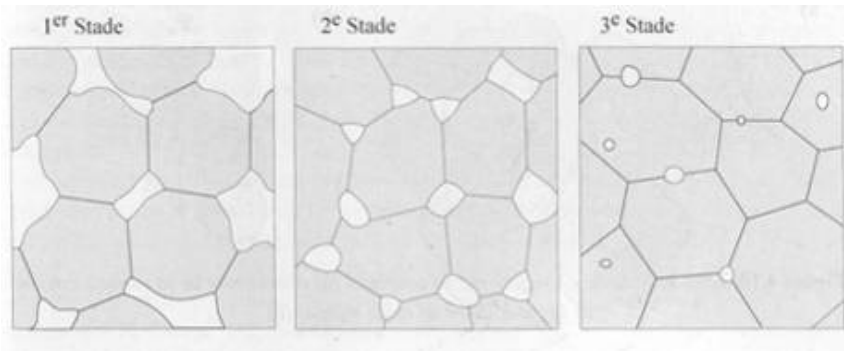
Lorsque l'angle dièdre  $\psi$  est inférieur à l'angle d'équilibre  $\psi_e$ , une force s'exerce sur la ligne triple, qui tend à faire croître le joint de grains jusqu'à atteindre l'angle d'équilibre, comme le montre la Figure 56.



**Figure 56 : Mise à l'équilibre d'un joint de grains avec une seconde phase gazeuse (ligne triple) [BOU 02]**

## B. APPROCHE MICROSCOPIQUE DU FRITTAGE

L'évolution microstructurale du matériau au cours du frittage peut être divisée en trois stades représentés dans la Figure 57.

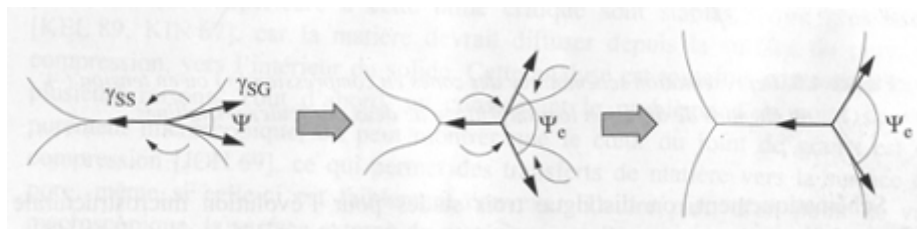


**Figure 57 : Représentation schématique des trois stades de frittage [BOU 02]**

### B.1. STADE INITIAL :

#### FORMATION ET CROISSANCE DES PONTS ENTRE PARTICULES

Au début du frittage, lorsque la température est suffisamment élevée, un pont solide se forme au contact entre deux particules. Une redistribution rapide de matière par diffusion superficielle permet d'assurer localement l'équilibre des tensions interfaciales (Figure 58).

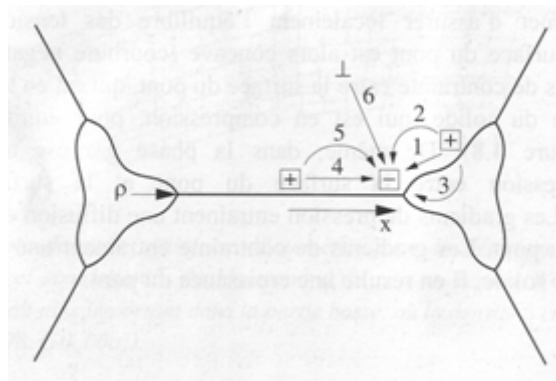


**Figure 58 : Formation du joint de grains et redistribution de matière pour atteindre la configuration d'équilibre local, puis l'équilibre global de la ligne triple [BOU 02]**

Pour équilibrer la tension superficielle, il apparaît dans la phase condensée des gradients de contrainte entre la surface du pont, qui est alors concave donc en tension, et le reste du solide, dont la surface est convexe donc en compression. De même, dans la phase gazeuse apparaissent des gradients de pression entre la surface du pont et la surface des grains. Les gradients de pression entraînent une diffusion en phase gazeuse vers la surface du pont. Les gradients de contraintes entraînent une déformation par fluage de la phase solide : ce fluage procède par diffusion atomique dans le cas de solide cristallin. De ces gradients, il en résulte une croissance du pont.

N.B. : La déformation plastique des ponts peut intervenir lors du frittage de particules nanométriques ou au tout début du frittage de particules micrométriques, lorsque la courbure des ponts est telle que la contrainte de Laplace peut atteindre quelques centaines de MPa.

La diffusion atomique évoquée lors du fluage de la phase solide est alors associée à une diffusion de défauts, comme les lacunes. Dans le cas d'une diffusion par lacunes, atomes et lacunes diffusent en sens inverse donc la source de matière pour la diffusion doit aussi être un puits de lacunes. Plusieurs chemins de diffusion représentés dans la Figure 59 sont alors possibles.



**Figure 59 : Représentation schématique des zones en compression (+) ou en tension (-) et chemins de diffusion lors du frittage de deux particules [BOU 02]**

La source de matière est soit la surface des grains, soit le joint de grains, soit les dislocations à l'intérieur des grains. Le chemin de diffusion peut être le volume, la surface, le joint de grains ou la phase gazeuse. Les mécanismes qui ont pour source de matière la surface des grains (mécanismes 1, 2 et 3) conduisent seulement à une croissance du pont donc à la consolidation. Seuls les mécanismes qui ont pour source de matière le joint de grains ou le cœur des grains (mécanismes 4, 5 et 6) entraînent un rapprochement des particules, donc éventuellement un retrait à l'échelle macroscopique (densification).

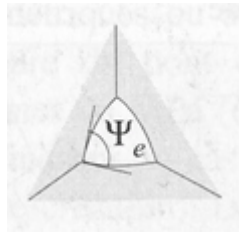
Au fur et à mesure que les ponts croissent, les gradients de courbure à la surface diminuent jusqu'à ce que la courbure entre deux joints de grains voisins soit uniforme : c'est la fin du premier stade du frittage.

### B.2. STADE INTERMEDIAIRE : ELIMINATION DE LA POROSITE OUVERTE

A ce stade, la porosité est organisée sous forme d'un réseau de canaux cylindriques et interconnectés le long des arêtes des grains. La courbure des surfaces est déterminée



par l'équilibre des lignes triples (angle dièdre d'équilibre) et par la configuration au voisinage du pore (Fig. 4.10).



**Figure 60 : Equilibre des lignes triples et courbure des interfaces solide-gaz pour un pore entouré de trois grains de même taille [BOU 02]**

Pour un pore entouré de grains de même taille (a), la courbure autour du pore est uniforme et les transferts de matière se poursuivent par diffusion depuis les joints de grains ou depuis le cœur des grains vers le pore. Notons que lorsque la taille du pore est grande, la courbure à la surface du solide est plus grande et la cinétique des transferts de matière vers le pore est alors plus lente. Finalement, au-delà d'un certain rapport longueur/rayon, les canaux poreux deviennent instables et la porosité se ferme.

### B.3. STADE FINALE : ELIMINATION DE LA POROSITE OUVERTE

La population de pores fermés continuent de rétrécir par transfert de matière depuis les joints de grains et depuis le cœur des grains. Cependant, la densification est beaucoup plus lente car les forces motrices du frittage diminuent. Par ailleurs, la migration des joints de grains peut alors entraîner une croissance de grains et éventuellement une séparation des pores et des joints de grains.

Ce bref rappel des aspects microscopiques du frittage en phase solide permettra d'analyser et de discuter le comportement de la zircone yttrée et du nickel lors de leur élaboration par frittage conventionnel ou frittage micro-ondes.

# PARTIE I

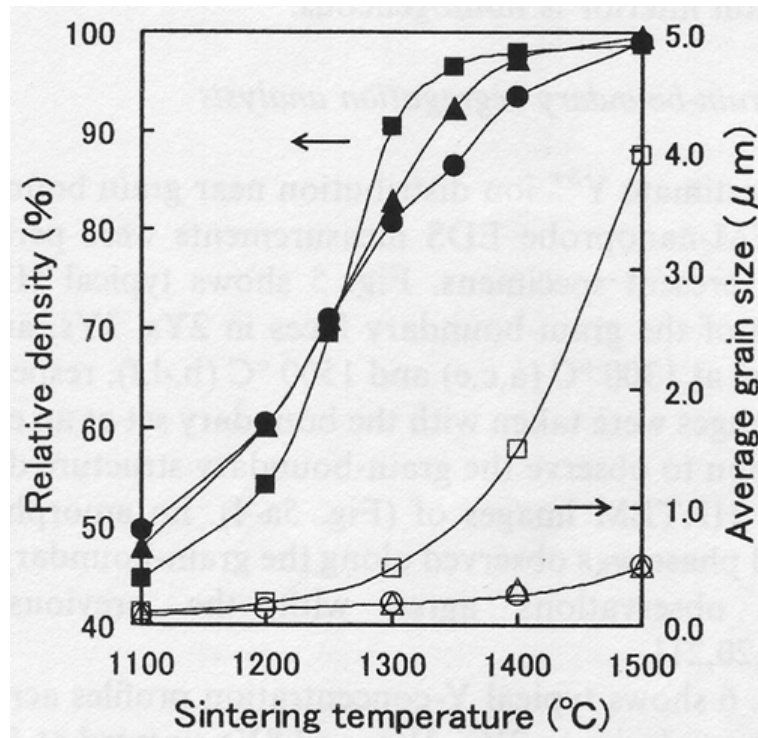
## FRITTAGE D'UNE POUDRE CERAMIQUE : LA ZIRCONO YTTRIEE 2Y-TZP

### IV-I.A. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

#### IV-I.A.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL

Le développement microstructural en fin de frittage des poudres commerciales Tosoh Y-TZP et Y-FSZ a fait l'objet de nombreuses recherches, notamment en raison de leur croissance de grains limitée, "sluggish grain growth" dans la littérature [STO91]. Toutefois, les mécanismes gouvernant le frittage conventionnel de ce matériau n'ont été clairement mis à jour que très récemment par les travaux de Matsui & al. [MAT 08] [MAT 09]. En particulier, les relations de causalité entre la séparation de phase T → C (Tetragonal → Cubic) et la croissance de grains sont restées largement controversées jusqu'à ces récentes publications. Grâce à leurs expériences, ces auteurs ont apporté plus de certitudes sur la description de la formation de la phase cubique à l'intérieur des grains et les mécanismes de développement microstructural (croissance de grains) dans des poudres de zircono Y-TZP et Y-CSZ durant le dernier stade du frittage.

Trois poudres commerciales Tosoh 2Y-TZP, 3Y-TZP et 8Y-CSZ, appelées aussi par la suite 2Y, 3Y et 8Y, ont été étudiées par Matsui et al. sous différents aspects : densification, croissance de grains, microstructure et répartition des phases cristallographiques à l'intérieur des grains, ségrégation aux joints de grains et transformation de phase T → C. Ces poudres ont été compactées en matrice (70 MPa) sous forme de disques et chauffées sous air à la vitesse de 100°C/h jusqu'à des températures de frittage comprises entre 1100°C et 1500°C pendant 2 heures. La Figure 61 montre l'évolution de la densité relative et de la taille de grains avec la température de frittage pour ces trois poudres de zircono.



**Figure 61 : Variations de la densité relative et de la taille moyenne des grains avec la température de frittage pour les poudres 2Y, 3Y et 8Y (100°C/h) : densité relative : 2Y (●), 3Y (▲) et 8Y (■) taille moyenne des grains : 2Y (○), 3Y (□) et 8Y (□) [MAT 08]**

Les densités relatives des poudres 2Y et 3Y sont quasiment identiques jusqu'à 1300°C ; cependant, la densité de la 3Y devient supérieure au-delà. La densité relative de la 8Y est inférieure à celles des 2Y et 3Y en-dessous de 1250°C mais supérieure au-dessus de cette température. Quant à l'évolution de la taille des grains avec la température de frittage, la Figure 61 est similaire pour les poudres 2Y et 3Y avec une croissance des grains plutôt lente (400-500 μm à 1500°C). En revanche, la taille des grains de la poudre 8Y croît beaucoup plus vite à partir de 1200°C pour atteindre 4 μm à 1500°C. Les images MEB de la microstructure à 1500°C (Figure 62) viennent illustrer ces observations.



**Figure 62 : Microstructure des zircons (a) 2Y, (b) 3Y et (c) 8Y après frittage à 1500°C/2h [MAT 08]**

Ces résultats sur l'évolution de la microstructure ont été complétés par des analyses de la microstructure (phases) à l'intérieur des grains et des analyses de la ségrégation d'ions  $Y^{3+}$  aux joints de grains afin de clarifier les relations entre la transformation de phase  $T \rightarrow C$  et la croissance des grains. Les conclusions suivantes ont été obtenues :

- la microstructure :

Les zircons Y-TZP ne présentent pas de structure biphasée T-C mais sont constituées de grains quadratiques à l'intérieur desquels certaines régions sont transformées en phase cubique. Dans la zircone 2Y, une fraction de la phase quadratique se transforme en phase monoclinique au refroidissement. La structure des grains de 8Y-CSZ est monophasée et cubique.

- la distribution d'ions  $Y^{3+}$  à l'intérieur des grains :

La distribution d'ions  $Y^{3+}$  à l'intérieur des grains des zircons 2Y et 3Y est assez homogène à 1300°C. A 1500°C, la distribution d'ions  $Y^{3+}$  à l'intérieur des grains majoritairement quadratiques de la 2Y est encore assez homogène, exceptée aux joints de grains et aux jonctions triples dans lesquels on observe de fortes concentrations d'ions  $Y^{3+}$ . En revanche, pour la 3Y frittée à 1500°C, des régions avec une plus forte concentration en ions  $Y^{3+}$  apparaissent à l'intérieur des grains. Dans la 8Y frittée à 1300°C et à 1500°C, on observe une distribution d'ions  $Y^{3+}$  homogène, à l'intérieur de grains cubiques.

- la ségrégation d'ions  $Y^{3+}$  aux joints de grains :

Les ions  $Y^{3+}$  ségrégent aux joints de grains sur une épaisseur de l'ordre de 10 nm. La ségrégation des ions  $Y^{3+}$  augmente avec la température de frittage dans les zircons 2Y et 3Y. Au contraire, la ségrégation est beaucoup moins importante dans la zircone 8Y et cette ségrégation est moins dépendante de la température de frittage.

- la séparation de phase T-C :

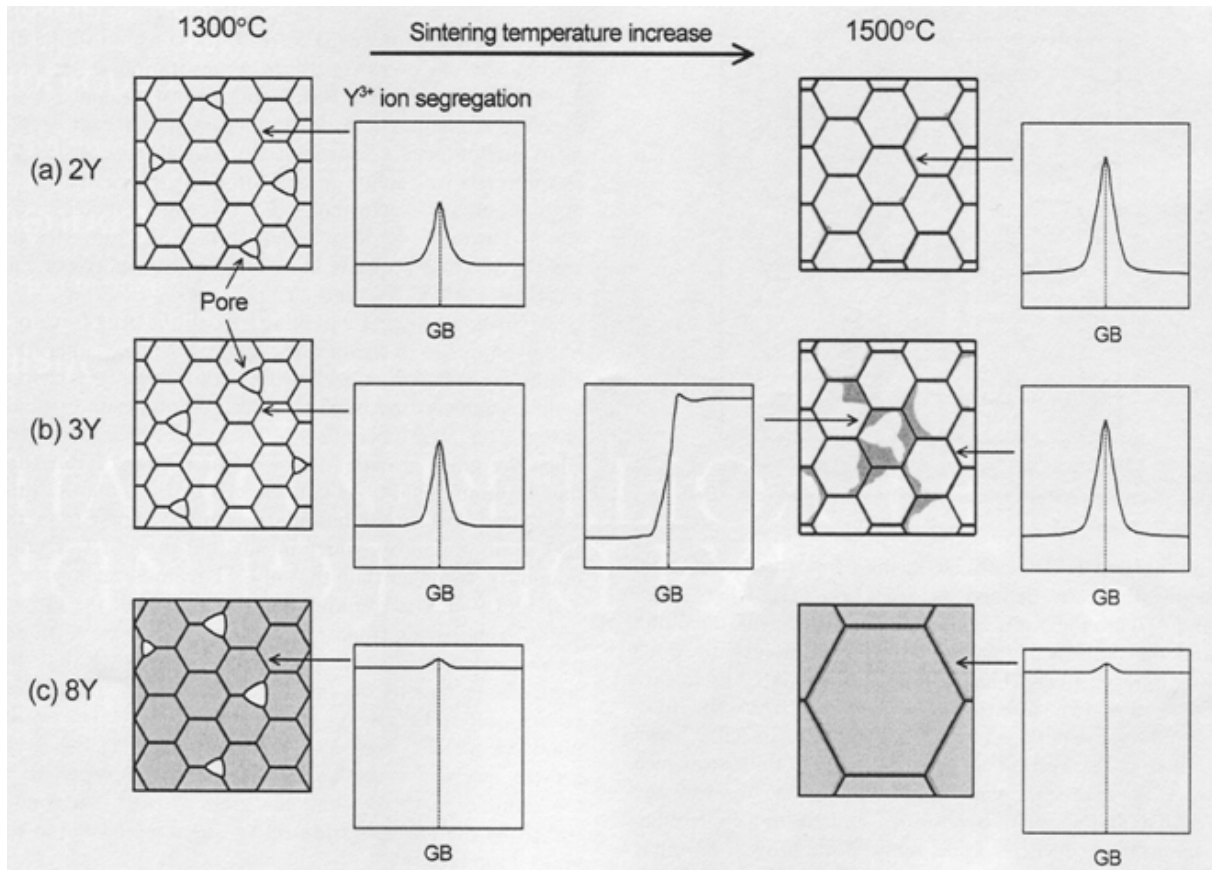
Les joints de grains et/ou les jonctions triples, dans lesquels les ions  $Y^{3+}$  ségrégent, sont le point de départ de la transformation  $T \rightarrow C$  à l'origine des régions de structure cubique formées à l'intérieur des grains quadratiques et évoquées dans le premier point ; ainsi, ces régions cubiques sont adjacentes aux joints de grains. Le mécanisme de formation de la phase cubique s'explique par un mécanisme de transformation de phase induite par la ségrégation aux joints de grains (GBSIPT model). Par ailleurs, la formation de ces régions de structure cubique ne s'accompagne pas de croissance des grains.

- la croissance de grains :

La croissance des grains est similaire pour les poudres 2Y, 3Y et 8Y jusqu'à 1200°C, mais au-delà elle est beaucoup plus rapide dans la 8Y. On en déduit qu'une diminution de la ségrégation des ions  $Y^{3+}$  aux joints de grains entraîne une augmentation de la croissance des grains. Ainsi, la vitesse de croissance des grains durant l'étape finale du frittage est gouvernée par la concentration d'ions  $Y^{3+}$  ségrévés dans les joints de grains (solute drag

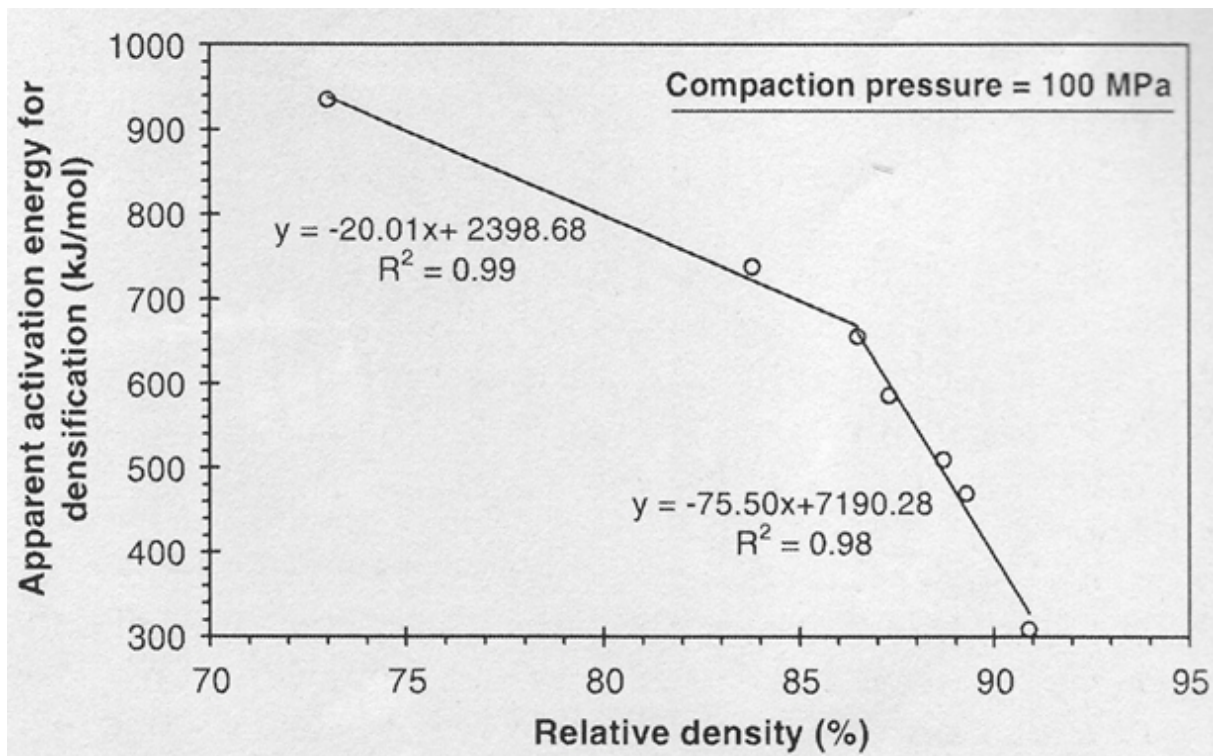
effect of  $Y^{3+}$  ions), ce qui laisse supposer que la formation des régions cubiques ne permet pas de retarder la croissance des grains.

L'ensemble de ces conclusions est résumé schématiquement sur la Figure 63.



**Figure 63 : Schéma des mécanismes de transformation de phase T → C et de croissance des grains dans les zircons YSZ [MAT 08]. (a) 2Y, (b) 3Y et (c) 8Y. Les zones grises aux joints de grains représentent la ségrégation des ions  $Y^{3+}$ . Les zones blanches et grises à l'intérieur des grains représentent les phases quadratique et cubique respectivement. GB = joints de grains.**

Par ailleurs, des études ont tenté de corréler les énergies apparentes d'activation à l'énergie d'activation de diffusion aux joints de grains des ions  $Zr^{4+}$ , afin de déterminer les mécanismes contrôlant le frittage en fonction de la densité relative. Cette énergie apparente d'activation a été estimée à 310 kJ/mol pour la zircone cubique partiellement stabilisée à l'oxyde d'yttrium [OIS 83]. Plus tard, Bernard-Granger & al. [BER07] ont trouvé que l'énergie d'activation apparente de la densification, calculée par la méthode CRH (Constant Rate Heating), d'une poudre de 3Y-TZP dépend fortement de la densité relative : cette énergie diminue de 935 kJ/mol à 310 kJ/mol lorsque la densité relative augmente de 73 % à 91 % (Figure 64) avec dans le même temps une variation de la taille des grains de 120 nm à 170 nm.



**Figure 64 : Variations de l'énergie d'activation apparente de densification en fonction de la densité relative calculée par la méthode CRH [BER 07]**

Selon eux, ceci prouve qu'à faible densité relative et pour des grains petits, le mécanisme limitant serait la formation de défauts à l'interface et non l'étape de diffusion des cations  $Zr^{4+}$  dans les joints de grains. Ce qui signifie qu'il est plus difficile de créer des défauts à la surface des grains qu'aux joints de grains et que les distances de diffusion sont trop courtes dans les matériaux nanométriques pour que l'étape de diffusion soit le phénomène limitant la cinétique. Ce mécanisme limitant les cinétiques de densification est du même type que celui limitant la vitesse de fluage de ce type de matériau à nanograins et qui est présenté sous le terme de "réaction d'interface" dans la littérature du fluage.

Cette description du comportement de différentes poudres de zircone yttrée durant le frittage conventionnel, de ses mécanismes de densification et de croissance des grains permet de dégager quelques tendances et d'avoir un point de comparaison pour discuter des éventuels effets spécifiques du champ électrique sur la densification et le développement microstructural de notre poudre de zircone yttrée 2Y-TZP lors du frittage par micro-ondes.

#### IV-I.A.2. LE FRITTAGE MICRO-ONDES

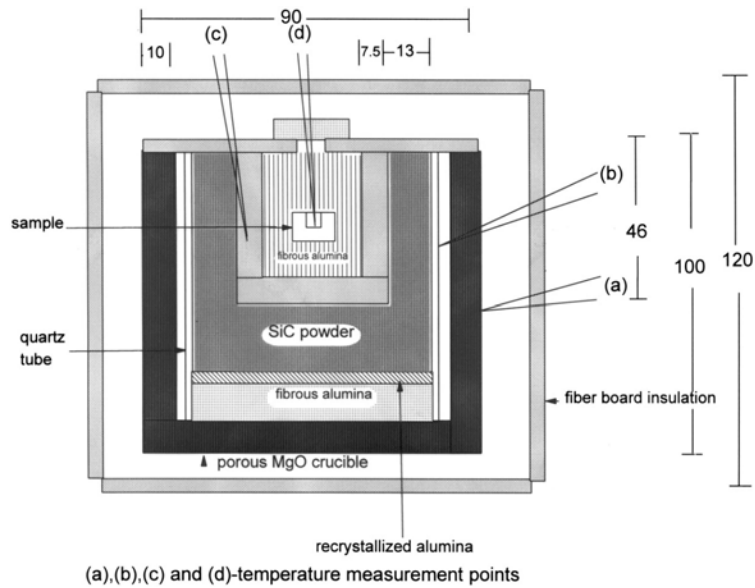
L'élaboration de zircone yttrée par frittage micro-ondes a été largement étudiée en raison de ses nombreuses applications. Cependant, ses propriétés diélectriques peu favorables au couplage avec les micro-ondes en-dessous de 400°C (cf. III.A.1.) rendent son chauffage direct par micro-ondes (sans suscepteur) très difficile à réaliser, à moins d'appliquer un champ électromagnétique uniforme (à l'échelle de l'échantillon) et intense. Or, tous les applicateurs ne permettent pas de disposer de telles caractéristiques. C'est pourquoi différents systèmes d'isolation et d'aide au chauffage ont été imaginés et mis en œuvre au sein d'applicateurs multimodes et monomodes. Ces dispositifs permettent un chauffage indirect à basse température puis hybride lorsque la zircone passe sa température critique et couple avec les micro-ondes. L'autre particularité de la zircone, résultant encore une fois de ses propriétés diélectriques, est l'augmentation significative du couplage avec le champ électrique à partir de 400°C, ce qui rend le contrôle de la vitesse de chauffage très délicat à réaliser. Or, la maîtrise d'un cycle thermique est capitale lors de la réalisation d'études comparatives rigoureuses avec le frittage conventionnel.

Compte tenu de ces caractéristiques, nous allons tout d'abord passer en revue, sous des aspects plus technologiques, les différents dispositifs conçus pour réaliser le frittage d'échantillons de zircone yttrée, dans des cavités multimodes, puis dans des cavités monomodes. Enfin, nous ferons une synthèse des principaux résultats obtenus en insistant sur les différences entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel en termes de densification, de développement microstructural et de propriétés mécaniques.

##### IV-I.A.2.a. Dispositifs de chauffage dans des cavités multimodes

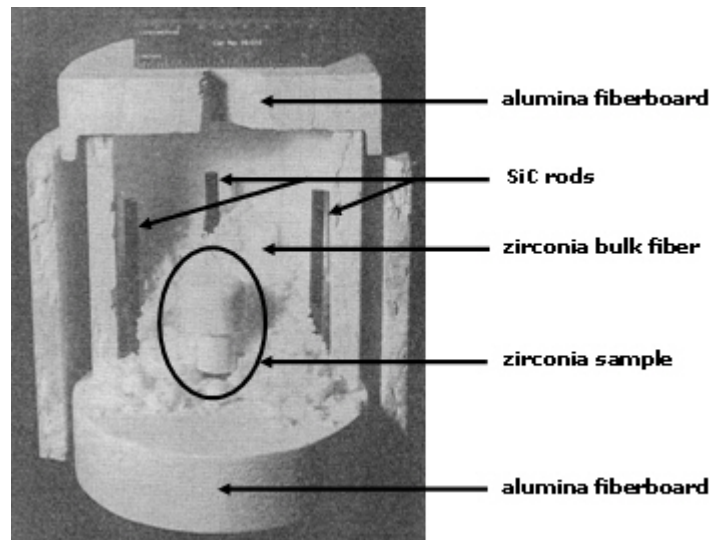
L'élaboration d'échantillons de zircone par chauffage micro-ondes dans des cavités multimodes a été réalisée presque exclusivement avec l'aide de dispositifs intégrant un suscepteur. Une des solutions consiste à placer l'échantillon dans différents "boîtes" constituées de matériaux isolants dont l'une contient de la poudre de carbure de silicium (SiC), jouant le rôle de suscepteur pour l'échantillon [PEE99] [UPA01] (Figure 65).





**Figure 65 : Schéma du système d'isolation et de chauffage hybride avec un suscepteur sous forme d'un lit de poudre de SiC [PEE 99]**

Cependant, le dispositif le plus courant est un arrangement de 5 à 8 barreaux environ, en carbure de silicium, disposés verticalement dans la cavité et autour de l'échantillon [JAN92] [NIG96] [XIE96] [NIG97] [MAZ08]. Ces systèmes (Figure 66) s'adaptent particulièrement bien aux cavités multimodes, plus volumineuses que les cavités monomodes et permettent de chauffer la zirconie dès la température ambiante alors que son couplage avec les micro-ondes est faible.



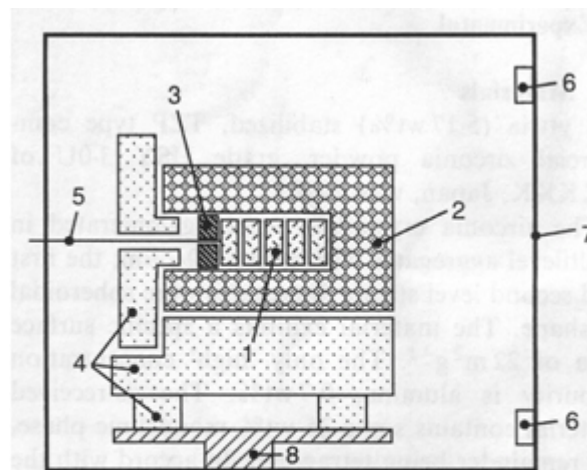
**Figure 66 : Photographie du dispositif d'isolation avec des suscepteurs en SiC, nommé "picket fence" arrangement, conçu par Janney & al. [JAN 92], permettant le chauffage indirect et direct d'échantillons de zirconie**

Cependant, Goldstein & al. [GOL99] ont démontré qu'il était possible de se passer de suscepteur à certaines conditions. En effet, ces auteurs ont été les premiers et les seuls à



réussir le frittage de plusieurs pièces de zircone yttrée simultanément dans des cavités multimodes et sans l'aide de suscepteur. Ce succès tient principalement à l'utilisation de deux types de cavités multimodes spécialement développées pour cette application : l'une dispose d'un brasseur électromagnétique permettant d'homogénéiser le champ électromagnétique et la seconde est conçue avec un assemblage de quatre magnétrons dont l'orientation des antennes permet une concentration maximale du champ au centre de la cavité. Ces dispositifs conduisent à une distribution du champ électromagnétique plus uniforme et intense que dans des cavités multimodes plus basiques et c'est une des raisons de leur réussite. De plus, ces auteurs montrent aussi que pour les caractéristiques de leur poudre de zircone et la géométrie de leur système d'isolation, le chauffage direct n'est possible que pour une masse minimale de zircone. Dans leur étude, cette masse est de l'ordre de 10 à 12 g pour une puissance micro-ondes de 1,5 à 2 kW. Au final, Goldstein & al. ont montré que plusieurs paramètres devaient être maîtrisés afin de pouvoir chauffer des pièces de zircone directement par micro-ondes et aboutir à des matériaux complètement denses et sans fissure :

- la conception d'une cavité avec un champ uniforme et intense au niveau de l'échantillon
- l'assemblage d'une cavité isolante performante
- la masse minimale de matériau permettant le couplage direct avec les micro-ondes
- le contrôle du cycle puissance-temps
- la géométrie des pièces
- l'homogénéité de densité des pièces à vert.



1. Specimens; 2. Bubble alumina thermal insulation in sintered alumina container; 3. Sintered alumina disc; 4. Porous alumina parts providing thermal insulation; 5. Pt Sheathed S-type thermocouple; 6. MW insertion points; 7. Applicator wall; 8. Metal stand

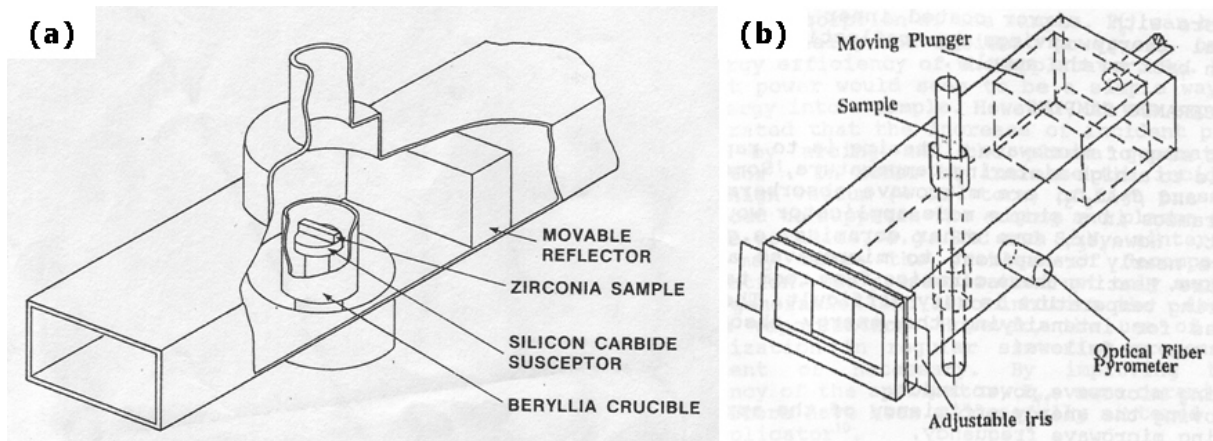
**Figure 67 : Schéma de l'intérieur de la cavité multimode, de la disposition des échantillons, du système d'isolation et du dispositif de mesure de la température utilisé par Goldstein & al. [GOL 99] pour réaliser le chauffage par micro-ondes simultané et sans suscepteur de 5 pièces de zircone**

Enfin, on peut mentionner un dernier dispositif original et intéressant : il s'agit du four hybride conventionnel/micro-ondes multimode développé à Loughborough (R-U) par l'équipe de Binner [WAN06] [BIN08]. Dans ce four, les échantillons peuvent être exposés à des puissances micro-ondes variables (de 0 W à 2 kW) tandis que la puissance électrique apportée aux éléments chauffants est adaptée pour que les échantillons suivent des cycles de chauffage programmés. Ainsi, que ce soit en frittage conventionnel ou en frittage hybride, le four et les techniques de mesure de la température sont identiques, de même que le cycle thermique, ce qui permet d'effectuer des études comparatives entre les deux modes de chauffage. Grâce à leur installation, ces auteurs ont pu mettre en évidence un effet micro-ondes en montrant que pour une même température de frittage, l'augmentation de la puissance électromagnétique contribuant au chauffage favorise l'accélération de la densification des échantillons. De plus, cet effet est d'autant plus important que les matériaux couplent fortement avec les micro-ondes ( $\text{ZnO} > \text{ZrO}_2 > \text{Al}_2\text{O}_3$ ).

#### IV-1.A.2.b. Dispositifs de chauffage dans des cavités monomodes

Les études qui incluent des fours micro-ondes avec une cavité monomode sont plus restreintes. Une fois de plus, des systèmes de chauffage hybride, constitués de disques en SiC [WIL88] disposés en-dessous et au-dessus de l'échantillon (Figure 68(a)) ou d'un suscepteur cylindrique [ZHA00], ont été utilisés pour réduire le temps de (pré)chauffage et atteindre une température critique à partir de laquelle le matériau couple avec le champ électrique. Dans l'étude de Wilson & al., l'utilisation d'un suscepteur se justifie par l'absence d'élément de couplage : leur cavité est donc monomode mais non résonante. L'intensité du champ électromagnétique n'est donc pas suffisante pour permettre le chauffage direct.

Là encore, une seule exception, Tian & al. [TIA91], qui ont réussi à fritter sans suscepteur de la zircone yttrée dans une cavité monomode grâce à l'utilisation judicieuse d'iris circulaires (de différents diamètres ou à diamètre variable) permettant la résonance du champ électromagnétique dans la cavité (Figure 68(b) – N.B. : l'iris représenté sur leur dessin n'est pas circulaire). Dans la conception de leur cavité résonante, l'utilisation de l'iris à ouverture ajustable est particulièrement intéressante car elle permet d'adapter l'ouverture (le diamètre) à la charge dans la cavité (dépendant du volume de la pièce et des propriétés diélectriques), qui est liée à la température de l'échantillon.



**Figure 68 : Schéma des cavités monomodes**  
**(a) non résonante avec suscepteur en SiC [WIL 88]**  
**(b) résonante avec iris (non circulaire ici) ajustable et sans suscepteur [TIA 91]**

Dans tous les cas, l'emploi d'éléments de couplage (iris, vis de plongée) dans une cavité monomode est indispensable à la réalisation du chauffage direct par micro-ondes d'un matériau, comme la zircone, ayant de faibles pertes diélectriques à basse température.

#### IV-1.A.2.c. Les principaux résultats ...

Le développement des dispositifs décrits précédemment a permis d'apporter d'intéressants résultats sur le frittage micro-ondes de poudres de zircone, particulièrement sur des poudres de zircone à faible teneur en yttrium (2 ou 3 %mol), aussi bien dans des cavités monomodes que multimodes. Néanmoins, la grande variété de cavités (monomode, multimode, four hybride), de conditions de chauffage (indirect, direct, hybride, systèmes d'isolation), de procédures expérimentales (rampe de puissance, rampe de température) et la difficulté à maîtriser un cycle thermique rendent parfois difficiles la comparaison des divers résultats obtenus.

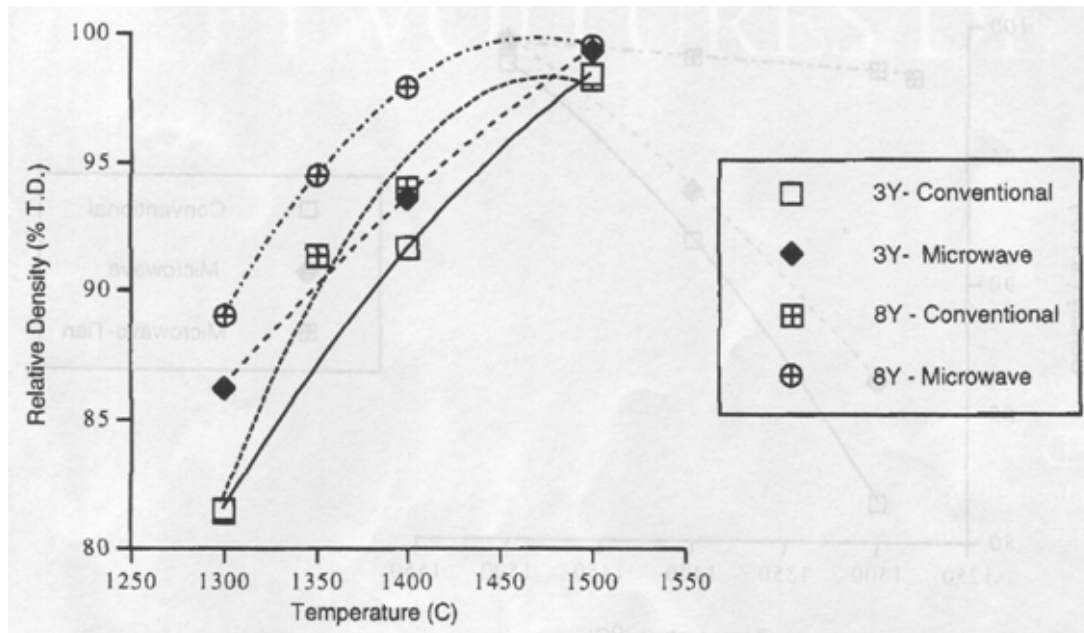
Plusieurs auteurs [WIL88] [TIA91] ont souligné que l'avantage du chauffage micro-ondes, qu'il soit hybride ou direct, résidait dans la possibilité de conserver la dimension nanométrique des grains de poudre dans la microstructure finale grâce à la réduction significative du temps de frittage par rapport à un cycle de frittage conventionnel. Leurs résultats montrent qu'ils ont réussi à réduire la durée des cycles de frittage tout en augmentant de manière significative la densité de leurs échantillons à des températures comparables. Cependant, ni Wilson & al., ni Tian & al. ne sont parvenus pour autant à élaborer des matériaux frittés avec une taille de grains significativement plus petite qu'en frittage classique. Il faut noter que Tian & al. ont eu recours à un prétraitement thermique à 1150°C durant 1 heure afin de transformer la phase monoclinique résiduelle

en phase tétragonale et d'éviter la fissuration de leurs pièces. Les conséquences de ce traitement avant le frittage micro-ondes ne sont détaillées ni en terme de densité, ni en terme de microstructure (coalescence) générée avant frittage micro-ondes. Les résultats qu'ils trouvent (densités finales et tailles de grains) peuvent être attribués en partie à leur prétraitement thermique à 1150°C. D'ailleurs, les densités très élevées (> 98 %) obtenues dès 1250°C ne sont pas classiques et n'ont été confirmées par aucune autre expérience.

Les résultats de Goldstein & al. [GOL99] vont dans le même sens. Si le chauffage par micro-ondes entraîne bien un gain de temps (réduction du temps de cycle de frittage d'une trentaine d'heures à seulement deux heures) et d'énergie (diminution de la température maximale de frittage d'une centaine de degrés) non négligeables, ces auteurs ne dénotent pas de différence significative concernant les propriétés mécaniques de ses pièces par rapport à celles élaborées par frittage conventionnel.

Cependant, d'autres auteurs ont démontré par des études comparatives plus systématiques que les matériaux frittés par micro-ondes présentaient des différences notables par rapport aux échantillons frittés conventionnellement dans des conditions similaires. Parmi ces études, on peut citer les travaux de Nightingale & al. [NIG96] [NIG97] sur des poudres commerciales Tosoh TZ-3YB et TZ-8YB. Ces auteurs ont réalisé des expériences de frittage interrompues dans une cavité multimode par chauffage micro-ondes hybride à faible vitesse (2°C/min). Pour ces deux poudres (3Y et 8Y), ils ont mis en évidence une accélération des cinétiques de densification en frittage micro-ondes pour des densités inférieures à 96% (Figure 69) et, uniquement pour la poudre 3Y, une réduction de la taille des grains pour une même densité par rapport au frittage conventionnel.

De ce dernier résultat, ils ont pu déduire un changement du mécanisme de densification prépondérant. Ils ont ainsi attribué l'accélération de la densification durant les étapes initiale et intermédiaire du frittage au mécanisme de diffusion volumique plutôt qu'à la diffusion de surface et à la diffusion aux joints de grains. Enfin, des expériences de vieillissement/maturation à 1500°C ont montré que pour des densités supérieures à 96%, la croissance de grains était fortement accélérée sous champ micro-ondes. La croissance de grains anormale observée serait vraisemblablement une manifestation d'un effet micro-ondes mais elle n'a pas été élucidée.



**Figure 69 : Evolution de la densité de poudres de zircon 3Y et 8Y avec la température de frittage. Frittage micro-ondes (hybride multimode) et conventionnel à la vitesse de 2°C/min. [NIG 97]**

Un autre résultat notable concernant une nanopoudre de zircone yttrée (3 %mol, "home-made") partiellement stabilisée a été publiée par Binner & al. [BIN08]. En combinant un chauffage hybride micro-ondes/conventionnel et la technique de frittage en deux étapes développées par Chen & Wang [CHE00], ces auteurs sont parvenus à un matériau totalement dense (> 99 %) avec des grains de taille nanométrique (60-80 nm). Toutefois, Binner & al. tout comme Goldstein & al. n'ont pas réussi à imposer une vitesse de chauffage constante entre 400°C et 1000°C, et, comme la plupart des auteurs, ils n'apportent pas d'information détaillée sur l'homogénéité microstructurale des matériaux frittés.

En conclusion, bien que les études antérieures semblent mettre en évidence des effets positifs du chauffage par micro-ondes sur le frittage de zircons yttrés, on constate un manque de résultats démontrant le gain apporté par le chauffage micro-ondes, particulièrement avec un dispositif sans suscepteur et sous champ électrique. Or, ce résultat ne peut être obtenu que dans une cavité monomode. D'autre part, la détermination de l'effet du champ électrique sur la densification et le développement microstructural n'a pas encore été clairement établie principalement à cause des difficultés de comparaison entre frittage micro-ondes et frittage conventionnel dans des conditions, sinon identiques, au moins comparables, de vitesse de chauffage et, de température et de temps de frittage. En effet, la maîtrise d'un cycle de chauffage identique au frittage conventionnel ainsi que la détermination fiable de la température des échantillons demeurent les principaux défis à relever pour accomplir cette tâche.

## IV-I.B. FRITTAGE DE COMPRIMES DE ZIRCONE 2Y-TZP : RESULTATS

Dans cette étude, des expériences de frittage direct sous un champ électrique sont comparées au chauffage micro-ondes hybride et au frittage conventionnel avec une vitesse de chauffage identique (25°C/min). Durant chaque expérience, la vitesse de chauffage imposée a été maîtrisée en ajustant la position du piston court-circuit à puissance incidente constante. Les températures des échantillons, et du suscepteur le cas échéant, ainsi que la puissance dissipée dans la cavité ont été enregistrées. Leurs variations respectives au cours du cycle d'élaboration ont été tracées et commentées. Les résultats obtenus en termes de densité et de taille moyenne des grains ont été analysés pour chaque procédé. L'efficacité et les effets spécifiques du chauffage sous champ électrique seront examinés à l'issue de comparaisons entre les résultats obtenus pour les trois procédés de frittage. Finalement, leur interprétation en termes de mécanismes de frittage sera discutée.

On rappelle que les échantillons de zircone yttrée 2Y-TZP ont été mis en forme en deux étapes successives. Tout d'abord, une compression en matrice (diamètre 8 mm) simple effet à une pression de 50 MPa a permis d'obtenir des échantillons en cru cylindriques d'une densité relative de 38-39%. Puis la densité relative a été accrue par une compression isostatique à froid à une pression de 250 MPa pour atteindre environ 48%. La mise en forme a été suivie d'un déliantage sous flux d'air (5°C/min – 600°C/3h) qui s'est accompagnée d'une perte de masse d'environ 0,5%.

### IV-I.B.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL

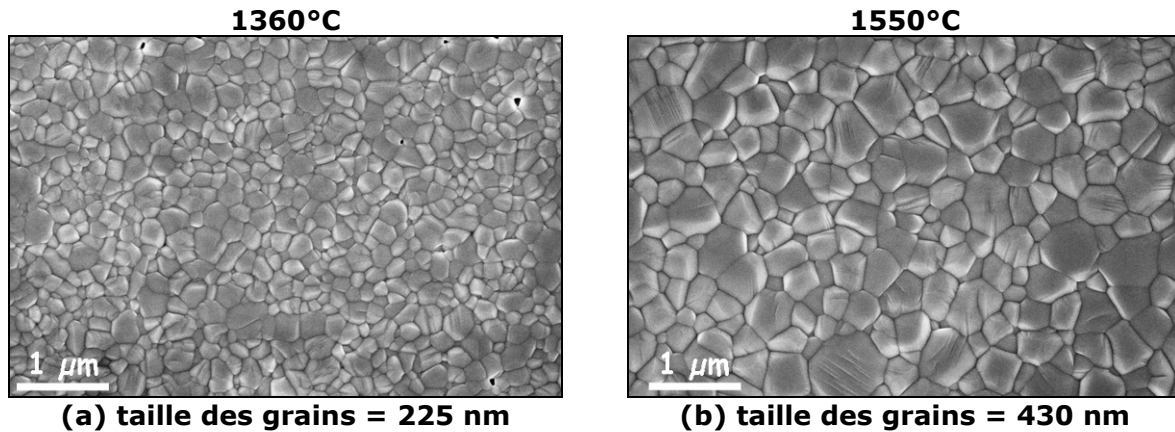
Les dimensions caractéristiques des échantillons en cru frittés conventionnellement sont données dans le Tableau 5.

Tableau 5. Dimensions des échantillons avant frittage conventionnel

nom échantillon	masse (g)	hauteur (mm)	diamètre (mm)	densité relative (%)
D+L227	0,9918	7,84	7,38	48,5
D+L216	0,9959	8,00	7,32	48,5
D+L222	0,9967	7,91	7,38	48,3

Les expériences de chauffage conventionnel ont été effectuées sous air statique dans un dilatomètre vertical à la vitesse de 25°C/min jusqu'à 1360°C et 1550°C et 2°C/min jusqu'à 1550°C.

Les matériaux frittés conventionnellement présentent une microstructure homogène, ce qui était attendu. Pour une vitesse de chauffage de 25°C/min, la taille moyenne des grains est de 225 nm à 1360°C et de 430 nm à 1550°C, comme l'illustrent les micrographies MEB de la Figure 70.



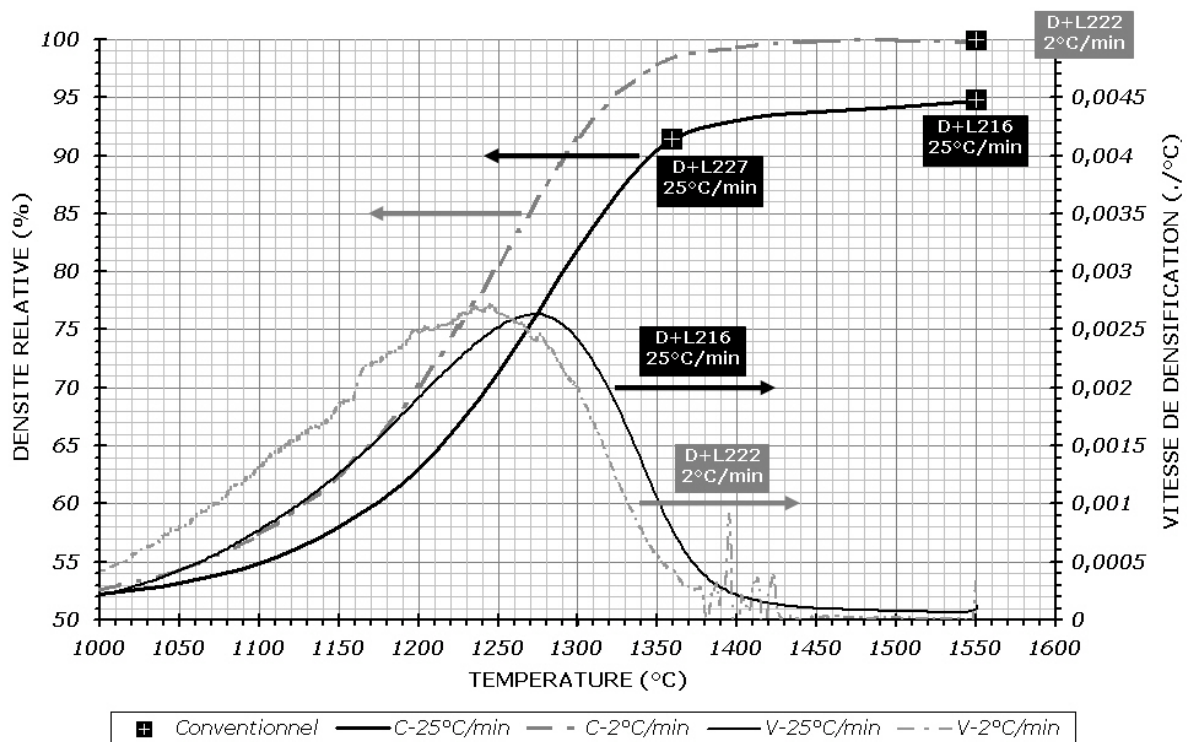
**Figure 70 : Micrographies MEB-FEG des matériaux frittés conventionnellement à la vitesse de 25°C/min pour deux températures (a) D+L227 - 1360°C (91,4%) (b) D+L216 - 1550°C (94,8%)**

On constate que l'évolution de la microstructure est importante entre 1360°C et 1550°C à la vitesse de 25°C/min : la taille des grains est quasiment multipliée par deux.

En revanche, lorsque la vitesse de chauffage est de seulement 2°C/min, la taille de grains à 1550°C (~ 440 nm) est presque identique à celle de l'échantillon fritté à la vitesse de 25°C/min.

La Figure 71 montre les variations de la densité relative avec la température de frittage pour deux vitesses de chauffage : 2°C/min et 25°C/min. Le tracé des courbes de densification et de vitesse de densification a été calculé selon la procédure exposée précédemment (cf. III.C.3.). Les marqueurs (croix blanche dans carré noir) indiquent la densité finale des échantillons et leur température de frittage.

A la vitesse de 2°C/min, l'échantillon est complètement dense dès 1450°C. Alors qu'à la vitesse de 25°C/min, l'échantillon n'atteint pas plus de 95% de densité malgré une température maximale de 1550°C. Ce résultat indique les limites du frittage conventionnel pour des vitesses "non conventionnelles" et sans maintien à la température de frittage. A 2°C/min et 25°C/min, la vitesse maximale de densification se situe à environ 1240°C et 1270°C respectivement.



**Figure 71 : Variations de la densité relative avec la température lors du chauffage conventionnel pour deux vitesses chauffage (2°C/min et 25°C/min)**

Les valeurs de la densité relative finale et de la taille moyenne des grains pour chaque échantillon élaboré par frittage conventionnel sont regroupées dans le Tableau 6.

Tableau 6. Densité relative et taille finale des grains après frittage conventionnel à la vitesse de 2°C/min et 25°C/min

nom échantillon	température de frittage (°C)	vitesse de chauffage (°C/min)	densité relative (%)	taille des grains (nm)
D+L227	1360	25	91,4	215-235
D+L216	1550	25	94,8	425-435
D+L222	1550	2	100	430-455

#### IV-I.B.2. LE FRITTAGE MICRO-ONDES DIRECT

##### IV-I.B.2.a. Analyse des essais

Les dimensions caractéristiques des échantillons en cru sont données dans le Tableau 7.

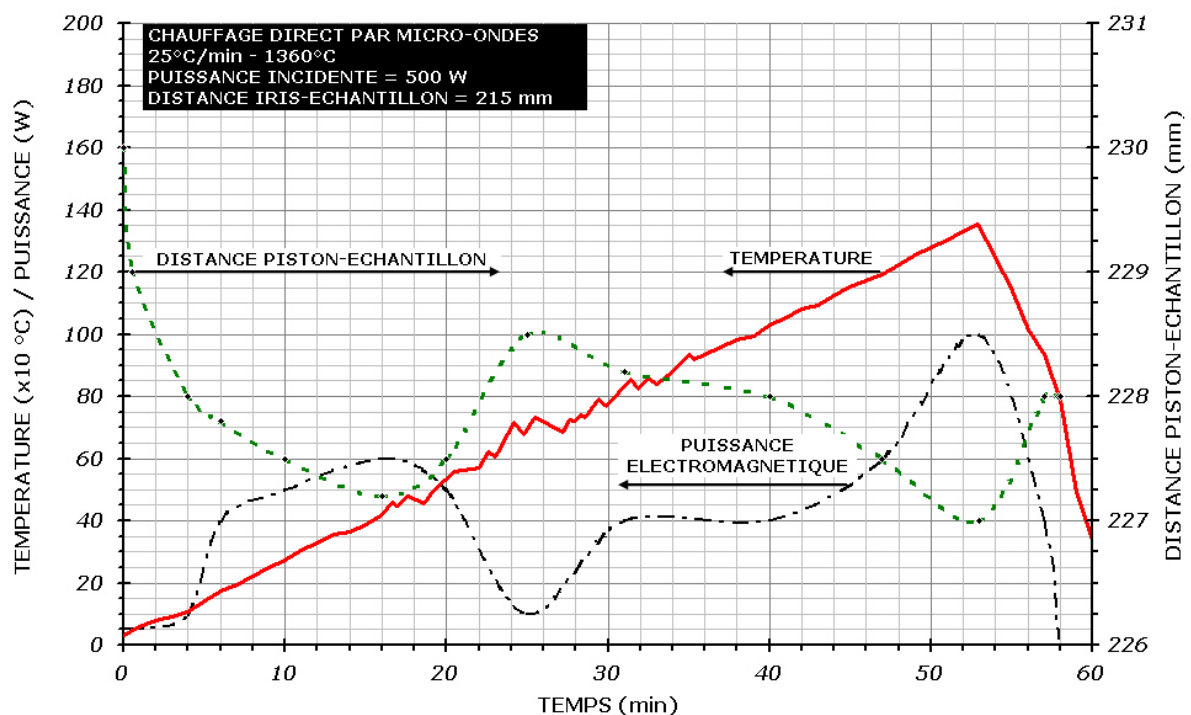
Tableau 7. Dimensions des échantillons avant frittage micro-ondes direct :



nom échantillon	masse (g)	hauteur (mm)	diamètre (mm)	densité relative (%)
MWd88	0,9938	7,91	7,38	48,1
MWd87	0,9912	7,92	7,37	48,1
MWd85	0,9940	7,97	7,36	48,1
MWd83	0,9941	8,02	7,37	47,6

Pour ces expériences de frittage direct par micro-ondes sous air statique, la distance iris-échantillon était de 215 mm et la puissance micro-ondes incidente a été fixée à 500 W et maintenue constante jusqu'à la température maximale de frittage. Une vitesse de chauffage de 25°C/min a été suivie de la température ambiante jusqu'à la température de frittage (de 1200°C à 1500°C maximum).

Les évolutions de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité (différence entre la puissance incidente et la puissance réfléchie) et de la température de la surface supérieure de l'échantillon MWd85 en fonction du temps ont été tracées sur la Figure 72.



**Figure 72 : Résultat d'un essai de frittage micro-ondes sans suscepteur. Evolutions de la position du piston, de la puissance dissipée dans la cavité et de la température de l'échantillon de zircon (MWd85) avec le temps**

La température maximale de frittage de cet échantillon (MWd85) est de 1360°C. Entre la température ambiante et environ 400°C, une vitesse de chauffage régulière est obtenue en déplaçant le piston en direction de la position optimale conduisant à la résonance (réduction de la distance piston-échantillon de 230,0 mm à 227,3 mm) ; dans le même temps, la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité augmente jusqu'à 60 W.

Ensuite, la maîtrise de la vitesse de chauffage entre 450°C et 700°C nécessite de déplacer le piston en direction opposée jusqu'à une distance de 228,5 mm de l'échantillon ; la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité diminue alors jusqu'à 10 W au minimum. Au-delà de 700°C, le déplacement régulier du piston vers l'échantillon jusqu'à une distance minimale de 227,0 mm permet de conserver la même vitesse de chauffage jusqu'à la température de frittage (1360°C). Lors du déplacement du piston, la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité augmente jusqu'à un maximum de 100 W à 1360°C. Enfin, après la température de frittage ait été atteinte, l'éloignement rapide du piston et le retour à zéro de la puissance incidente (58<sup>ème</sup> minute) ont conduit au refroidissement rapide de l'échantillon.

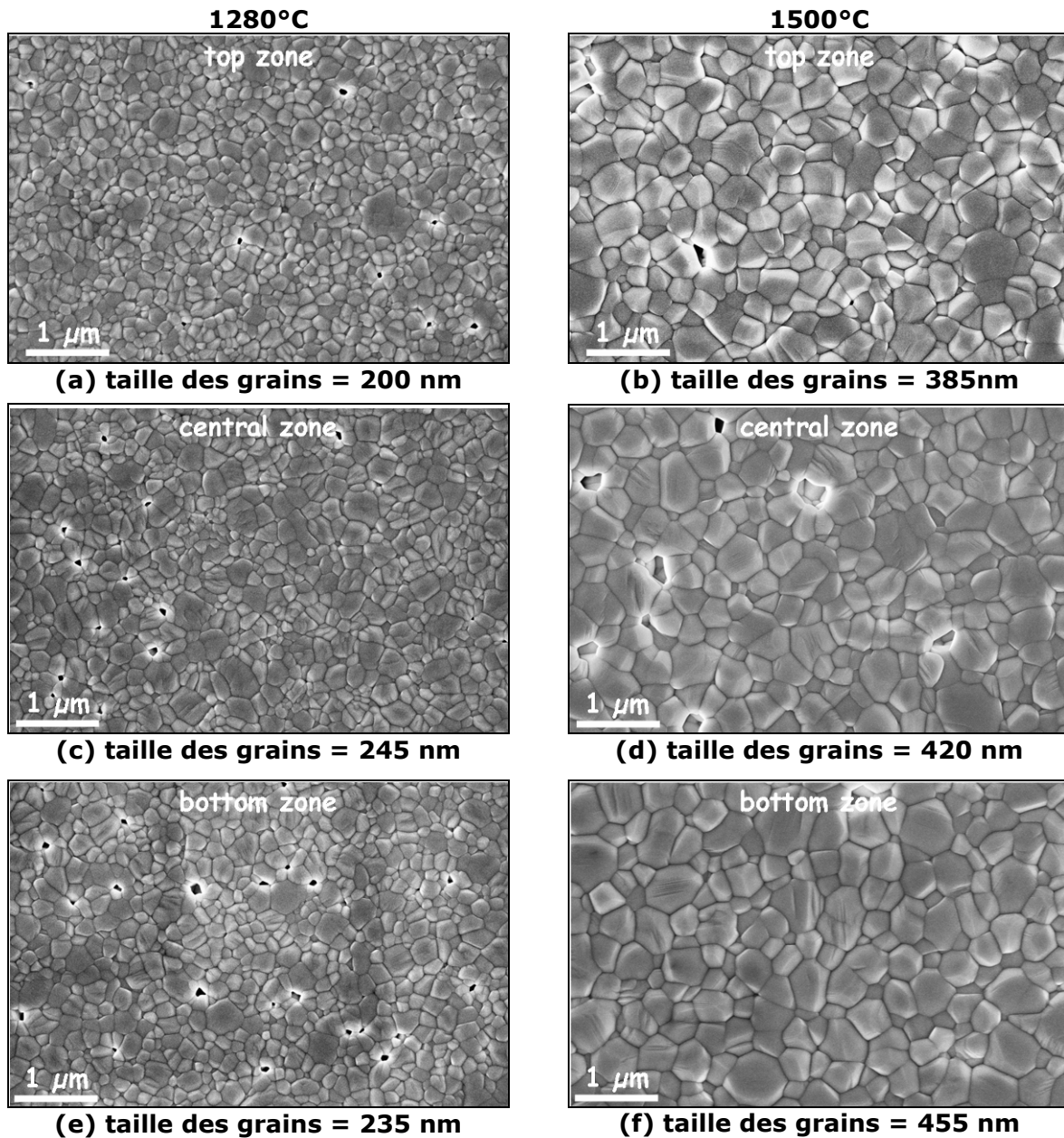
Le même protocole a été mis en pratique pour tous les échantillons frittés directement par micro-ondes. Des variations similaires de la position du piston et de la puissance électromagnétique dans la cavité ont été observées.

#### *IV-1.B.2.b. Observations microstructurales et densification*

La microstructure des matériaux frittés a été examinée au microscope électronique à balayage. Les zones observées se trouvent sur l'axe de révolution des échantillons de forme cylindrique. Des mesures de taille moyenne des grains ont été effectuées dans des régions situées à différentes hauteurs : la zone supérieure (top zone), la zone centrale (central zone), la zone inférieure (bottom zone).

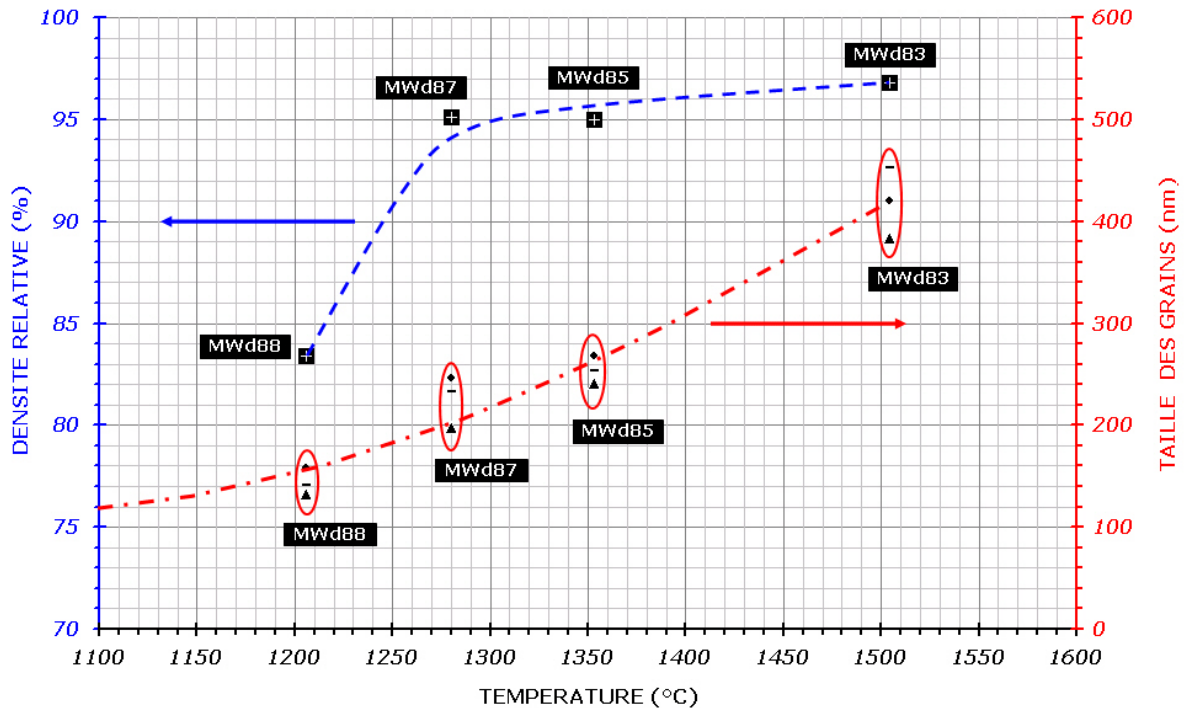
D'un empilement faiblement cohésif de cristallites d'environ 60 nm, la microstructure de la poudre compactée évolue durant le frittage pour former un matériau plus ou moins dense formé de grains dont la taille moyenne varie de 140 nm vers 1200°C jusqu'à près de 400 nm à 1500°C. Les tailles de grains semblent évoluer conformément à la trajectoire de frittage établie par Matsui & al. [MAT 08]. A partir de 1350°C, la taille des grains croît plus rapidement. On peut noter que la densité gagne à peine 2% entre 1350°C et 1500°C alors que la taille des grains augmente d'un facteur 2 (220 nm → 420 nm).

En observant la microstructure à différentes hauteurs, on constate par ailleurs que les grains sont plus petits dans la zone se trouvant en haut (en moyenne 130 nm à 1200°C, 200 nm à 1280°C, 240 nm à 1350°C et 385 nm à 1500°C) que dans les zones situées au centre et en bas (~ 150 nm à 1200°C, ~ 240 nm à 1280°C, ~ 260 nm à 1350°C et ~ 435 nm à 1500°C). La Figure 73 illustre ce résultat pour les échantillons MWd87 (1280°C) et MWd83 (1500°C). Cette hétérogénéité légère mais néanmoins systématique de la microstructure est à mettre en lien avec les spécificités du chauffage micro-ondes, comme nous le verrons dans la discussion.



**Figure 73 : Micrographies MEB-FEG des matériaux élaborés par frittage micro-ondes direct à la vitesse de 25°C/min jusqu'à deux températures : 1280°C (95,1%) – MWd87 (gauche) et 1500°C (96,8%) – MWd83 (droite). Microstructures en haut (a) (b), au centre (c) (d) et en bas (e) (f)**

Les variations de la densité et de la taille des grains (haut ▲, centre ●, bas –) avec la température de frittage sont présentées dans la Figure 74 .



**Figure 74 : Variations de la densité et de la taille des grains avec la température de frittage lors du frittage micro-ondes direct (sans suscepteur) à 25°C/min**

Pour ces échantillons frittés par micro-ondes sans suscepteur, les densités relatives finales sont de 83,4 %, 95,1 %, 95,0 % et 96,8 % à respectivement 1200°C, 1280°C, 1350°C et 1500°C. On peut noter que la densité atteint 95% dès 1300°C environ (MWd87) et croît ensuite très lentement pour atteindre 96,8% à 1500°C (MWd83).

La densité relative finale et de la taille moyenne des grains obtenues pour chaque échantillon élaboré par frittage micro-ondes direct sont rassemblées dans le Tableau 8.

Tableau 8. Densité relative et taille finale des grains après frittage micro-ondes direct à la vitesse de 25°C/min

nom échantillon	température de frittage (surface supérieure de l'échantillon) (°C)	densité relative (%)	taille des grains (nm)
MWd88	1206	83,4	130-160
MWd87	1280	95,1	195-250
MWd85	1353	95,0	240-270
MWd83	1504	96,8	380-455

### IV-I.B.3. LE FRITTAGE MICRO-ONDES HYBRIDE

#### IV-I.B.3.a. Analyse des essais

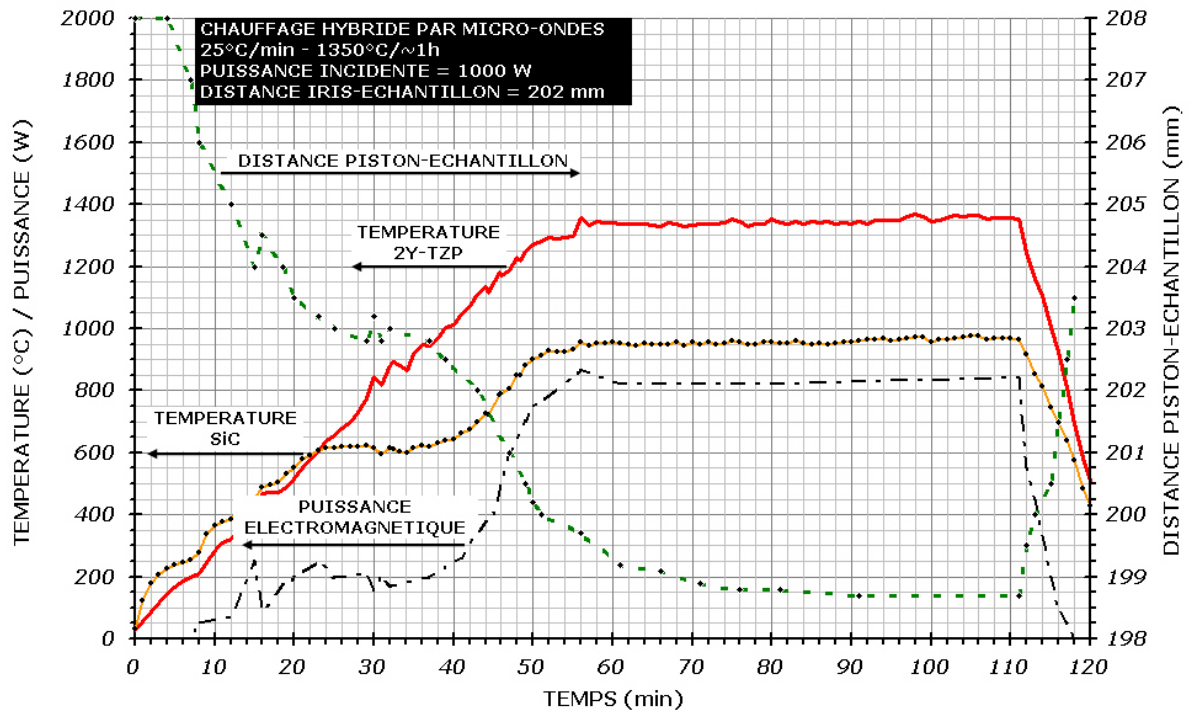
Les dimensions caractéristiques des échantillons en cru sont données dans le Tableau 9.

Tableau 9. Dimensions des échantillons avant frittage micro-ondes hybride

nom échantillon	masse (g)	hauteur (mm)	diamètre (mm)	densité relative (%)
MWh72	0,9854	7,79	7,40	48,2
MWh76	0,9938	7,99	7,34	48,2
MWh66	0,9852	7,80	7,40	48,1
MWh68	0,9924	7,93	7,39	47,8

Pour ces expériences de frittage micro-ondes hybride sous air statique, la puissance micro-ondes incidente a été fixée à une valeur de 1000 W tandis que la distance entre l'iris et l'échantillon a été fixée à 202 mm pour obtenir un champ électrique à la résonance maximum au centre de la cavité. En effet, l'introduction d'un suscepteur tubulaire massif en SiC nécessite une puissance plus élevée pour atteindre les températures de frittage désirées. La vitesse de chauffage de l'échantillon a été maintenue constante (25°C/min) jusqu'à la température de frittage selon la même procédure de régulation par le déplacement du piston. Différentes températures de frittage ont été atteintes : 1200°C (0h), 1275°C (0h), 1340°C (0h) et 1350°C (1h).

La Figure 75 illustre les évolutions en fonction du temps de la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité et des températures du suscepteur et de la surface supérieure de l'échantillon. Le cycle thermique de référence prescrit inclut une heure de palier à la température maximale de frittage de 1350°C.



**Figure 75 : Résultat d'un essai de frittage micro-ondes avec suscepteur. Evolutions de la position du piston, de la puissance dissipée dans la cavité et des températures de l'échantillon (MWh68) et du suscepteur avec le temps**

Durant cette expérience, on peut distinguer trois étapes :

- de la température ambiante jusqu'à 600°C :

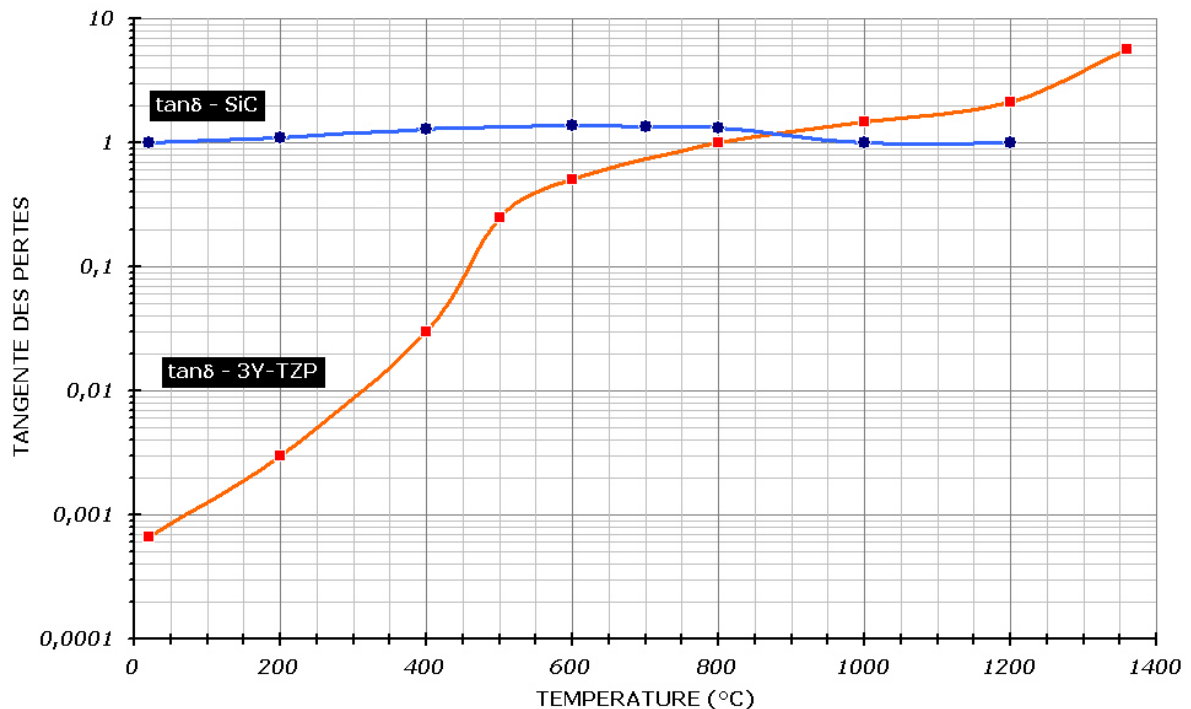
Le piston est déplacé assez rapidement en direction de l'échantillon et du suscepteur pour accroître la puissance électromagnétique dans la cavité ; la puissance dissipée dans la cavité augmente jusqu'à environ 250 W. Les températures du suscepteur en SiC et de l'échantillon de 2Y-TZP augmentent assez régulièrement, celle du suscepteur étant supérieure à celle de l'échantillon de 50°C environ. Dès 400°C environ, l'écart de température entre le suscepteur et l'échantillon diminue progressivement et, à environ 600°C, l'échantillon et le suscepteur ont la même température.

- au-delà de 600°C :

La température de la zircone devient supérieure à celle du suscepteur ; entre 600°C et 1000°C, la vitesse de chauffage de la zircone est toujours de 25°C/min alors que la position du piston change peu, la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité demeure entre 150 W et 250 W et la température du suscepteur reste à peu près constante aux environs de 600-650°C. Au-dessus de 1000°C, le piston est avancé vers l'échantillon et la puissance électromagnétique dissipée dans la cavité augmente jusqu'à 850 W lorsque la température de la zircone atteint 1350°C et celle du suscepteur seulement 950°C. Durant l'heure de maintien à la température de frittage, tous les paramètres restent quasiment constants.

L'analyse de cette expérience met en évidence plusieurs résultats nouveaux concernant le chauffage micro-ondes avec un suscepteur cylindrique.

En comparant l'évolution de la tangente des pertes diélectriques ( $\tan(\delta) = \frac{\epsilon''}{\epsilon'}$ ) du carbure de silicium et de la zircone avec la température (Figure 76), on note qu'à température ambiante la tangente des pertes du carbure de silicium ( $\sim 1$ ) est très supérieure à celle de la zircone ( $\sim 7.10^{-4}$ ). Puis, lorsque la température augmente, la tangente des pertes de la zircone augmente de plusieurs ordres de grandeur tandis que celle du carbure de silicium reste entre 1 et 1,3. Enfin, à partir de 800-900°C, la tangente des pertes diélectrique de la zircone est supérieure à celle du carbure de silicium.



**Figure 76 : Variations avec la température des parties réelle et imaginaire de la permittivité diélectrique complexe du carbure de silicium et d'une zircone [BAT 95]**

On en déduit que le carbure de silicium couple mieux avec les micro-ondes que la zircone à basse température (< 800°C). Et ceci explique au moins en partie pourquoi on observe que la température du suscepteur est supérieure à celle de l'échantillon jusqu'à 600°C. A haute température, c'est l'inverse, la zircone couple mieux que le carbure de silicium et la température de l'échantillon de zircone est supérieure à celle du suscepteur.

Mieux, ce résultat à haute température démontre sans aucune ambiguïté le caractère hybride de ce mode de chauffage micro-ondes avec un suscepteur : la zircone est

chauffée par radiation du suscepteur mais aussi par couplage avec le champ électrique. Ces expériences apportent la preuve que le suscepteur ne fait pas écran au champ électrique. Ce résultat vient corroborer également les simulations numériques présentées dans le chapitre II montrant la distribution du champ électrique dans le suscepteur et dans l'échantillon (cf. II.D.2.c.). Par ailleurs, en calculant la profondeur de pénétration du champ électrique dans le suscepteur, on trouve que cette profondeur est de l'ordre de quelques millimètres en fonction des données trouvées dans la littérature, soit du même ordre de grandeur que l'épaisseur de 5 mm de notre suscepteur.

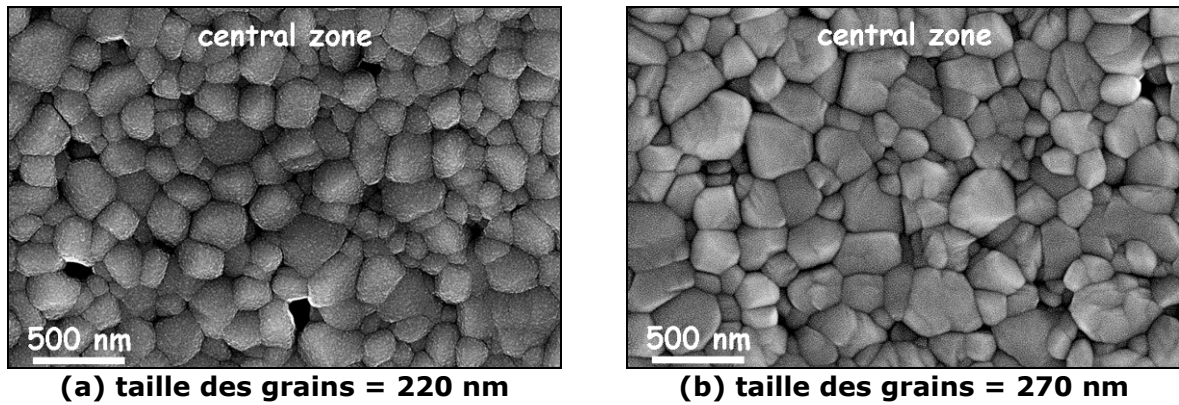
Enfin, on remarque que la température du suscepteur et la puissance dissipée suivent les mêmes évolutions. La température du suscepteur atteint au maximum 950°C pour une puissance incidente de 1000 W. De plus, on constate que la puissance dissipée dans la cavité est beaucoup plus élevée (850 W) lors du chauffage hybride que celle mesurée lors du chauffage direct (150 W). On peut en déduire que le suscepteur absorbe et dissipe la plus grande part de l'énergie micro-ondes pour chauffer et/ou maintenir sa température en compensant les pertes thermiques par radiation. Ce suscepteur n'étant pas isolé, les pertes thermiques par radiation qu'il subit augmentent de manière considérable avec la température à partir de 650°C (le rapport surface sur volume du suscepteur est plus de deux fois supérieur à celui d'un échantillon standard de zircone). Par conséquent, il est logique que le suscepteur ne puisse pas atteindre une température plus élevée dans ces conditions et que l'échantillon de zircone, mieux isolé, devienne plus chaud que le suscepteur dès 600°C bien que la valeur de la tangente des pertes de la zircone soit encore légèrement inférieure à cette température.

#### IV-I.B.3.b. Observations microstructurales et densification

Même si on observe toujours un petit gradient de microstructure entre le haut et le bas, la microstructure des matériaux élaborés par frittage micro-ondes hybride est globalement plus homogène que celle des matériaux frittés par micro-ondes sans suscepteur. Par exemple, à 1340°C, l'échantillon MWh66 présente des tailles moyennes de grains de 215 nm en haut, de 225 nm au milieu et de 230 nm en bas.

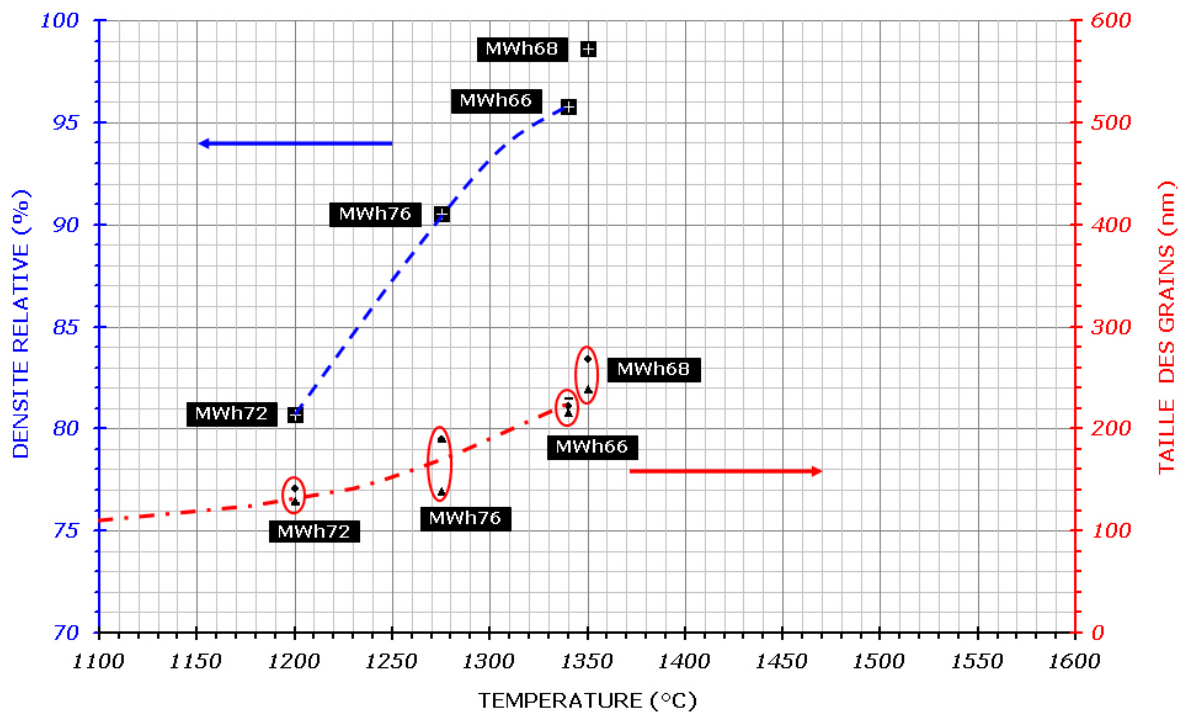
L'effet d'un palier d'une heure à la température de 1350°C (MWh68) est d'augmenter sensiblement la taille des grains dans la zone centrale (Figure 77 : 270 nm pour MWh68 au lieu 220 nm pour MWh66) mais celle-ci reste similaire en haut et en bas (230-240 nm pour MWh68 au lieu de 210-230 nm pour MWh66).





**Figure 77 : Micrographies MEB-FEG des matériaux élaborés par frittage micro-ondes hybride pour deux temps de palier (a) MWh66 (95.8 %) – 1340°C (0h) and (b) MWh68 (98.6 %) – 1350°C (1h)**

Les variations de la densité et de la taille des grains (haut ▲, centre ●, bas -) avec la température de frittage sont présentées dans la Figure 78.



**Figure 78 : Variations de la densité et de la taille des grains avec la température de frittage lors du frittage micro-ondes hybride (avec suscepteur) à 25°C/min**

Pour ces échantillons frittés en condition hybride (avec un suscepteur), la densité atteint 80% dès 1200°C et croît ensuite jusqu'à près de 96% à 1340°C. Il faut souligner que le palier de frittage d'une heure à la température de 1350°C (MWh68) permet d'augmenter la densité de manière substantielle (95,8% → 98,6%), sans conduire à une croissance

des grains conséquente, puisque la taille des grains passe en moyenne de 220 nm à 250 nm seulement.

La densité relative finale et la taille moyenne des grains pour chaque échantillon élaboré par frittage micro-ondes avec un suscepteur sont résumées dans le Tableau 10.

Tableau 10. Densité relative et taille finale des grains après frittage micro-ondes hybride à la vitesse de 25°C/min

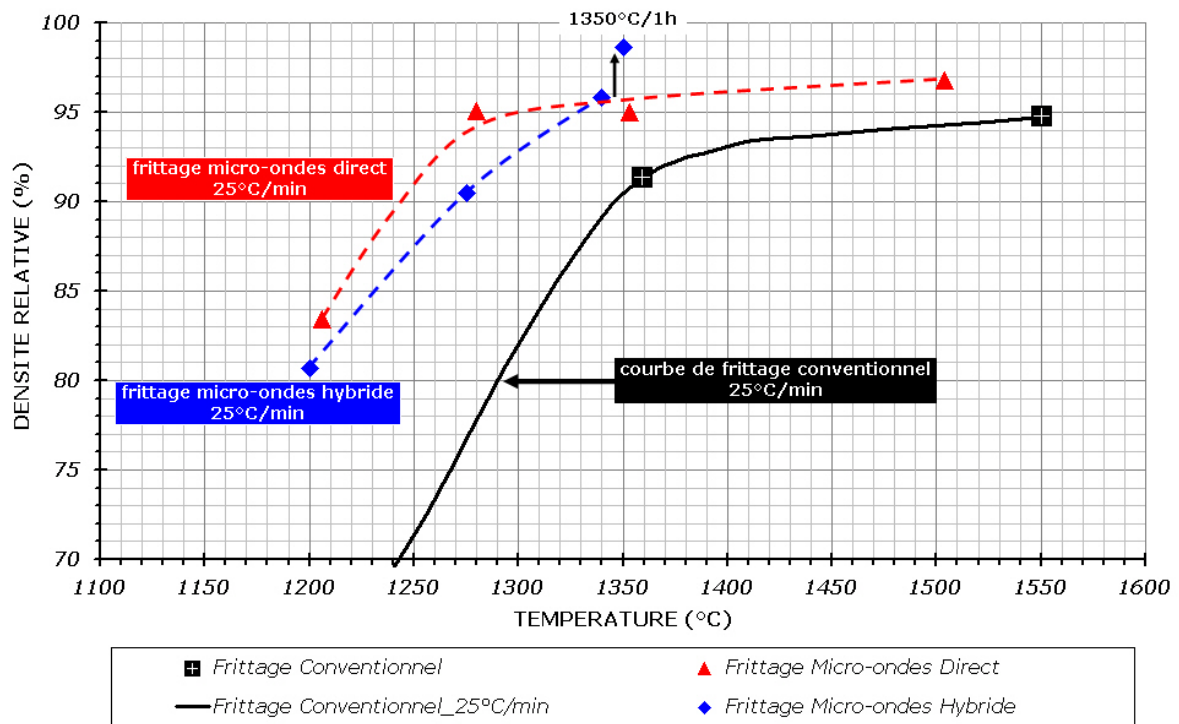
nom échantillon	température de frittage (surface supérieure de l'échantillon) (°C)	densité relative (%)	taille des grains (nm)
MWh72	1200	80,7	125-145
MWh76	1275	90,5	135-190
MWh66	1340	95,8	210-230
MWh68	1350 - 1h	98,6	230-270

## IV-I.C. DISCUSSION

### IV-I.C.1. EFFET DU CHAUFFAGE MICRO-ONDES SUR LA DENSIFICATION

La Figure 79 présente les densités obtenues au cours des essais de frittage micro-ondes à différentes températures. On rappelle que ces températures sont celles de la surface supérieure des échantillons donc sensiblement inférieures à la température à cœur. Ces résultats ont été comparés à la courbe de densification conventionnelle obtenue par dilatométrie pour l'échantillon D+L216.

Il apparaît immédiatement que toutes les densités des matériaux frittés par micro-ondes sont significativement plus élevées que celles des matériaux frittés conventionnellement pour une même température d'élaboration. Ainsi, à 1280°C, aux environs de la vitesse maximale de densification en frittage conventionnel, la densité des matériaux frittés par micro-ondes est de 90-95% alors qu'elle est de seulement 78% en frittage conventionnel. Par conséquent, pour les essais de frittage micro-ondes, les températures pour lesquelles la vitesse de densification serait maximale sont inférieures à 1200°C. Bien que cette différence diminue avec l'augmentation de la température de frittage, l'augmentation de la densité reste néanmoins marquée : de 91% à 95-96% vers 1350°C et de 94% à 97% à 1500°C.



**Figure 79 : Résultats de la variation de la densité relative finale en fonction de la température maximale de frittage pour les procédés de frittage conventionnel, micro-ondes direct et micro-ondes hybride**

Ces résultats peuvent être analysés également en termes de diminution de la température de frittage pour atteindre une même densité. Ainsi, entre 80% et 92% de densité, une différence de 100°C environ est mesurée, à l'avantage du frittage micro-ondes. L'effet est encore plus spectaculaire à plus haute densité : on constate qu'une densité de 95% est atteinte dès 1280°C et 1330°C en frittage micro-ondes respectivement direct et hybride alors qu'elle est à peine atteinte à 1550°C à l'issue du frittage conventionnel. Le frittage micro-ondes direct permet alors d'atteindre une densité de 95% à une température de frittage inférieure de près de 270°C ; la diminution est de l'ordre de 220°C pour le frittage micro-ondes hybride.

Enfin, on observe des différences de densification assez faibles entre le frittage micro-ondes direct et le frittage hybride. Par conséquent, dans les conditions expérimentales décrites, ceci apporte une preuve supplémentaire du chauffage hybride des échantillons. La présence du suscepteur n'annihile en rien les effets positifs du chauffage par micro-ondes sur la densification de la zircone yttrée.

Finalement, qu'il soit direct ou hybride, le frittage micro-ondes accélère les cinétiques de densification : des densités significativement plus élevées sont atteintes pour des températures plus basses. Pour cette vitesse de chauffage de 25°C/min, la densité maximale atteinte en frittage conventionnelle est de 94,8% à 1550°C, alors qu'il suffit

d'à peine 1300°C en frittage micro-ondes direct et environ 1330°C en frittage micro-ondes hybride.

Les résultats obtenus en frittage micro-ondes démontrent indéniablement une accélération des cinétiques de densification dès le stade initial du frittage. Rappelons que Bernard-Granger & al. ont proposé qu'à faible densité et pour des grains de l'ordre de 100 nm, la formation de défauts à l'interface était le mécanisme limitant les cinétiques de densification et non l'étape de diffusion des cations  $Zr^{4+}$  dans les joints de grains. Si on admet cette analyse, on peut conclure que le champ électrique a un effet bénéfique sur la cinétique de cette réaction d'interface.

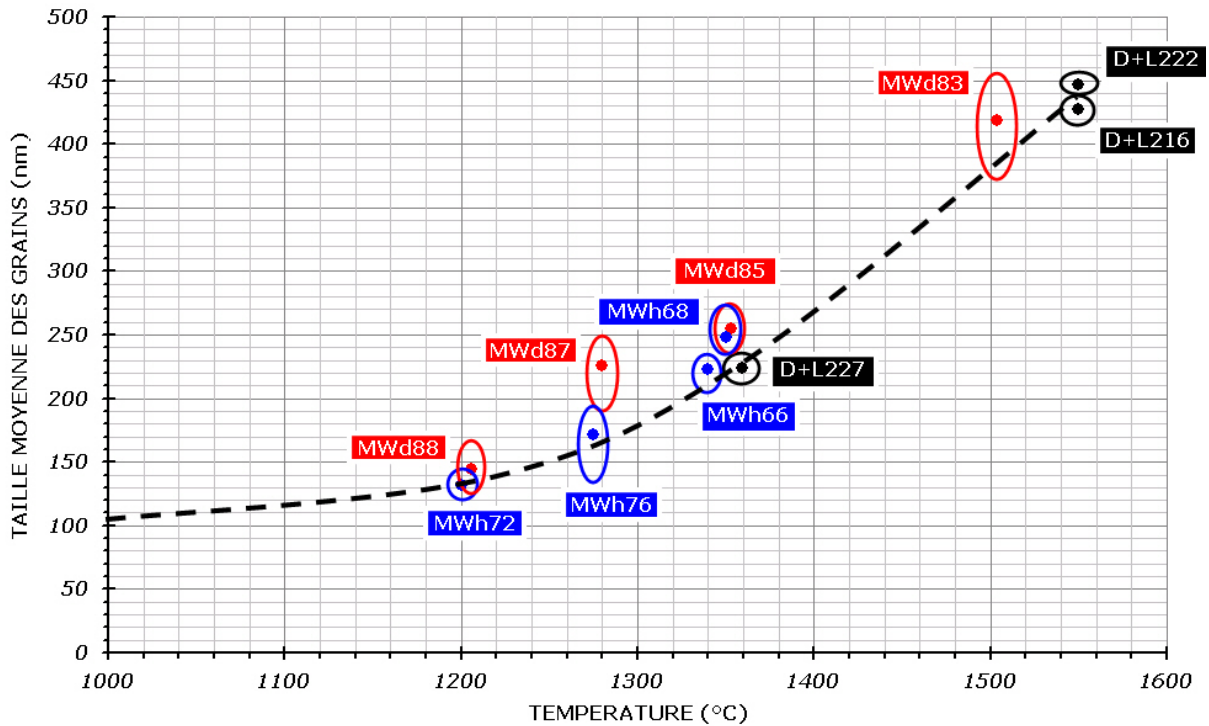
#### IV-I.C.2. EFFET DU CHAUFFAGE MICRO-ONDES SUR LA MICROSTRUCTURE

Les tailles de grains mesurées en haut, au centre et en bas de tous les matériaux frittés sont reportées en fonction de la température dans la Figure 80 et en fonction de la densité relative finale dans la Figure 81.

La première représentation de l'évolution microstructurale avec la température indique un changement de régime vers 1300°C qui se traduit par une augmentation plus rapide de la taille des grains (Figure 80). Entre le début du frittage et 1300°C, la taille moyenne des grains passe de  $\sim 60$  nm pour les cristallites primaires à  $\sim 150$  nm (ce qui représente une division par  $\sim 15$  de la population initiale des cristallites). Puis les grains grossissent plus rapidement pour atteindre  $\sim 450$  nm vers 1550°C (division par  $\sim 420$  de la population initiale des cristallites). En revanche, ni la vitesse de chauffage, ni le temps de frittage, ni le mode de chauffage ne semble avoir d'incidence significative sur l'évolution de la taille des grains, qui semble gouvernée essentiellement par la température de frittage. Les trajectoires de frittage (fonction de la température) pour les frittages conventionnel, micro-ondes direct et hybride se superposent.

Ensuite, le report des tailles de grains mesurées dans les différentes zones de chaque échantillon met en évidence une différence d'homogénéité microstructurale selon le mode de chauffage. Le frittage conventionnel génère des matériaux des tailles moyennes de grains très proches dans les différentes régions des échantillons. On en déduit que la température dans les échantillons était homogène, malgré une vitesse de chauffage assez rapide. En revanche, le chauffage micro-ondes engendre des microstructures plus hétérogènes, particulièrement pour le chauffage direct. Dans tous les cas, les grains les plus petits se trouvent dans les régions supérieures des échantillons. Pour expliquer cela, il faut se rappeler que le chauffage par micro-ondes de la zircone est volumique donc tend à générer des gradients thermiques du cœur de l'échantillon plus chaud vers ses surfaces, aux frontières d'un environnement plus froid. Ces gradients thermiques seront plus ou moins forts en fonction de la vitesse de chauffage, de la géométrie de

l'échantillon et surtout de l'isolation placé autour de ce dernier pour limiter les pertes thermiques par radiation à travers ses surfaces. Dans notre cas, l'isolation de la surface supérieure des échantillons est réduite (cf. III.C.3.b.) afin que l'on puisse mesurer la température avec la caméra IR. Par conséquent, la température de cette surface mesurée avec la caméra IR est inférieure à la température au cœur de l'échantillon, si bien que les microstructures observées au centre et en bas de l'échantillon sont probablement représentatives de températures de frittage un peu plus élevées.

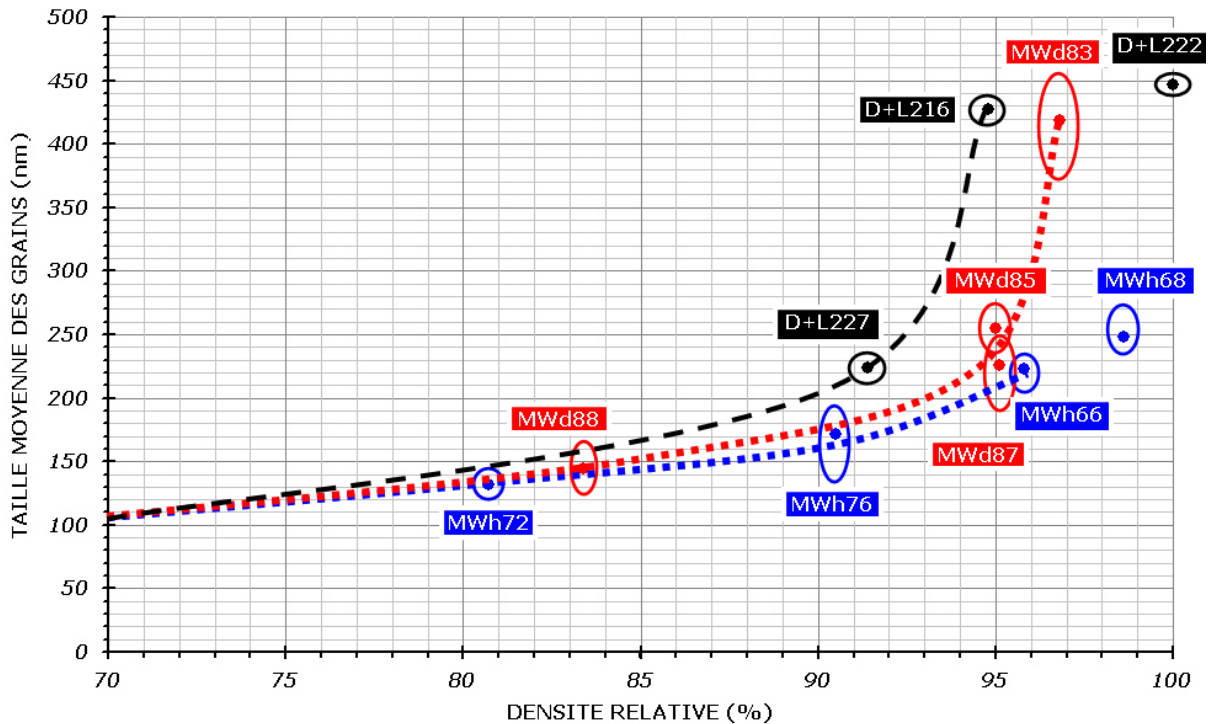


**Figure 80 : Variation de la taille moyenne des grains en fonction de la température de frittage pour les modes de chauffage : conventionnel (D+L2..), micro-ondes direct (MWd..) et hybride (MWh..)**

Les différences de microstructure sont généralement plus importantes pour les échantillons frittés par micro-ondes sans suscepteur que pour ceux frittés avec suscepteur. Ainsi, lors du chauffage sans suscepteur, la différence de température peut être évaluée à  $\sim 50-80^{\circ}\text{C}$  à partir des différences de taille de grains entre le haut et le bas et des trajectoires de frittage (Figure 80 & Figure 81). Par conséquent, la température de la surface supérieure est inférieure à la température à cœur : autrement dit, la température moyenne de frittage est sous-estimée.

En revanche, lors du chauffage hybride, les différences de tailles de grains sont plus petites. Ceci prouve que le suscepteur joue le rôle d'un "super-isolant" et que par conséquent la température de la surface mesurée avec la caméra IR est plus proche de la température moyenne de frittage des échantillons.

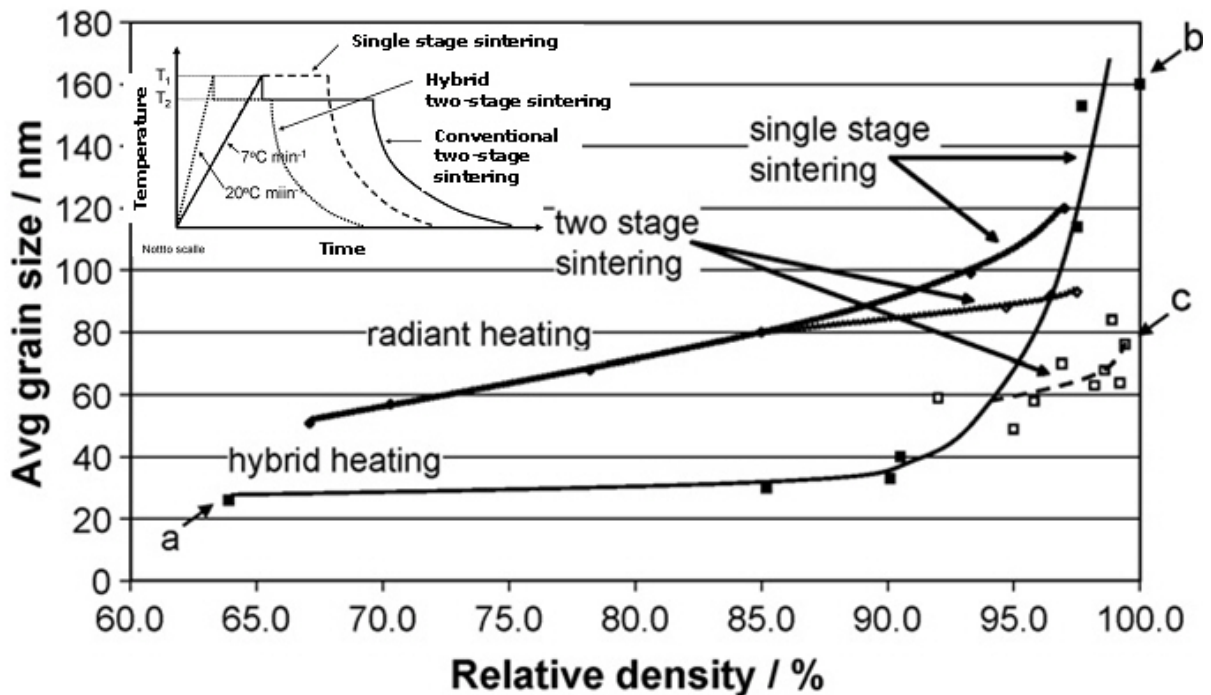
La représentation classique de la taille des grains en fonction de la densité (trajectoire de frittage) montre que la microstructure des matériaux élaborés par frittage micro-ondes est toujours plus fine à densité comparable (Figure 81).



**Figure 81 : Variation de la taille moyenne des grains en fonction de la densité relative pour les modes de chauffage : conventionnel (D+L2..), micro-ondes direct (MWd..) et hybride (MWh..)**

Cette différence est particulièrement importante vers 95% de densité : les grains des échantillons frittés par micro-ondes sont alors deux fois plus petits que ceux de l'échantillon fritté conventionnellement. Ceci peut s'expliquer par la différence de température de frittage de l'ordre de 200°C entre le frittage conventionnel (~ 1550°C) et le frittage micro-ondes (~ 1350°C) pour atteindre une densité de 95%. En revanche, la taille de grains croît plus rapidement au-dessus de 1350°C (MWd83).

En-dessous de 1350°C, la densification avec une croissance de grains limitée des échantillons frittés par micro-ondes rappelle les résultats obtenus par Binner et al. [BIN 08] avec un cycle de frittage en deux étapes adapté des cycles de Chen & Wang [CHE 00] (Figure 82).



**Figure 82 : Trajectoire de frittage d'une zircone 3Y-TZP nanostructurée durant des cycles de frittage conventionnel ou hybride à une ou deux étapes [BIN 08]**

Ce cycle en deux étapes de frittage permet de bloquer la croissance des grains tout en permettant la densification du matériau, que ce soit en chauffage conventionnel ou hybride. Dans notre cas, on peut supposer qu'un des effets du champ électrique serait de ralentir la croissance des grains en-dessous de 1350°C (< 95% de densité) par un effet couplé sur la réaction d'interface, sur la ségrégation en ions  $Y^{3+}$  et sur le "phase partitioning".

Si on s'intéresse à l'évolution de la taille des grains en fin de densification (> 95%), on peut remarquer qu'en frittage conventionnel une diminution de la vitesse de chauffage de 25°C/min à 2°C/min permet d'atteindre une densité finale > 99% avec une évolution de la microstructure très lente : 430 nm → 450 nm. Ceci montre que la croissance des grains est très lente durant l'étape finale du frittage (> 96 %), conformément au "sluggish grain growth" de ce type de zircone TZP à faible taux d'yttrine [STO 91].

En frittage micro-ondes (hybride), ce résultat est confirmé à plus basse température en comparant l'évolution de la densité et de la microstructure après une heure de frittage à 1350°C : la densité augmente de ~ 96% à ~ 99% alors que la taille des grains passe de 220 nm à 250 nm.

#### IV-I.D. CONCLUSIONS

Les résultats de cette étude menée sur une poudre de zircone yttrée (2Y-TZP) sont les suivants [CHA 10] :

- la maîtrise d'une vitesse de chauffage constante de 25°C/min a été possible aussi bien en frittage micro-ondes direct (sans suscepteur) qu'en présence du suscepteur, et en dépit du changement rapide des propriétés diélectriques de la zircone avec la température.
- les résultats des essais de frittage avec suscepteur prouvent que cette configuration résulte en un chauffage hybride puisque la température des échantillons de zircone devient supérieure à celle du suscepteur en SiC à partir de 600°C : l'échantillon bénéficie d'un apport de chaleur extérieur provenant du rayonnement du suscepteur et d'une source de chaleur interne provenant du couplage direct de la zircone avec les micro-ondes.
- la microstructure est homogène en frittage conventionnel, donc on en déduit qu'il n'y a pas de gradient thermique.
- la microstructure est hétérogène en frittage micro-ondes, particulièrement à l'issue du chauffage direct : la microstructure est plus fine dans les régions supérieures que dans les régions centrales et inférieures ; on en déduit qu'il y a un gradient thermique, attribué en partie aux spécificités du chauffage micro-ondes mais surtout à une isolation imparfaite de la surface supérieure des échantillons.
- à une vitesse de chauffage de 25°C/min, rapide comparée aux vitesses de chauffage classiques en frittage conventionnel, les densités atteintes à haute température (~ 1500°C) sont supérieures en frittage micro-ondes ; d'ailleurs, pour le même cycle thermique, il est parfois impossible d'atteindre des densités aussi élevées en frittage conventionnel.
- en frittage micro-ondes (direct ou hybride), la densité des échantillons est plus élevée pour une température équivalente ; vu sous un autre angle, les températures de frittage micro-ondes sont inférieures de plusieurs dizaines de degrés (~ 100°C) par rapport au frittage conventionnel durant le stade intermédiaire du frittage. Plus précisément, cette différence est de l'ordre de 100°C jusqu'à 90% de densité et atteint au maximum près de 300°C vers 95% : l'accélération des cinétiques de densification à basse température (< 1300°C) peut être attribuée à un effet favorable du champ électrique alternatif sur la formation de défauts à l'interface (réaction d'interface).
- l'analyse de la microstructure montre que pour les cycles thermiques suivis, la croissance de grains des échantillons frittés par micro-ondes est limitée entre 80% et



95% (< 1350°C) ; ceci pourrait être dû à un effet couplé du champ électrique sur la réaction d'interface, sur la ségrégation en ions  $Y^{3+}$  et sur le "phase partitioning".

## PARTIE II

### FRITTAGE D'UNE POUDRE METALLIQUE : LE NICKEL

#### IV-II.A. REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

##### IV-II.A.1. LE CHAUFFAGE DE METAUX PAR MICRO-ONDES : UNE HERESIE ?

Compte tenu de leurs propriétés (essentiellement la conductivité électrique), les métaux massifs réfléchissent les ondes électromagnétiques de type micro-ondes ; c'est pourquoi, les métaux à haute conductivité sont employés pour les guides d'ondes par exemple.

Cependant, la profondeur de pénétration du champ électromagnétique dans les métaux n'est pas nulle, elle est de l'ordre du micron. Le champ peut donc pénétrer dans la matière et induire des courants : c'est l'effet de peau. Or, les poudres métalliques fines sont constituées de particules de l'ordre du micron. Ainsi, dans cet état divisé de la matière, les micro-ondes peuvent contribuer au chauffage par différents mécanismes de pertes, dont les pertes par effet Joule dues aux courants de Foucault induits par les variations du champ magnétique, ainsi que les pertes magnétiques (aimantation, oscillation des parois de Bloch...).

Si les premières pertes existent dans tous les matériaux conducteurs, ce n'est pas le cas des pertes magnétiques, spécifiques aux matériaux ferromagnétiques. Les métaux ferromagnétiques sont le fer, le cobalt et le nickel, et certains de leurs alliages.

Tableau 11. Propriétés de quelques métaux ferromagnétiques

Métaux	Nickel	Fer	Cobalt
Température de Curie (°C)	358	770	1115
Perméabilité magnétique relative à une température de 20°C	600	10000	250

Ces matériaux présentent des propriétés ferromagnétiques seulement jusqu'à leur température de Curie. Cette température correspond à la température de disparition de l'ordre magnétique, autrement dit la température au-delà de laquelle un matériau ferromagnétique devient paramagnétique. Par conséquent, pour des températures supérieures à la température de Curie, les mécanismes de pertes magnétiques

deviennent négligeables et ne peuvent plus contribuer au chauffage par micro-ondes de ces métaux.

#### IV-II.A.2. MISE EN EVIDENCE DU CHAUFFAGE DE POUDRES METALLIQUES SOUS CHAMPS MAGNETIQUE ET ELECTRIQUE

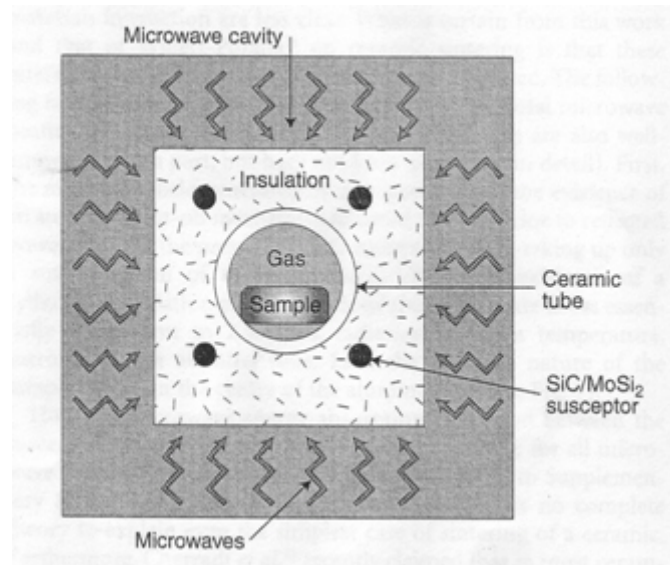
Ce sont les expériences de Cheng & al. [CHE 01] [CHE 02], réalisées dans une cavité monomode, qui ont mis en évidence la contribution du champ magnétique au chauffage direct par micro-ondes de divers métaux (Fe, Co, Cu), carbures ou oxydes (WC, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>), et même des composites céramique/métal (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/acier, ZnO/Co). Le champ électrique peut lui aussi contribuer au chauffage direct par micro-ondes de poudres métalliques lorsqu'elles comportent une couche d'oxyde (CuO). Même si les températures atteintes sont en général modestes (~ 800°C) en raison de l'absence d'isolation des échantillons, elles démontrent néanmoins que les contributions des pertes magnétiques et électriques ne peut pas être ignorées dans le cas de poudres métalliques.

#### IV-II.A.3. ELABORATION PAR CHAUFFAGE MICRO-ONDES DE PIECES METALLIQUES FRITTEES

Les premiers travaux démontrant la possibilité de fritter des pièces purement métalliques par chauffage micro-ondes datent d'une dizaine d'année [ROY 99]. Roy & al. ont pu mettre en évidence la possibilité de chauffer dans un four micro-ondes multimode différentes poudres métalliques jusqu'à densification totale. Leur réussite peut s'expliquer par la conception de dispositifs de chauffage hybride et d'isolation performante disposés autour de leurs échantillons (Figure 83). En effet, les pièces métalliques (poudres métalliques commerciales, alliages) de quelques cm<sup>3</sup> sont introduites dans un tube en alumine, dans lequel l'atmosphère est contrôlée. Ce tube est isolé par des fibres céramiques, de type mullite, zircone et même yttrine selon la gamme de température. Un suscepteur constitué de 4 barreaux en SiC ou MoSi<sub>2</sub> est placé autour du tube en alumine, dans les fibres isolantes. Ce système permet d'atteindre des températures de l'ordre de 1600°C.

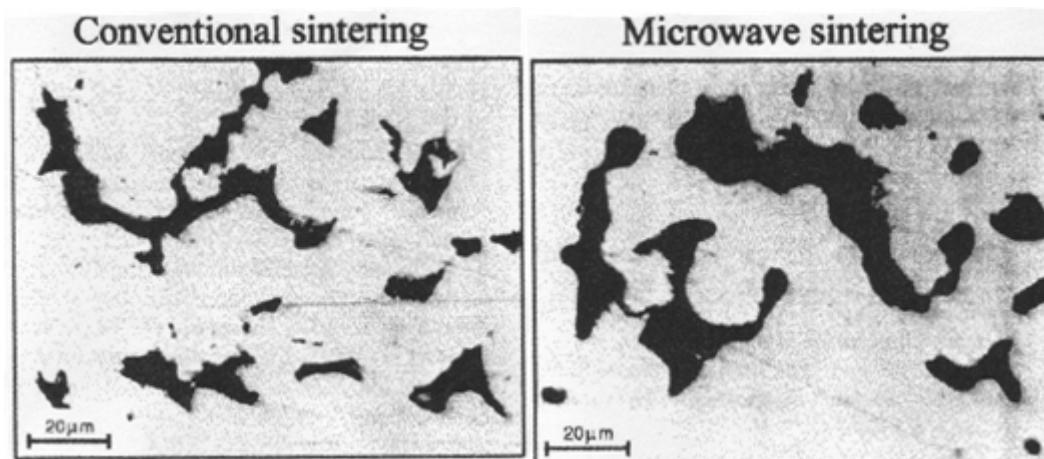
L'un des principaux avantages de ce procédé est de réduire le temps de frittage à moins de 30 minutes, avec les gains en énergie résultants. Les matériaux frittés présentent en général des densités sensiblement plus élevées et surtout une microstructure plus fine conduisant à de meilleures propriétés mécaniques. Ce dernier point est également souligné dans les articles d'Agrawal [AGR 00] et d'Anklekar [ANK 01] qui ont montré que l'amélioration des propriétés mécaniques (dureté, résistance en flexion, ductilité) de

barreaux d'aciers FC208 était due à une microstructure et une distribution des porosités plus homogènes dans les matériaux frittés par micro-ondes pour des cycles thermiques identiques au frittage conventionnel.



**Figure 83 : Schéma du dispositif d'isolation et de chauffage avec suscepteur conçu par Roy & al. pour le frittage par micro-ondes d'échantillons de poudres métalliques compactées [ROY 99]**

D'autre part, la forme des pores, plus arrondis dans les matériaux frittés par micro-ondes (Figure 84), contribuerait à l'augmentation de leur ductilité.



**Figure 84 : Forme des pores dans un échantillon d'acier FC-208 fritté conventionnellement ou par micro-ondes [AGR 00]**

Les mêmes conclusions ont été tirées par Tiwari & al. [TIW 04] dont l'étude portait sur des alliages non ferreux tels qu'un bronze (Cu-Sn) et des alliages base-W.

Concernant le frittage de poudres de nickel, on peut citer les expériences de Saitou [SAI 06]. Les comprimés de nickel ont été chauffés par micro-ondes dans une cavité monomode, à l'aide d'un suscepteur cylindrique en SiC. Le frittage a été réalisé sous

atmosphère neutre ( $N_2$ ), à la vitesse de  $80^\circ C/min$ , pour des températures comprises entre  $900^\circ C$  et  $1300^\circ C$  pendant 60 min. Les résultats de ces expériences montrent que les valeurs d'énergie d'activation ne sont pas très différentes entre le chauffage conventionnel et le chauffage par micro-ondes, ce qui signifie que le mécanisme de frittage prépondérant est identique. En revanche, les cinétiques de densification sont accélérées lors du frittage micro-ondes, ce qui indique une augmentation du facteur pré-exponentiel.

#### IV-II.A.4. DES EFFETS SPECIFIQUES AUX MICRO-ONDES ?

La mise en évidence et l'explication des mécanismes spécifiques au frittage micro-ondes et conduisant à l'amélioration des propriétés mécaniques des métaux par des effets non thermiques du champ électromagnétique n'en sont encore qu'à leurs prémices. Une hypothèse a été donnée par Veltl & al. [VEL 04] qui ont étudié les mécanismes de transport de matière induits par les micro-ondes sur un système de particules sphériques d'acier et de bronze. En plus d'engendrer le chauffage des matériaux métalliques par création de courants induits (courants de Foucault → effet Joule) à la surface des grains, le champ électromagnétique contribuerait par un effet non thermique à une accélération du transport de matière dans la région interparticulaire. En effet, les forts gradients du champ électrique générés entre les particules entraîneraient la formation de plasmas locaux (entre les particules) pulvérisant de très fines particules ( $\sim nm$ ) de métal. Ces particules de métal seraient transportées via le volume du pore, des surfaces convexes des particules vers les zones de contact intergranulaires, dont les énergies de surface sont plus faibles. Pour conforter cette hypothèse, des expériences ont été menées sur des échantillons pré-fissurés et chauffés ensuite par micro-ondes ou conventionnellement ( $1050^\circ C - 15 min$ ). Les résultats des tests de flexion 4 points de ont montrées que le traitement micro-ondes participait à une amélioration significative de la résistance en flexion. Cette augmentation des propriétés mécaniques à basse température est attribuée au mécanisme de transport de matière exposé précédemment qui contribuerait à la diminution des fissures.

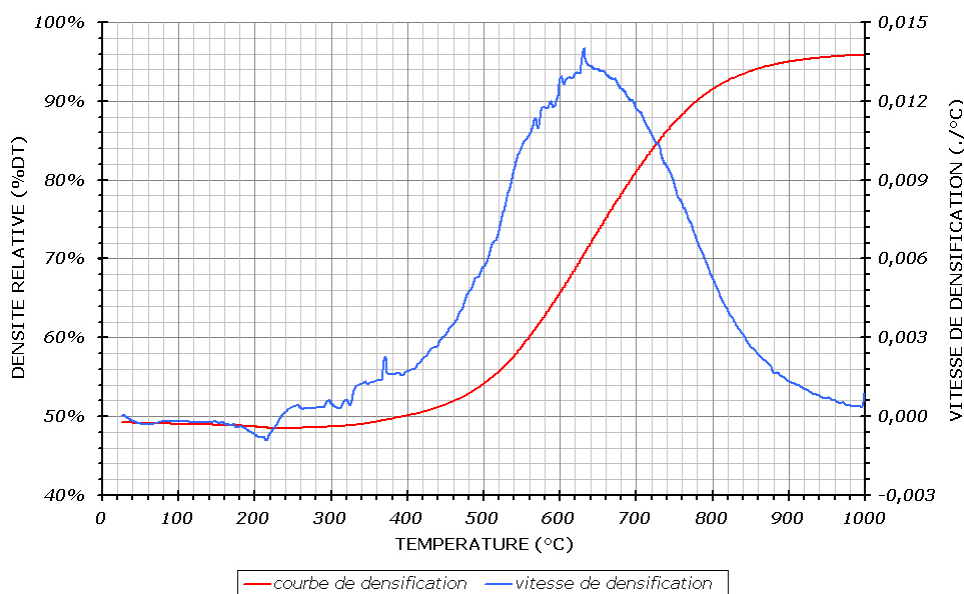
Même si des améliorations significatives des propriétés mécaniques de pièces métalliques frittées par micro-ondes ont pu être mesurées, les connaissances sur le frittage micro-ondes des poudres métalliques et des mécanismes spécifiques associés sont encore bien modestes.

## IV-II.B. FRITTAGE DE COMPRIMES DE NICKEL PUR : RESULTATS

Nous avons testé dans cette partie différentes conditions pour fritter par micro-ondes une poudre commerciale de nickel dans une cavité monomode, sans suscepteur ni matériau isolant. Des comprimés d'environ 2 g de poudre de nickel pur ont été mis en forme par compression en matrice simple effet sous des pressions de 100 MPa ou 600 MPa. Différentes conditions de chauffage ont été testées : sous champ électrique ou magnétique prédominant et avec quatre atmosphères différentes de frittage (air, azote, argon et un mélange d'hélium et de 4%vol d'hydrogène). Lorsque le frittage a été possible, les résultats ont été comparés au frittage conventionnel.

### IV-II.B.1. LE FRITTAGE CONVENTIONNEL

Deux comprimés de nickel (C1 & C2) mis en forme sous une pression de 100 MPa ont été frittés dans un dilatomètre sous atmosphère réductrice He-H<sub>2</sub> (4%vol), à la vitesse de 10°C/min jusqu'à des températures de 800°C (C1) et 1000°C (C2). Les variations de la densité relative et de la vitesse de densification en fonction de la température ont été tracées dans la Figure 85. On constate que la densification du matériau débute à 240°C et que la vitesse de densification est maximale vers 640°C. La densité relative finale est de 92,3% et 95,9% à 800°C et 1000°C respectivement. Le temps total du cycle de frittage est de l'ordre de 2h30min.



**Figure 85 : Variations de la densité relative et de la vitesse de densification en fonction de la température d'un échantillon de nickel chauffé à 10°C/min sous atmosphère réductrice He-H<sub>2</sub> (4%vol)**

#### IV-II.B.2. LE CHAUFFAGE MICRO-ONDES SOUS CHAMP MAGNETIQUE

Pour obtenir un champ magnétique prédominant au centre de la cavité, il faut adopter le mode de résonance  $TE_{104}$ . Pour satisfaire à la condition de résonance dans une cavité parfaite et vide, la distance entre l'iris et le piston doit être de 345 mm (cf. II.A.2.d.). En réalité, lorsqu'on introduit dans notre cavité un échantillon de nickel sur le support en quartz, on trouve par tâtonnements que la distance entre l'iris et le piston à la résonance est plutôt de l'ordre de 330 mm. L'iris a donc été placé à 165 mm du centre de la cavité. La position du piston pour obtenir la résonance était comprise entre 175 mm et 165 mm. La puissance électromagnétique incidente était de 1000 W.

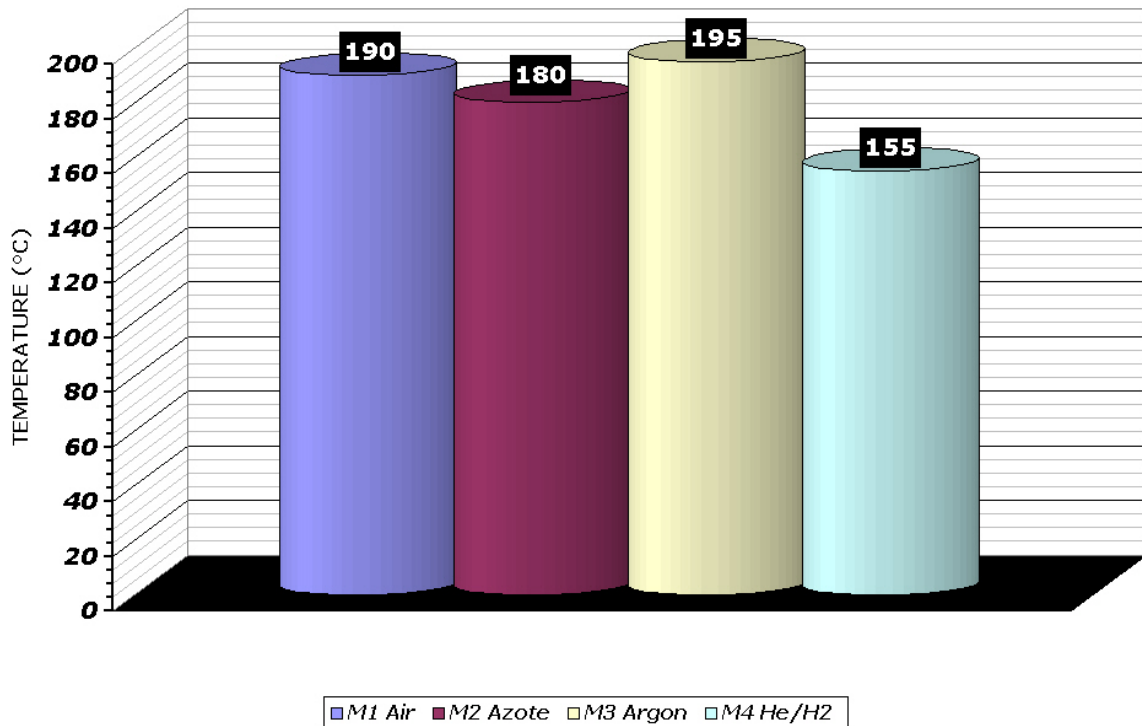
Le Tableau 12 résume les données essentielles concernant les expériences réalisées. La température indiquée dans ce tableau est la température maximale atteinte par chaque échantillon. Cette température, estimée avec la caméra IR en supposant une émissivité de 0,9, est le résultat du calcul de la température moyenne de la surface supérieure des comprimés.

Tableau 12. Données sur les comprimés de nickel frittés sous champ magnétique

Référence	Pression de compaction (MPa)	Atmosphère	Puissance incidente (W)	Température (°C)	Observations
M1	600	Air	1000	190	arcs électriques
M2	600	N <sub>2</sub>	1000	180	arcs électriques
M3	600	Ar	1000	195	arcs électriques
M4	600	He + 4% H <sub>2</sub>	1000	155	arcs électriques

Malgré les propriétés ferromagnétiques du nickel ( $T_{\text{curie}} = 358^{\circ}\text{C}$ , perméabilité relative  $\mu = 600$ ) et la puissance électromagnétique élevée, les comprimés ne chauffent pas significativement sous champ magnétique. La température maximale estimée avec la caméra IR est d'à peine  $200^{\circ}\text{C}$  avec quelques variations selon l'atmosphère de frittage comme l'illustre la Figure 86. Par ailleurs, aucun retrait significatif n'est mesuré : il n'y a pas de densification. De plus, lorsque le piston est approché de la position où la résonance est permise, des crépitements se font entendre dans le guide d'onde et l'iris. Ce phénomène est accompagné d'une augmentation de la température du guide d'onde et de l'iris. On suppose que la majorité de la puissance électromagnétique est dissipée

dans les parois de la cavité (courants de Foucault dissipés par effet Joule) et sous forme d'arcs électriques.



**Figure 86 : Températures\* maximales atteintes par les comprimés de nickel chauffés sous champ magnétique en fonction de l'atmosphère de frittage**

\*Températures moyennes de la surface supérieure estimées avec la caméra IR

### IV-II.B.3. LE CHAUFFAGE MICRO-ONDES SOUS CHAMP ELECTRIQUE

Pour obtenir un champ électrique prédominant au centre de la cavité, il faut adopter le mode de résonance  $TE_{105}$ . Pour satisfaire à la condition de résonance dans une cavité parfaite et vide, la distance entre l'iris et le piston doit être de 432 mm (cf. II.A.2.d.). En réalité, lorsqu'on introduit dans la cavité un échantillon de nickel sur le support en quartz, on trouve par tâtonnements que la distance entre l'iris et le piston à la résonance est plutôt autour de 436 mm. L'iris a donc été placé à 218 mm du centre de la cavité. La position du piston pour obtenir la résonance était comprise entre 222 mm et 218 mm. La puissance électromagnétique incidente était de 1000 W ou 500 W.

Le Tableau 13 regroupe les principales données concernant les expériences réalisées sous champ électrique. Trois valeurs de température sont indiquées dans ce tableau, toutes estimées avec la caméra IR en supposant une émissivité de 0,9 : la température de frittage moyenne calculée sur la surface supérieure des comprimés, ainsi que les températures minimale et maximale de cette même surface.

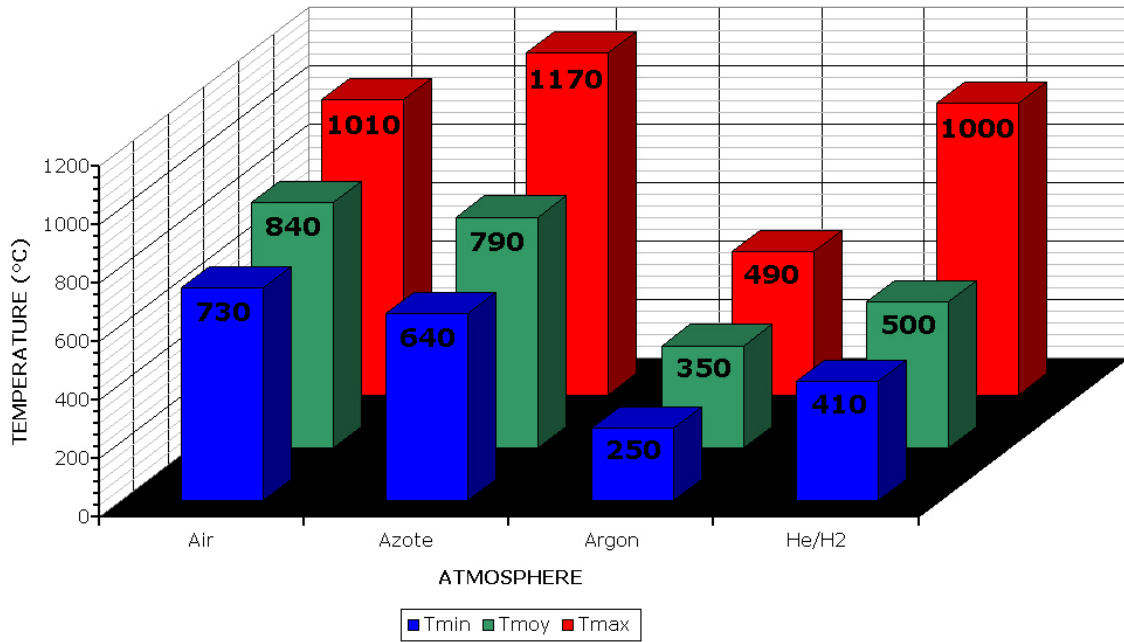


Tableau 13. Données sur les comprimés de nickel frittés sous champ électrique

Référence	Pression de compaction (MPa)	Atmosphère	Puissance incidente (W)	Observations	Température maximale atteinte (°C)	Densité finale (%TD)
E1	600	Air	1000	arcs électriques + plasma	840 730-1010	92.1
E2	600	N <sub>2</sub>	1000	plasma	790 640-1170	92.3
E3	600	Ar	1000	plasma	350 250-490	63
E4	600	He + 4% H <sub>2</sub>	1000	plasma	500 410-1000	98.4
E5	100	He + 4% H <sub>2</sub>	1000	plasma	600 370-990	97.4
E6	100	He + 4% H <sub>2</sub>	500	plasma	540 450-710	96.3

Pour tous les essais, un plasma a été observé alors que la température était seulement de l'ordre de 100°C. La présence de plasma conduit à des mesures de températures avec la caméra IR très hétérogènes sur la surface des échantillons, comme le montre la Figure 87.

Deux raisons peuvent expliquer ces distributions de températures hétérogènes: premièrement, le plasma étant une source de chaleur, il peut fausser l'estimation de la température de surface lorsqu'il apparaît entre la surface supérieure de l'échantillon et la caméra ; deuxièmement, le plasma peut être local et donc causer de réelles différences de température à la surface de l'échantillon, voire même la fusion locale du matériau. Dans ce cas, le changement d'état du métal peut complètement fausser l'estimation de la température car l'émissivité du matériau à l'état liquide est totalement différente de celle à l'état solide. Par exemple, lors du frittage sous hélium hydrogéné, la température minimale estimée sur la surface est de 410°C (Figure 87). Or, du nickel liquide (zone de fusion partielle) a été observé sur cette surface, donc cette température était de toute évidence supérieure à 1450°C, au moins localement. C'est pourquoi nous ne parlerons pas de température de frittage dans la discussion de ces résultats.



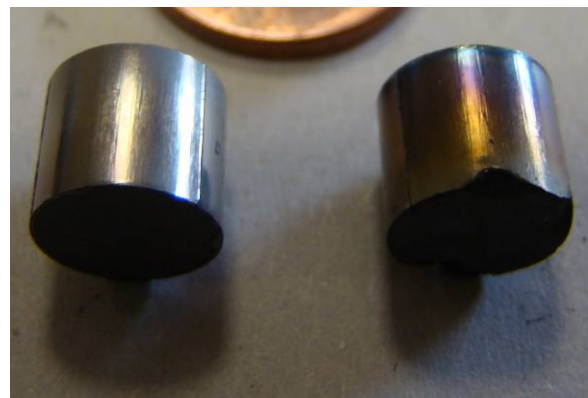
**Figure 87 : Températures\* atteintes par les comprimés de nickel chauffés sous champ électrique en fonction de l'atmosphère de frittage**

*\*Températures minimales, moyennes et maximales de la surface supérieure estimées avec la caméra IR*

Sous argon, la densité finale demeure autour de 63% donc le comprimé de nickel ne densifie pas. On suppose que le plasma généré n'est pas assez énergétique ou pas assez proche de la surface de l'échantillon pour permettre un transfert d'énergie suffisant pour fritter la poudre de nickel. Néanmoins, on peut noter que la surface de l'échantillon a changé d'aspect et de couleur. En effet, cette surface, à l'origine gris-clair, a localement noirci, là où le plasma a été observé (Figure 88). Quant à la surface latérale du comprimé, elle est devenue irisée (Figure 89).

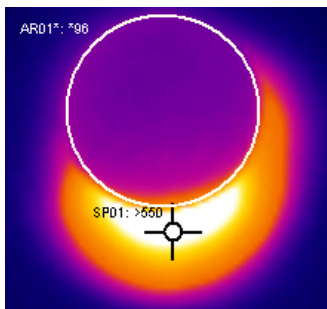


**Figure 88 : Photographie du comprimé de nickel (E3) après chauffage sous argon. Surface supérieure localement noircie sous l'effet du plasma.**



**Figure 89 : Photographie de comprimés de nickel en cru (gauche) et après chauffage sous argon (droite) (E3). Surface latérale irisée après chauffage.**

Sous air et sous azote, les comprimés de nickel atteignent une densité d'environ 92%. La couleur de leur surface devient verte. Un plasma, formé localement près de l'arête inférieure des comprimés, a altéré leur état de surface (Figure 90). En plus, sous air, des arcs électriques ont endommagé très localement (points) la surface supérieure de l'échantillon (Figure 91).

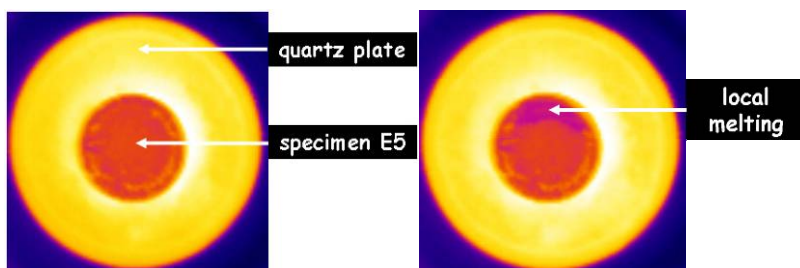


**Figure 90 : Image de la caméra IR illustrant la présence d'un plasma près de la base de l'échantillon E1.**

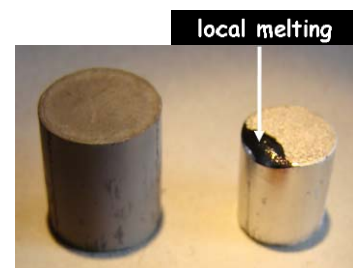


**Figure 91 : Photographie du comprimé de nickel fritté sous air (E1). Changement de couleur après frittage (gris → vert). Altérations de la surface causées par des plasmas et des arcs.**

Enfin, une densité relative finale supérieure à 96% a été atteinte pour les trois essais réalisés sous hélium hydrogéné à 4%vol. La densification presque totale obtenue en quelques minutes est attribuée à chaque fois à un plasma qui s'est formé juste au-dessus de la surface supérieure des comprimés. Une fusion partielle de la surface supérieure a été observée (Figure 92 & Figure 93) lorsque la puissance incidente était de 1000 W (E4 & E5). La fusion a pu être évitée avec le comprimé E6 en réduisant la puissance de 1000 W à 500 W. Au final, la densité de l'échantillon E6 était supérieure à 96,3% malgré la réduction de la puissance. En raison de l'atmosphère de frittage réductrice, les échantillons présentent tous un éclat métallique (Figure 93).



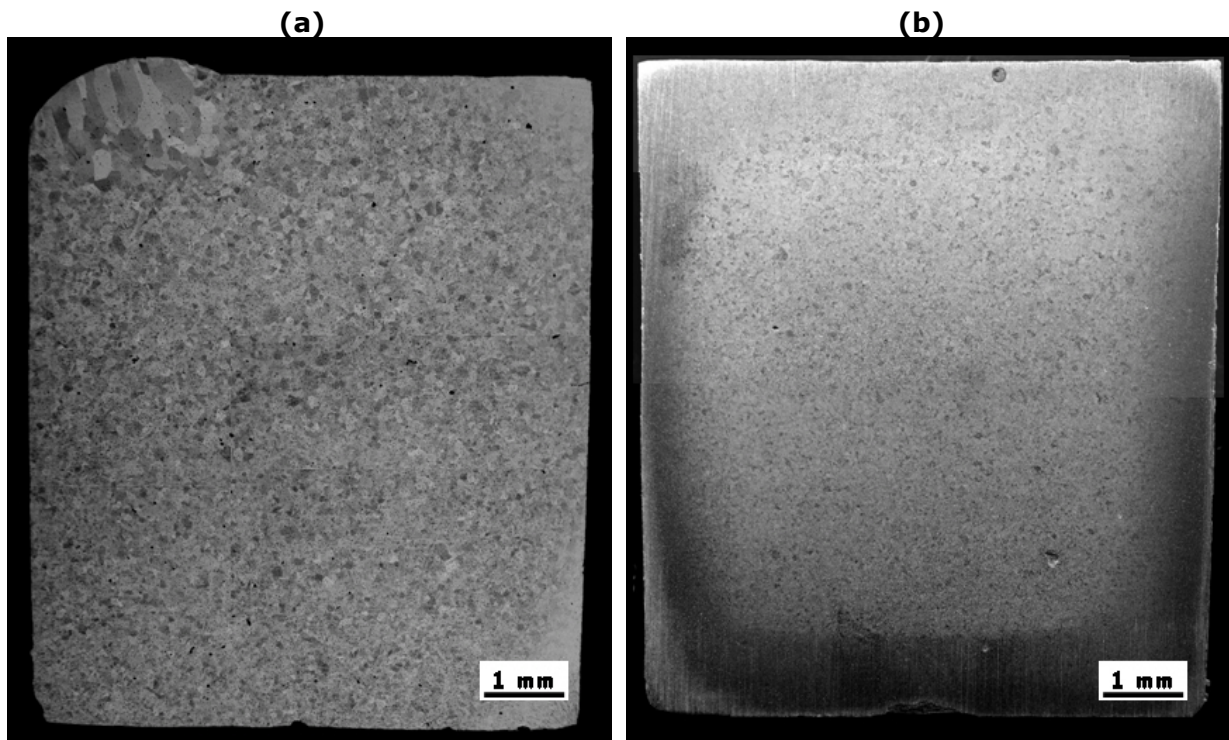
**Figure 92. Image de la caméra IR montrant la surface supérieure de l'échantillon E5 avant (à gauche) et après (à droite) fusion locale et partielle due à la formation d'un plasma**



**Figure 93. Photographie de l'échantillon E5 en cru (à gauche) et après frittage micro-ondes (à droite)**

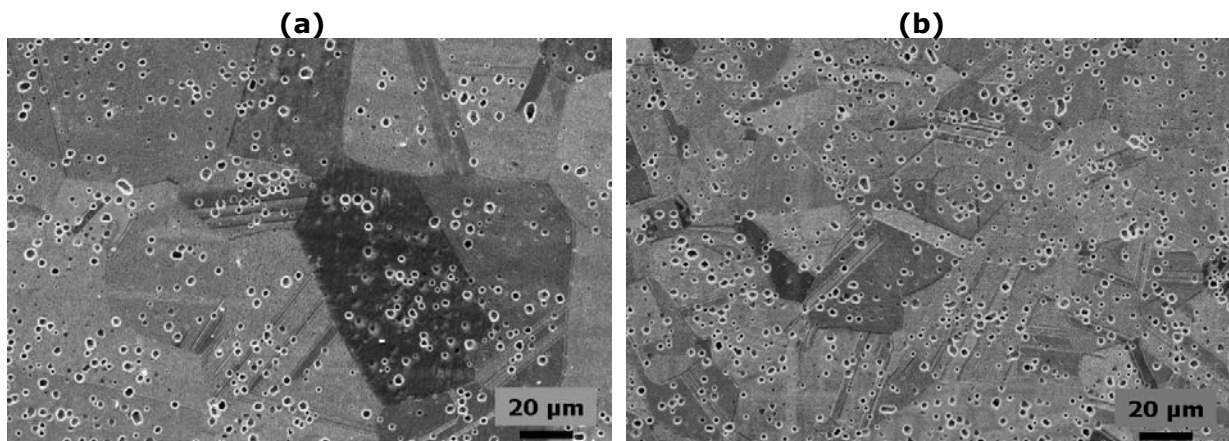
#### IV-II.B.4. OBSERVATIONS MICROSTRUCTURALES

Les microstructures des échantillons E5 et E6 ont été observées au MEB et comparées à la microstructure de l'échantillon C2 fritté conventionnellement à 1000°C (10°C/min). Tout d'abord, on peut noter que la microstructure de l'échantillon E5 (Figure 94.a), qui a été chauffé à plus haute température (fusion locale → surface bombée), semble beaucoup moins fine et homogène que celle de l'échantillon E6 (Figure 94.b). En particulier, la microstructure de l'échantillon E5 révèle de gros grains allongés ou colonnaires en haut à gauche de la micrographie. Ces grains témoignent de structure de solidification : ils se sont formés lors du refroidissement et de la solidification de la région supérieure fondue localement par le plasma.



**Figure 94 : Micrographie MEB – Vue d'ensemble de la microstructure  
(a) échantillon E5 (1000 W) - (b) échantillon E6 (500 W)**

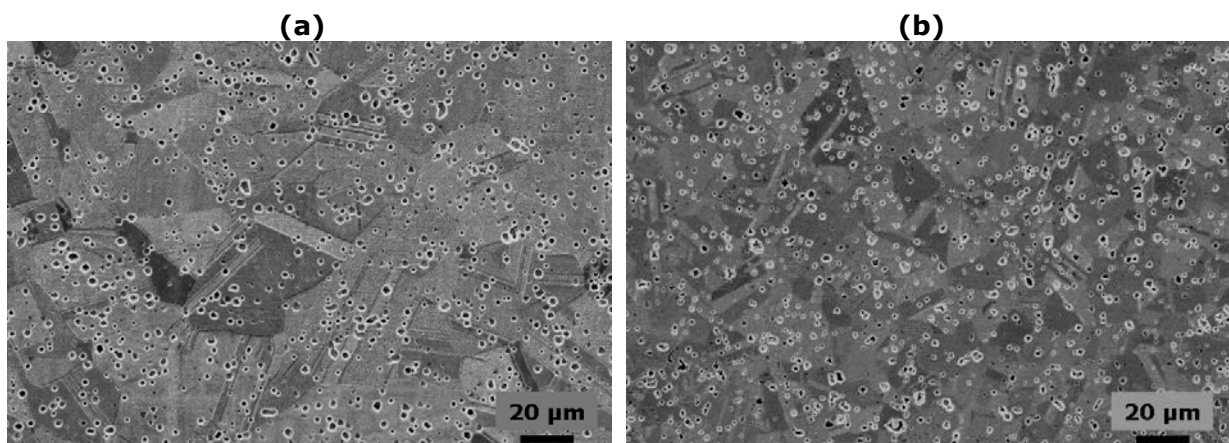
Dans la Figure 95, des observations à plus fort grandissement permettent de révéler plus précisément la microstructure des échantillons E5 et E6.



**Figure 95 : Micrographie MEB de la région centrale des échantillons  
(a) E5 (1000 W) - (b) E6 (500 W)**

Les grains sont très maclés et leur taille peut être estimée à  $\sim 50-100 \mu\text{m}$  pour E5 (1000 W) et  $\sim 20-50 \mu\text{m}$  pour E6 (500 W). Ce résultat est conforme à ce que nous pouvions attendre : la croissance des grains a été plus importante pour l'échantillon E5 fritté à plus haute température.

La Figure 96 compare la microstructure de l'échantillon E6 avec celle de l'échantillon C2 fritté conventionnellement à la vitesse de  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  jusqu'à  $1000^\circ\text{C}$ . Ces deux échantillons ont une densité de  $\sim 96\%$ .



**Figure 96 : Micrographie MEB de la région centrale des échantillons  
(a) E6 (500 W) - (b) C2 ( $10^\circ\text{C}/\text{min}$ - $1000^\circ\text{C}$ )**

La taille des grains est plus petite pour l'échantillon fritté conventionnellement,  $\sim 10-20 \mu\text{m}$  contre  $\sim 20-50 \mu\text{m}$ , malgré une vitesse de chauffage plus lente. Ce résultat montre qu'en dépit d'une vitesse de chauffage très rapide, le frittage micro-ondes assisté d'un plasma n'a pas généré dans ce cas une microstructure plus fine à densité équivalente. Pour affiner la taille des grains des matériaux frittés dans le four micro-ondes, on peut envisager de diminuer encore la puissance électromagnétique incidente afin de réduire l'énergie transférée à l'échantillon par le plasma ou de diminuer le temps de frittage.

Toutefois l'absence de contrôle de la température et de suivi du retrait de l'échantillon nécessite la réalisation de nombreux essais avant de trouver les conditions adéquats de frittage pour atteindre la densité ou la microstructure souhaitée.

#### IV-II.C. CONCLUSIONS

Les tentatives de chauffage direct par micro-ondes d'une poudre métallique de nickel ont révélé des résultats surprenants. Dans les conditions expérimentales exposées, le nickel n'a pas pu être chauffé sans formation de plasma, directement par le champ magnétique ou électrique à une température suffisante pour fritter. En revanche, sous une atmosphère réductrice (He/H<sub>2</sub> (4%mol)), des échantillons de nickel ont pu être chauffés très rapidement jusqu'à des températures très élevées ( $> T_{fus}$ ), grâce à la présence d'un plasma. Ce plasma se forme au-dessus de la surface supérieure de l'échantillon et peut transférer suffisamment d'énergie à l'échantillon pour permettre son frittage, voire provoquer sa fusion. En adaptant la puissance électromagnétique, il a été possible de fritter sans fusion et en quelques minutes un échantillon de 2 g de nickel à près de 96% de densité mais cependant avec une microstructure plus grossière qu'un échantillon fritté conventionnellement en 2h30min.

Bien que ces résultats de frittage sous un plasma généré par le champ électrique soient encourageants, les difficultés liées à la mesure de la température avec la caméra IR et au suivi du retrait rendent difficile la mise au point des conditions de frittage optimales (puissance électromagnétique, nature du gaz, pression du gaz, positionnement de l'échantillon...). D'autant plus qu'on peut supposer que ces conditions vont changer avec de nombreux paramètres tels que la nature du matériau, la granulométrie de la poudre, la géométrie des pièces, la densité à vert, etc. Le problème de la mesure de la température devra être résolu avec un pyromètre qui permettra par une visée latérale d'estimer la température de la surface latérale de l'échantillon sans être gêné par le plasma [TWO 09].

Les connaissances sur l'efficacité des mécanismes de chauffage des poudres métalliques dans une cavité micro-ondes monomode et sans suscepteur, n'en sont encore qu'à leurs débuts. Cette étude préliminaire du chauffage micro-ondes d'une poudre métallique fine de nickel permet de dégager des futurs axes de recherche. Premièrement, la maîtrise de la formation des plasmas dans la cavité semble un point important à régler : il faudrait trouver les moyens selon le cas soit d'éviter la formation de plasmas, soit de maîtriser leur formation. Par ailleurs, le choix d'un matériau avec une température de Curie plus élevée devrait améliorer la compréhension des mécanismes de chauffage sous champ magnétique à hautes températures. Le cobalt constituerait par exemple un bon candidat

puisque sa température de Curie est d'environ 1100°C. Puis, il faudrait également étudier l'influence de la granulométrie de la poudre et de la densité du comprimé à vert : ces deux paramètres vont jouer sur la profondeur de pénétration du champ électromagnétique non seulement dans les grains mais aussi dans la pièce en cru. Or, de cette profondeur de pénétration résulte le chauffage volumique. Enfin, on sait que la profondeur de pénétration des micro-ondes dans les métaux est de l'ordre du micron si bien que l'on peut se demander ce qu'il advient du chauffage micro-ondes lors de l'évolution de la microstructure du matériau fritté (réduction de la porosité, croissance des grains).

## CONCLUSION GENERALE

La première partie de cette étude a été consacrée à la conception d'une cavité micro-ondes monomode et résonante offrant de multiples possibilités de chauffage. Cette cavité a été conçue et développée pour fritter des échantillons dans différentes configurations :

- sous champ électrique ou magnétique prépondérant,
- sous atmosphère contrôlée (oxydante, neutre ou réductrice),
- avec suscepteur (chauffage indirect ou hybride) ou sans suscepteur (chauffage direct) en ayant la possibilité de retirer ou d'introduire le suscepteur au cours d'un essai.

Cette cavité a été instrumentée afin de mesurer, de suivre et de piloter en cours d'expérience les puissances électromagnétiques, la position du piston court-circuit et les températures de l'échantillon et du suscepteur (caméra IR).

Parallèlement, les résultats de la modélisation numérique du frittage micro-ondes dans une cavité monomode ont apporté des informations quant à l'influence de paramètres tels que les propriétés diélectriques des matériaux (échantillon, suscepteur et support), la géométrie et l'isolation de l'échantillon et du suscepteur sur la distribution du champ électromagnétique et de la température. Ces simulations ont fait évoluer de manière significative et bénéfique notre perception de la distribution du champ électromagnétique dans notre cavité avec ou sans matériaux (échantillons, suscepteur, support).

L'accumulation des expériences sur des échantillons de zircone yttrée et des résultats de la modélisation numérique du chauffage micro-ondes ont conduit à une meilleure compréhension et une analyse plus pertinente des relations entre les variations de la puissance électromagnétique dans la cavité, l'évolution des propriétés du matériau et la vitesse de chauffage. Cette démarche a abouti à la mise au point d'un protocole original de maîtrise de la vitesse de chauffage, et donc d'un cycle de frittage, par ajustement de la position du piston court-circuit à puissance incidente constante et à position d'iris fixe.

Ce protocole de chauffage a été mis en œuvre pour réaliser une étude comparative entre le frittage micro-ondes et le frittage conventionnel d'une poudre céramique à une vitesse de chauffage constante (25°C/min).

Du point de vue du procédé de chauffage par micro-ondes, les résultats de l'étude menée sur la poudre de zircone yttrée (2Y-TZP) ont démontré la possibilité de maîtriser une vitesse de chauffage constante aussi bien en frittage micro-ondes direct qu'en frittage micro-ondes avec suscepteur, en dépit du changement rapide des propriétés



diélectriques de la zircone avec la température. Ensuite, il a été clairement mis en évidence, analysé et justifié que le chauffage micro-ondes avec un suscepteur cylindrique en SiC conduisait à un chauffage hybride de l'échantillon de zircone yttrée ; le champ électrique au niveau de l'échantillon n'est pas totalement écranté par le suscepteur.

La comparaison à l'échelle macroscopique (densité) des matériaux frittés a montré que, pour atteindre une même densité, la température de frittage des échantillons était inférieure lors du frittage par micro-ondes. Cette différence est de l'ordre de 100°C jusqu'à 90% de densité et atteint même près de 300°C vers 95%. Pour interpréter cette accélération des cinétiques de densification à plus basse température, nous avons suggéré que le champ électromagnétique avait un effet favorable sur la réaction d'interface qui gouvernerait la cinétique de densification au début du frittage quand la taille de grains est encore nanométrique.

Du point de vue de la microstructure, il semble que l'évolution de la taille des grains ne dépende à première vue que de la température de frittage indépendamment du mode de chauffage, de la vitesse de chauffage ou du temps de frittage. Cependant, l'analyse des trajectoires de frittage (taille de grains en fonction de la densité) laisse supposer l'existence d'interactions plus subtiles selon le mode de chauffage entre la croissance des grains, la séparation de phase de la zircone et la densification du matériau ; le champ électrique pourrait ralentir les deux premiers mécanismes sans bloquer la densification.

Finalement, la synthèse des résultats des évolutions de la densité et de la microstructure avec la température de frittage permet de dire que :

- pour une même température de frittage et une même vitesse de chauffage, les matériaux frittés par micro-ondes sont plus denses avec une taille de grains similaire à ceux frittés par chauffage conventionnel ;
- pour atteindre une densité identique, les matériaux frittés par micro-ondes nécessitent une température de frittage très inférieure (d'au moins 100°C) à celle du chauffage conventionnel, ce qui engendre également des matériaux avec une microstructure plus fine que ceux frittés conventionnellement.

Les premières tentatives de chauffage direct par micro-ondes d'une poudre fine de nickel ont conduit à des résultats inattendus. Sous champ magnétique dominant, les échantillons de poudre de nickel n'ont pas pu être chauffés à une température suffisante pour fritter par couplage direct avec les microondes. En revanche, sous champ électrique et dans certaines conditions, la formation d'un plasma localisé au-dessus de la surface supérieure de l'échantillon provoque un transfert très rapide de l'énergie électromagnétique en énergie thermique vers l'échantillon. Il devient alors possible

d'atteindre des températures très élevées en quelques secondes ou quelques minutes et par conséquent de fritter le nickel, par un procédé qu'il serait plus raisonnable d'appeler frittage sous plasma induit par les micro-ondes. Ce résultat étonnant doit encourager la poursuite des études du frittage micro-ondes des poudres métalliques, que ce soit avec ou sans plasma.

Bien que des améliorations dans le domaine de l'instrumentation et de l'automatisation de cycles de frittage soient encore réalisables, les expériences de cette étude ont permis de mettre en évidence les capacités et les possibilités de chauffage envisageables dans ce type de four micro-ondes. Grâce à son caractère rapide, le frittage micro-ondes apparaît particulièrement bien adapté pour ralentir certaines transformations microstructurales non souhaitées comme la croissance granulaire. D'autre part, grâce à la possibilité d'utiliser le champ électrique ou magnétique selon la classe des matériaux, il peut permettre d'opérer des phases de chauffage sélectif. L'application à l'élaboration de multimatériaux devrait permettre de lever certains verrous, en combinant les effets de chauffage rapide et de couplage spécifique localisé à l'échelle macroscopique (constituants d'un multimatériau) et microscopique (phases d'un matériau composite). Dans un futur proche, d'autres matériaux avec différentes géométries d'échantillons pourront être testés, un des objectifs étant l'élaboration de multimatériaux de type cermet Ni/ZrO<sub>2</sub> dont des applications sont les piles à combustible, les barrières thermiques des aubes de turbines, etc.

Pour des applications industrielles, l'utilisation de fours micro-ondes multimodes s'imposera certainement car la cavité est généralement plus spacieuse. Cependant, dans ce type de cavité, la distribution du champ électromagnétique est plus complexe à prévoir si bien que le positionnement des pièces et la maîtrise de l'homogénéité de température dans des grosses pièces pourraient s'avérer plus critique. En parallèle, des efforts devront être faits dans le domaine de la modélisation numérique du frittage micro-ondes, notamment dans la détermination des paramètres d'entrée (propriétés diélectriques des matériaux), afin de rendre les simulations plus réalistes et de continuer à nous aider dans la compréhension des interactions entre les matériaux et le champ électromagnétique aussi bien dans les cavités monomode que multimode.



## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[AGR 00] D. Agrawal, Microwave sintering of metallic materials, Proceedings of 2000 Powder Metallurgy World Congress, Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, pp. 797-800 (2000)

[ANK 01] R.M. Anklekar, D.K. Agrawal and R. Roy, Microwave sintering and mechanical properties of PM copper steel, Powder Metal., 44 [4], pp. 355-362 (2001).

[BAT 95] J. Batt, J.G.P. Binner, T.E. Cross, N.R. Greenacre, M.G. Hamlyn, R.M. Hutcheon, W.H. Sutton and C.M. Weil, A Parallel Measurement Programme in High Temperature Dielectric Property Measurements : An Update, Ceramic Trans, American Ceramic Society n°59, 243-250 (1995).

[BER 93] D. Bernache-Assolant, M. Soustelle, C. Monty et al., Chimie Physique du frittage, Hermès, Paris (1993).

[BER 07] G. Bernard-Granger and C. Guizard, Apparent Activation Energy for the Densification of a Commercially Available Granulated Zirconia Powder, J. Am. Ceram. Soc., 90 [4], pp. 1246-1250 (2007).

[BIN 08] J. Binner, K. Annapoorani, A. Paul, I. Santacruz and B. Vaidhyanathan, Dense Nanostructured Zirconia by Two Stage Conventional/Hybrid Microwave Sintering, Journal of European Ceramic Society, 28, pp. 973-977 (2008).

[BOU 02] D. Bouvard et coll., Métallurgie des poudres, Ed. Hermès Science Publications (2002).

[BOU 10] D. Bouvard, S. Charmond and C.P. Carry, Finite Element Modelling of Microwave Sintering, Ceram. Trans., Vol. 209, pp. 173-180 (2010).

[BRA 92] J.R. Brandon, J. Samuels and W.R. Hodgkins, Microwave sintering of oxide ceramics, Microwave processings of materials III, Materials Research Society Proceedings, pp. 237-243 (1992).

[BRE 97] J.M. Brebec, Ondes, Hachette, Paris (1997).

[CHA 10] S. Charmond, C.P. Carry, D. Bouvard, Densification and microstructure evolution of Y-Tetragonal Zirconia Polycrystal powder during direct and hybrid microwave sintering in a single-mode cavity, *J. Eur. Ceram. Soc.*, Vol. 30, pp. 1211-1221, (2010).

[CHE 00] I. Chen and X.-H. Wang, Sintering dense nanocrystalline ceramics without final-stage grain growth, *Nature*, Vol. 404, pp. 168-171 (2000).

[CHE 01] J. Cheng, R. Roy and D. Agrawal, Experimental Proof of Major Role of Magnetic Field Losses in Microwave Heating of Metal and Metallic Composites, *Journal of Materials Science Letters* 20, pp. 1561-1563 (2001).

[CHE 02] J. Cheng, R. Roy and D. Agrawal, Radically Different Effects on Materials by Separated Microwave Electric and Magnetic Fields, *Mat. Res. Innovat.* 5, pp. 170-177 (2002).

[CLA 96] D.E. Clark and W.H. Sutton, Microwave Processing of Materials, *Annu. Rev. Mater. Sci.*, 26, pp. 299-331 (1996).

[COL 79] Ph. Colomban et J.C. Badot, Le chauffage par micro-ondes : méthode de cuisson des céramiques en 1990!, *L'INDUSTRIE CERAMIQUE*, n°275 (1979).

[COM 96] P.F. Combes, *Micro-ondes : 1. Lignes, guides et cavités*, Ed. Dunod, Paris, 1996.

[ERA 96] Société Eramet, *Métallurgie du Nickel M 2-250*, traité Matériaux métalliques, Techniques de l'Ingénieur, Editions T.I. (04/1996).

[FLI 00] A.W. Fliflet, R.W. Bruce, D. Lewis and al., A study of millimeter-wave sintering of fine-grained alumina compacts, *Plasma Science, IEEE Trans.* 28 [3], pp. 924-935 (2002).

[FLI 04] FLIR Systems™, Manuel d'utilisation de la caméra ThermoVision™ A40 M (2004).

[GAR 87] F. Gardiol, *Electromagnétisme & Hyperfréquences*, Traité d'Electronique et d'Electrotechnique, J. Neiryneck, Dunod, Paris (1987).

[GAU 99] G. Gaussorgues, *La thermographie infrarouge : principes, technologies, applications*, Ed. Tec & doc., 4<sup>ème</sup> Edition (1999).

- [GER 85] R.M. German, *Liquid Phase Sintering*, Plenum Press, New-York (1985).
- [GER 96] R.M. German, *Sintering Theory and Practice*, John Wiley & Sons, New-York (1996).
- [GIL 88] S.L. McGill, J.W. Walkiewicz and G.A. Smyres, *The Effects of Power Level on the Microwave Heating of Selected Chemicals and Minerals*, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 124*, pp. 247-252 (1988).
- [GOL 99] A. Goldstein, N. Travitzky, A. Singurindy and M. Kravchik, *Direct Microwave Sintering of Ytria-Stabilized Zirconia at 2.45 GHz*, *Journal of the European Ceramic Society* 19, pp. 2067-2072 (1999).
- [HAU 95] J-M Haussonne, C. Carry, P. Bowen and J. Barton, *Traité des Matériaux 16 – Céramiques et Verres*, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes (2005).
- [HEL 01] M. Helier, *Techniques micro-ondes : structures de guidage, dispositifs et tubes micro-ondes*, Ellipses Editions (2001).
- [HUT 92a] R.M. Hutcheon, M.S. De Jong and F.P. Adams, *A System for Rapid Measurements of RF and Microwave Properties up to 1400°C*, *J. Microwave Power and Electromagnetic Energy*, Vol. 27, N°2, pp. 87-103 (1992).
- [HUT 92b] R.M. Hutcheon, M.S. De Jong, F.P. Adams, P.G. Lucuta, J.E. McGregor and L. Bahan, *RF and Microwave Dielectric Measurements to 1400°C and Dielectric Loss Mechanisms*, in *Microwave Processings of Materials III*, Ed., R.L. Beatty, W.H. Sutton and M.F. Iskander, *MRS Symposium Proceedings*, Vol. 269, N°2, pp. 541-551 (1992).
- [IKU 95] Y. Ikuma, *Temperature Profile during Microwave Sintering of Ceramics*, *Key Engineering Materials Vols. 111-112*, pp. 341-360 (1995).
- [JAN 88] M.A. Janney and H.D. Kimrey, *Microwave Sintering of Alumina at 28 GHz*, *Conference on Ceramic Powder Processing*, Orlando (1988).
- [JAN 92] M.A. Janney, C.L. Calhoun and H.D. Kimrey, *Microwave Sintering of Oxide Fuel Cell Materials : I, Zirconia-8 mol% Ytria*, *J. Am. Ceram. Soc.*, 75 [2], pp. 341-346 (1992).

[KAT 92] J.D. Katz, Microwave Sintering of Ceramics, Annu. Rev. Mater. Sci., Vol. 22, pp. 153-170 (1992).

[LAS 00] J. Lasri, P.D. Ramesh and L. Schächter, Energy Conversion during Microwave Sintering of a Multiphase Ceramic Surrounded by a Susceptor, J. Am. Ceram. Soc., 83 [6], pp. 1465-68 (2000).

[MAR 06] S. Marinel, Aspects fondamentaux et pratiques du frittage micro-ondes, Congrès Matériaux 2006, Dijon - France (2006).

[MAT 08] K. Matsui, Grain-boundary structure and microstructure development mechanism in 2–8mol% yttria-stabilized zirconia polycrystals, Acta Materialia, 56 [6], pp. 1315-1325 (2008).

[MAT 09] K. Matsui, H. Yoshida and Y. Ikuhara, Isothermal Sintering Effects on Phase Separation and Grain Growth in Yttria-Stabilized Tetragonal Zirconia Polycrystal, J. Am. Ceram. Soc., 92 [2], pp. 467-475 (2009).

[MAZ 08] M. Mazaheri, A.M. Zahedi and M.M. Hejazi, Processing of nanocrystalline 8 mol% yttria-stabilized zirconia by conventional, microwave-assisted and two-step sintering, Materials Science and Engineering A492, pp. 261-267 (2008).

[MIY 97] S. Miyake, Y. Setsuhara, S. Kinoshita, S. Sano, M. Kamai, T. Ohmae and N. Abe, Microwave: Theory and Application in Materials Processing IV, Am. Ceram. Soc. , p. 313 (1997).

[MET 88] A.C. Metaxas and R.J. Meredith, Industrial Microwave Heating, London: Peregrinus, pp. 357 (1988).

[MOU 08] G. Moulin, J. Favergeon et G. Béranger, Zircone - céramique fonctionnelle N 3 210, Techniques de l'Ingénieur, Editions T.I. (10/2008).

[NEW91] R.E. Newnham, S.J. Jang, M. Xu and F. Jones, Fundamental interaction mechanisms between microwaves and matter, Ceramic Trans, American Ceramic Society n°21, pp. 51-67 (1991).

[NIG 96] S.A. Nightingale, D.P. Dunne and H.K. Worner, Sintering and Grain Growth of 3 mol% Ytria Zirconia in a Microwave Field, *Journal of Materials Science* 31, pp. 5039-5043 (1996).

[NIG 97] S.A. Nightingale, H.K. Worner and D.P. Dunne, Microstructural Development during the Microwave Sintering of Ytria-Zirconia Ceramics, *J. Am. Ceram. Soc.*, 80 [2], pp. 394-400 (1997).

[OIS 83] Y. Oishi, K. Ando and Y. Sakka, Lattice and Grain-Boundary Diffusion Coefficients of Cations in Stabilized Zirconia, *Advances in Ceramics* 7, pp. 208-219 (1983).

[OND 98] H.M. Ondik and H.F. McMurdie, *Phase Diagrams for Zirconium and Zirconia Systems*, The American Ceramic Society, pp. 10-35 (1998).

[PEE 99] D.R. Peelamedu, D. Brandon and L. Schächter, Use of Partially Oxidised SiC Particulate Bed for Microwave Sintering of Low Loss Ceramics, *Materials Science and Engineering A266*, pp. 211-220 (1999).

[PER 01] E. Pert, Y. Carmel, A. Birnboim, T. Olorunyolemi, D. Gershon, J. Calame, I.K. Lloyd and O.C. Wilson Jr, Temperature Measurements during Microwave Processings : The Significance of Thermocouple Effects, *J. Am. Ceram. Soc.*, 84 [9], pp. 1981-1986 (2001).

[PET 99] G. Petzow, V. Carle and U. Harnisch, *Metallographic Etching*, 2<sup>nd</sup> Edition, ASM International (1999).

[PIL 93] P. Piluso, *Etude du frittage réactif de la mullite et du titanate d'aluminium par chauffage micro-ondes*, Thèse de l'Université Paris VI (1993).

[RAH 95] M.N. Rahaman, *Ceramic processing and sintering*, Marcel Dekker Inc., New-York (1995).

[ROY 99] R. Roy, D. Agrawal, J. Cheng and S. Gedevisanishvili, Full Sintering of Powdered-Metal Bodies in a Microwave Field, *Nature*, Vol. 399, pp. 668-670 (1999).

[SAI 06] K. Saitou, Microwave Sintering of Iron, Cobalt, Nickel, Copper and Stainless Steel Powders, *Scripta Materialia* 54, pp. 875-879 (2006).



[SAN 00] S. Sano, Y. Makino, S. Miyake, Yu.V. Bykov, A.G. Eremeev and S.V. Egorov, 30 and 83 GHz Millimeter-Wave Sintering of Alumina, *Journal of Materials Science Letters* 19, pp. 2247-2250 (2000).

[SMA 97] L. Smart and E. Moore, *Introduction à la chimie du solide*, MASSON, p.149 (1997).

[STO 91] T. Stoto, M. Nauer and C. Carry, Influence of Residual Impurities on Phase partitioning and Grain Growth Processes of Y-TZP Materials, *J. Am. Ceram. Soc.*, 74 [10], pp. 2615-2621 (1991).

[SUT 89] W.H. Sutton, *Microwave Processing of Ceramic Materials*, *Ceramic Bulletin*, 68 [2], pp. 376-386 (1989).

[THO 99] E.T. Thostenson and T.-W. Chou, *Microwave processing: fundamentals and applications*, *Composites: Part A* 30, pp. 1055-1071 (1999).

[TIA 91] Y.-L. Tian, *Practices of Ultra-rapid Sintering of Ceramics using Single-mode Applicators*, *Ceramic Trans*, American Ceramic Society n°21, pp. 283-300 (1991).

[TIW 04] S.K. Tiwari, U. Ravikiran and A. Upadhyaya, *Microwave Sintering of Non-Ferrous Alloys*, *European Powder Metallurgy Conference (EURO PM2004 - Vienna, Austria)*, pp. 146-151 (2004).

[TWO 09] B. Twomey, A. Breen, G. Byrne and al., *Comparison of thermal and microwave-assisted plasma sintering of nickel-diamond composites*, *European Powder Metallurgy Conference (EURO PM2009 - Copenhagen, Denmark)*, pp. xxx-xxx (2009).

[UPA 01] D.D. Upadhyaya, A. Ghosh, K.R. Gurumurthy and R. Prasad, *Microwave Sintering of Cubic Zirconia*, *Ceramics International*, 27, pp. 415-418 (2001).

[VAU 07] S. Vaucher, P. Unifantowicz, C. Richard and al., *On-line tools for microscopic and macroscopic monitoring of microwave processing*, *Physica B* 398, pp. 191-195 (2007).

[VEL 04] G. Veltl, F. Petzoldt and P.A. Pueschner, Effects of Microwaves on Sintering Processes, European Powder Metallurgy Conference (EURO PM2004 - Vienna, Austria), pp. 106-111 (2004).

[WAN 06] J. Wang, J. Binner, B. Vaidhyanathan, N. Joomun, J. Kilner, G. Dimitrakis and T.E. Cross, Evidence for the Microwave Effect during Hybrid Sintering, J. Am. Ceram. Soc. 89 [6], pp. 1977-1984 (2006).

[WIL 88] J. Wilson and S.M. Kunz, Microwave Sintering of Partially Stabilized Zirconia, J. Am. Ceram. Soc., 71 [1], C-40-C-41 (1988).

[XIE 96] Z. Xie, J. Li, Y. Huang and X. Kong, Microwave Sintering Behaviour of ZrO<sub>2</sub>-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with Agglomerate, Journal of Materials Science Letters 15, pp. 1158-1160 (1996).

[XU 03] G.-F. Xu, T. Olorunyolemi, Y. Carmel, I.K. Lloyd and O.C. Wilson Jr, Design and Construction of Insulation Configuration for Ultra-High Temperature Microwave Processing of Ceramics, J. Am. Ceram. Soc., 86 [12], pp. 2082-86 (2003).

[ZHA 00] C. Zhao, J. Vleugels, C. Groffils, P. J. Luypaert and O. Van Der Biest, Hybrid Sintering with a Tubular Susceptor in a Cylindrical Single-Mode Microwave Furnace, Acta mater. 48, pp. 3795-3801 (2000).



# ANNEXE I

## EXTRAIT DU RAPPORT DE PROJET D'ELECTRONIQUE

**intitulé**

"REGULATION D'UN FOUR DE FRITTAGE PAR MICRO-ONDES "

**par Guillaume PERRIN, Florian LEBRUN et Charles MEURICHE**

### A. DEFINITION DU PROJET

#### Le cahier des charges

Notre projet consiste à :

- Asservir la position du piston en fonction de la température.
- Corriger la température reçue par la caméra.
- Rendre le générateur de micro-ondes réglable par l'utilisateur via l'ordinateur.
- Réaliser tout cela à l'aide du logiciel LabVIEW.
- Extraire les données sous forme de tableau afin qu'elles puissent être traitées avec un tableur.

#### Equipement et matériel à disposition

- Banc de l'expérience contenant le four micro-ondes monomode, la caméra IR, le piston motorisé, les capteurs de puissance.
- Une carte d'acquisition pour la réception des données de la caméra et du piston.
- Deux ordinateurs : l'un pour l'utilisation de LabVIEW, l'autre pour l'utilisation du logiciel de la caméra (ThermaCam Researcher Pro).
- Un capteur de température LM35 pour la correction de la caméra.
- Graisse thermo-conductrice pour placer sous le capteur afin d'améliorer les échanges thermiques avec la fenêtre en ZnSe.
- Ruban d'acier, vis, boulons pour caler le capteur sur la fenêtre en ZnSe.
- Gaine thermique pour isoler les pattes du capteur et le ruban d'acier devant le caler afin d'éviter le court-circuit de la caméra.

- Multimètres, thermocouples, générateurs de tensions pour les différents tests sur le capteur.

### Conditions spécifiques

- Utiliser le logiciel LabVIEW pour réaliser l'asservissement et les autres tâches.
- Rendre le résultat accessible : toutes les informations importantes sur une seule page.
- Permettre l'évolution du programme.
- Ne pas coller le capteur sur la vitre

### Méthode de conception et stratégie de test

Notre programme a été réalisé en petits modules que nous avons testés au fur et à mesure de leur élaboration. Nous avons cherché à résoudre les petits problèmes d'abord afin de pouvoir ensuite se consacrer uniquement à la partie la plus importante de notre projet : l'asservissement du piston motorisé.

Tout d'abord nous avons dû résoudre le problème de la correction de la température donnée par la caméra. Pour cela nous avons décidé d'utiliser un capteur de température que l'on fixerait entre la caméra et la vitre. Parmi tous les capteurs de température possibles nous avons sélectionné le capteur LM35 car celui-ci était cité dans le manuel de la caméra : la caméra connaît donc déjà le coefficient de conversion entre V et °C du capteur LM35. Il a ensuite fallu chercher à fixer le capteur sur la vitre. Nous avons d'abord pensé le coller sur la vitre mais cela nous était impossible étant donné les spécificités du cahier des charges. Nous avons donc opté pour une fixation à l'aide d'une lamelle d'acier qui plaquerait le capteur contre la vitre. Pour améliorer les échanges thermiques nous avons décidé d'utiliser de la graisse thermo-conductrice.

En parallèle nous avons élaboré un programme LabVIEW afin de commander la position du piston. Ce programme nous a ensuite servi pour réaliser la commande du générateur de micro-ondes. Malheureusement nous avons eu des problèmes de configuration du port série du PC sur lequel était branché le générateur de micro-ondes. Malgré l'aide de nombreuses personnes il nous a été impossible de corriger ce problème de configuration et donc de commander le générateur. Néanmoins si l'on parvient à configurer ce port, il deviendra possible de commander le générateur via l'interface LabVIEW.

Le programme d'asservissement du piston a été réalisé en plusieurs étapes : tout d'abord nous avons cherché à récupérer les données des différents capteurs. Malheureusement

nous n'avons pu récupérer que les données du capteur situé dans le piston car les données des autres capteurs se récupèrent par l'intermédiaire du générateur de micro-ondes et donc du port série. Nous avons donc du baser notre asservissement sur les seules données de la caméra et du capteur du piston. Pour récupérer les données de la caméra il a fallu utiliser un programme similaire. Ces programmes furent testés petit à petit afin d'éviter des mauvaises surprises lors du test final.

### Tâches

Notre travail se décomposera principalement en 5 tâches :

# Tâche 1 :

Créer un instrument Labview pour enregistrer les puissances électromagnétiques mesurées à différents endroits du four : Pm, Pr et Pv.

# Tâche 2 :

Créer un instrument pour enregistrer la(les) température(s) mesurée(s) par la caméra thermique infrarouge.

# Tâche 3 :

Installer et étalonner le capteur de température de la fenêtre ZnSe (ex : LM35).

# Tâche 4 :

Créer un instrument pour déplacer le piston court-circuit motorisé et enregistrer sa position.

# Tâche 5 :

Créer un instrument pour piloter le piston motorisé (et le générateur de micro-ondes) afin de réguler la température des matériaux à fritter en utilisant les 3 instruments précédents. Asservir le moteur – établir une boucle de régulation/ou un diagramme logique – diagramme avec paramètres d'entrée – critères/logique – action sur paramètres de sortie

## B. ACQUISITION DES DONNEES

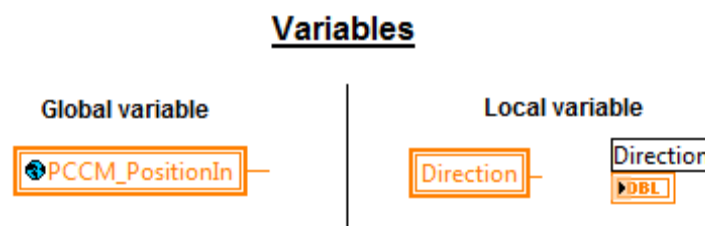
### Outils de travail

La programmation a été effectuée avec le logiciel LabVIEW de la société américaine National Instruments. C'est un langage de programmation graphique (langage G) qui utilise des icônes à base de lignes de texte pour créer des applications. LabVIEW utilise une programmation en flux de données dans laquelle les données déterminent l'exécution. On travaille sur des fonctions représentées graphiquement pour créer notre programme, l'ensemble donnant alors une impression d'organigramme.

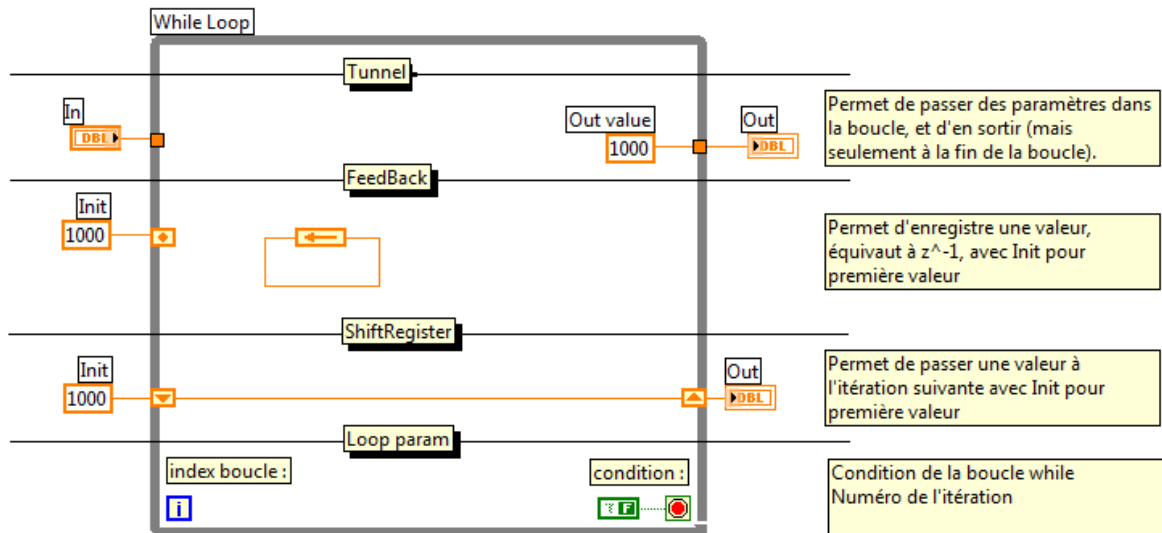
### Quelques notions sur LabVIEW

LabVIEW est un logiciel de programmation graphique dans le style de Simulink, il est organisé sous forme d'instruments virtuels (VI), qui ont une interface graphique (Front Panel) et le programme graphique (Diagram Panel). Dans cette programmation on utilise des modules similaires à des fonctions. La description des principales opérations de LabVIEW que l'on a utilisé sont en annexe.

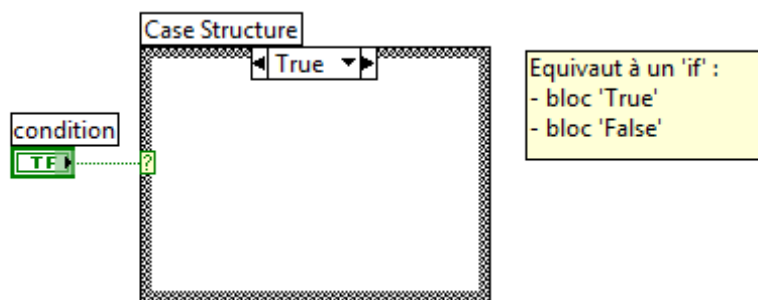
Les variables peuvent être globales ou locales. Les variables locales ont la particularité d'avoir une représentation graphique sur le front panel mais ne sont utilisables que dans le VI où elles sont déclarées, contrairement aux globales, on les voit dans le diagramme sous ces formes :



Dans cette programmation on trouve aussi des boucles, mais nous avons surtout utilisé la boucle while qui est représentée comme ceci :



On utilise aussi les structures conditionnelles de type 'if' qui se présentent sous forme de plusieurs blocs superposés mais l'on envoie qu'un à la fois (ici le cas 'True') :



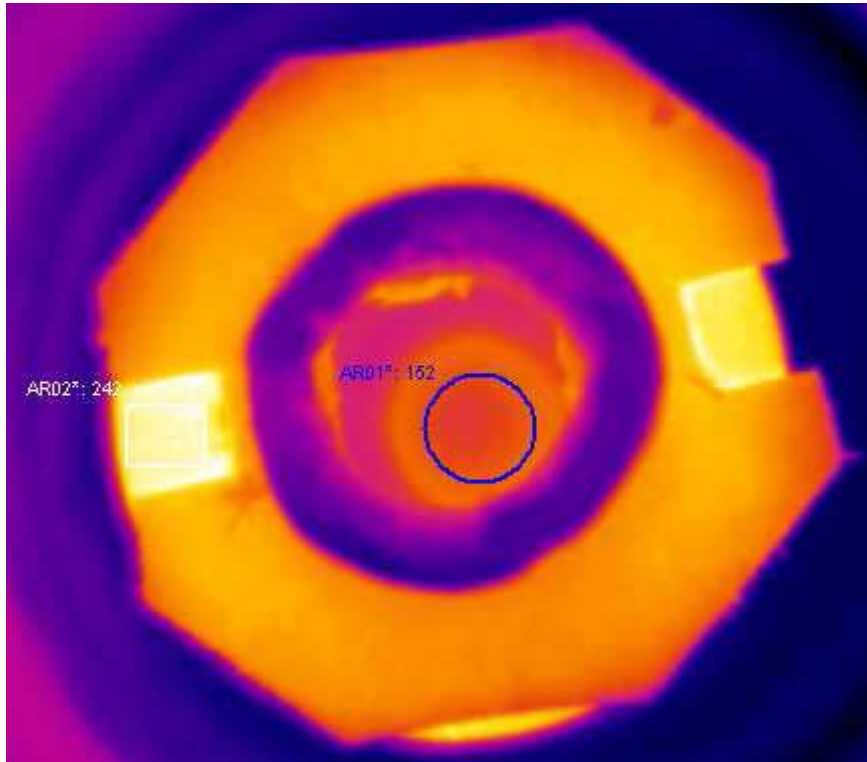
Dans le cadre de ce projet on a décomposé le programme en plusieurs parties ayant chacune une tâche bien spécifique :

- boucle de mesure : mesure des valeurs sur les entrées analogiques de la puissance EM sur le piston, de la position du piston, des canaux A et B de la caméra (période = 1ms).
- boucle d'écriture (contrôle piston) : écriture sur les sorties du DAQ (période = 1ms).
- boucle d'enregistrement : enregistrement des données dans un fichier (période = 6s)
- boucle d'affichage : affiche les données en temps réel (période = 100ms)
- boucle d'asservissement et contrôle manuel : gère le pilotage du système (période = 10ms)
- Trois VI de traitement des données : passe-bas, filtre dérivateur, tableau FIFO (que l'on détaillera plus tard)



### Systeme de mesure de la temperature

La mesure de la temperature est effectuee par une camera infrarouge. Pendant la phase d'acquisition, la camera IR enregistre des images de la cavite. Ces images sont des matrices de pixels, chaque pixel ayant une couleur fonction de la temperature en ce point.



Il est ainsi possible de voir l'objet, sa temperature etant plus elevee que celle de la cavite. Les couleurs sont d'autant plus blanches que la temperature est grande. Il est possible de regler l'echelle de temperature : nous avons choisi une echelle de 20°C à 2000°C.

Le logiciel fourni avec la camera permet de suivre l'evolution de la temperature d'une zone. Pour cela il suffit de tracer un cercle a l'endroit que l'on souhaite observer. Ensuite par l'intermediaire du logiciel, il est possible de connaitre la temperature maximale et la temperature minimale de la zone, la temperature moyenne. Grace a ces donnees nous sommes capables d'asservir le piston et donc la temperature dans la cavite.

### La correction des temperatures

Le probleme que l'on a avec la mesure de la temperature par la camera est qu'il y a une vitre interposee entre l'echantillon et la camera. Or cette vitre est chauffee par les rayonnements de la ceramique : elle emet donc un rayonnement qui se superpose a celui

venant de la céramique. Afin de régler ce problème la caméra possède une entrée prévue pour un capteur de température avec une courbe de réponse Température.Volt correspondant à celle d'un LM35, que l'on a fixé sur la vitre. La sortie  $V_{out}$  du capteur est reliée à l'entrée analogique non inverseuse de la caméra. La tension d'alimentation du capteur initialement fournie par un générateur de tension, est fournie par la caméra : il existe sur la caméra une sortie +5 V ce qui suffit à alimenter le capteur ( $4\text{ V} < V_s < 35\text{ V}$ ). Pour finir, la masse du capteur est reliée à la masse de la caméra.

### **Le filtrage du bruit sur les sorties analogiques**

Nous avons aussi décidé de rajouter un filtre passe-bas entre la caméra et la carte d'acquisition afin d'éviter les phénomènes de repliement de spectre lors de l'échantillonnage. L'échantillonnage étant de 1kHz et le spectre utile s'étalant sur  $[0,20\text{Hz}]$ , nous avons décidé de faire un filtre passe-bas de fréquence de coupure 100 Hz. Le filtre réalisé est un filtre RC du 1er ordre. Nous avons pris une résistance de 1 k $\Omega$  et un condensateur de 10 mF.

### L'acquisition

Les différentes données à collecter sont :

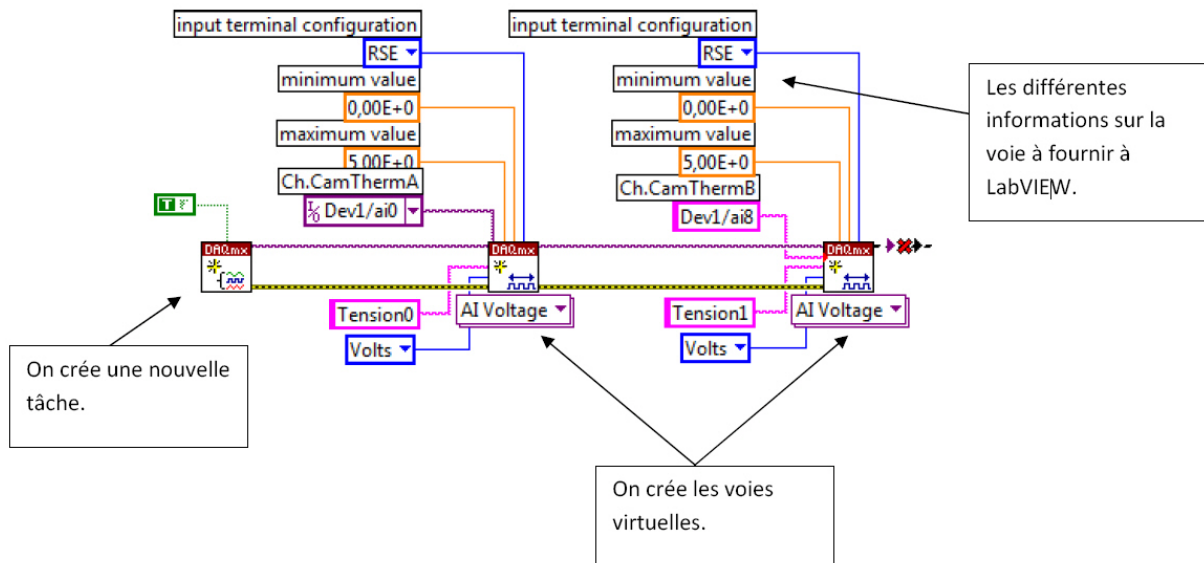
- les données de la caméra
- la puissance donnée par le capteur du piston
- la position du piston

Il s'agit pour cette partie de réaliser la boucle d'acquisition des données. Commençons par la création (l'initialisation) des différentes « voies virtuelles » utilisées pour représenter les données.

### Initialisation de l'acquisition

Les données de la caméra se récupèrent sur 2 voies analogiques. Il s'agit ici de tensions. Le manuel de la caméra nous indique que ces sorties analogiques varient entre 0 V et +5 V. La caméra utilise une connexion RSE (RSE : Referenced Single-Ended = entre canal et masse). Sur la carte d'acquisition, la voie A de la caméra est connecté à l'entrée ai0, le voie B est connecté à l'entrée ai8.

On peut alors créer les « voies virtuelles » : Ch.CamThermA et Ch.CamThermB, ainsi sur LabVIEW :



Les sorties du piston permettent de récupérer 2 informations : la position du piston ainsi que la valeur de la puissance électromagnétique sur la paroi du piston.

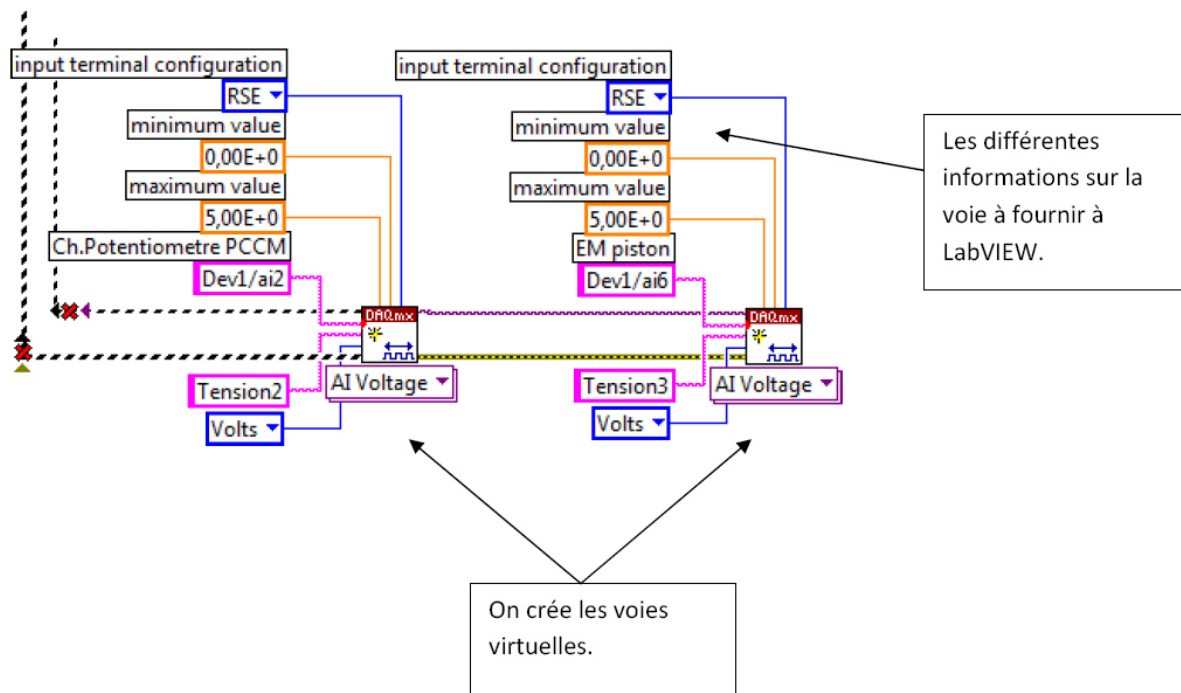
La position est récupérée par un potentiomètre, le capteur de puissance électromagnétique envoie une tension proportionnelle à la puissance reçue.

Le piston possède les mêmes caractéristiques que la caméra à savoir :

- sorties analogiques
- tensions comprises entre 0 V et +5 V
- communication RSE

Le potentiomètre de position du piston est connecté à l'entrée ai2 de la carte d'acquisition, le capteur de puissance est quand à lui connecté à l'entrée ai6 de la carte.

On crée ainsi les autres voies :



Remarque :

Initialement nous devons aussi recevoir les données d'autres capteurs de puissance. Néanmoins des problèmes de communication avec le port série de l'ordinateur nous ont conduit à abandonner ces données. Cependant si dans le futur quelqu'un parvient à faire fonctionner le port série de l'ordinateur, il lui suffit de venir ajouter les nouvelles voies à la suite des précédentes.

Une fois les voies créées, on peut récupérer les données par l'intermédiaire d'un bloc LabVIEW qui a pour entrée les tâches (ou voies) et en sorties des datas (les données utiles).

### Acquisition de la température

Le signal venant de la caméra est très bruité, d'après nos observations ce bruit peut être considéré comme un bruit blanc de bande de fréquence de l'ordre de 600 Hz, de répartition gaussienne centrée en amplitude dont l'écart type est d'environ 0.1 V, ce qui correspond à une erreur de 40°C avec une échelle de température de 2000°C.

Il est donc indispensable de filtré ce signal avant de l'utiliser dans un asservissement, pour cela nous utilisons un filtre passe bas d'ordre 4, afin d'atténuer très fortement le bruit en dehors de la bande de fréquence de la température.

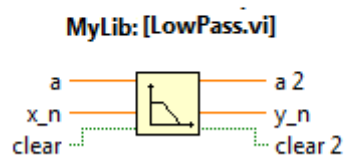
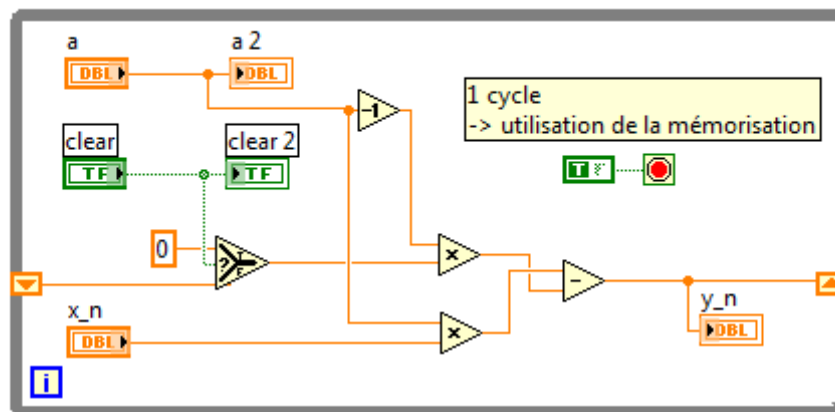
## Construction du filtre passe bas

Le filtre passe bas que l'on utilise est un filtre passe de type RC, il a l'avantage d'être peu gourmand en ressources puisque sa forme récursive est très simple :

$$y_n = \alpha \cdot x_{n-1} + (1 - \alpha) \cdot x_n \quad \text{avec } \alpha = 1 - e^{-\frac{T_s}{\tau}}$$

Pour augmenter la vitesse d'atténuation de -20 dB/dec, on peut mettre à la suite N filtres passe bas ce qui donne une atténuation de -N.20 dB/dec et une fréquence de coupure :

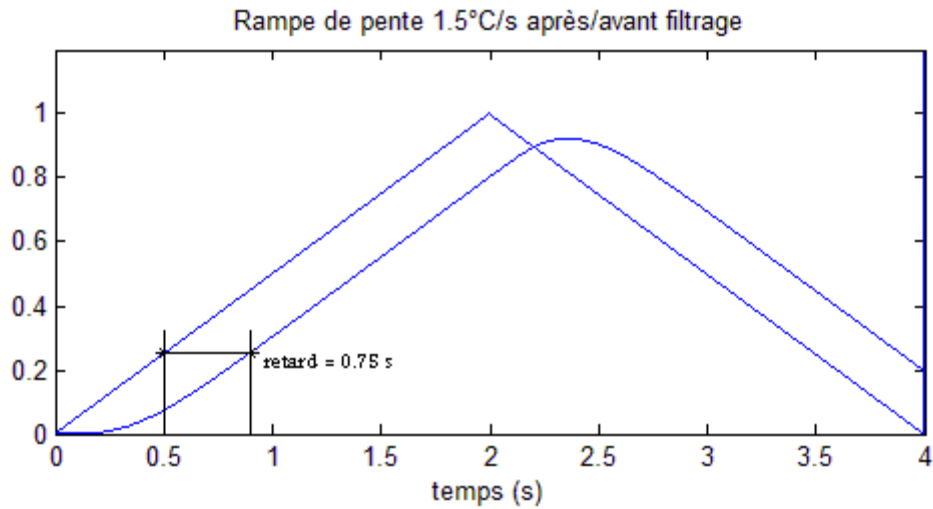
$$\omega_c = \frac{\sqrt{2^{1/N} - 1}}{\tau} \rightarrow \alpha = 1 - e^{-\frac{2 \cdot \pi \cdot T_s \cdot f_c}{\sqrt{2^{1/N} - 1}}}$$



## Choix des paramètres du filtre pour la caméra

La température varie lentement (à peine quelques hertz) donc nous avons choisi un filtre d'une fréquence de coupure d'une seconde et d'ordre 4 (-80 dB) afin de suffisamment couper le bruit. Comme on a pris N=4 et  $f_c=1$  Hz, il faut un alpha de 0,01. Le problème de ce filtre est un déphasage important de la valeur mesurée, soit l'équivalent d'un retard important en basse fréquence.

Pour quantifier ce retard on filtre une rampe, ce qui nous donne un retard de 0.75 :

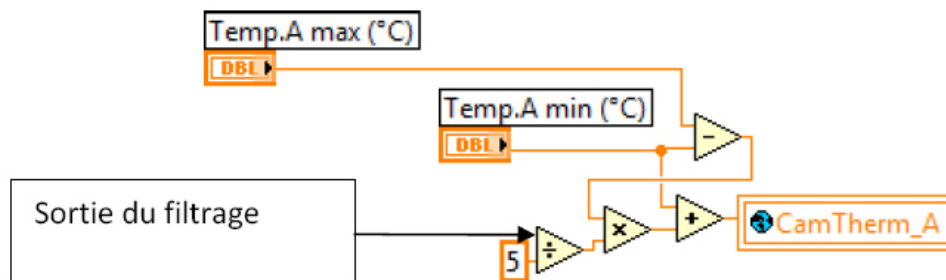


Comme la pente de la rampe n'influe pas sur ce retard, le système ne pourra pas réagir avant un temps de l'ordre de la seconde aux fluctuations de la température ce qui peut être source d'instabilité. Cependant ce filtre permet d'obtenir une réduction du bruit à 3°C ou 5°C.

### La conversion tension-température

On cherche à se ramener à une valeur de température comprise entre Tmin et Tmax. La relation utilisée est la suivante:

$$\text{Température} = \frac{\text{tension}}{5} * (\text{Tmax} - \text{Tmin}) + \text{Tmin}$$



### Mesure de la position du piston et de la puissance EM

Le module de réflexion en bout de guide d'onde est équipé d'un capteur de puissance et d'un capteur de position sur le piston permettant de déplacer le point de réflexion de l'onde.

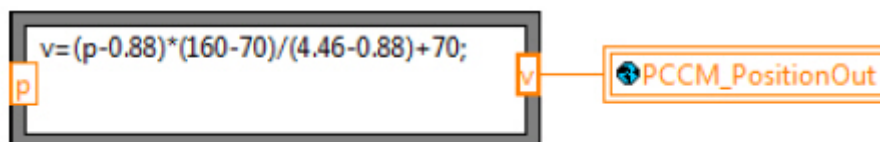
La position du piston est mesurée par un potentiomètre qui donne une échelle de tension de 0 à 5 V linéaire par rapport à la position. Cette échelle est mappée suivant 0.88 V à 4.46 V → 70 mm à 160 mm. Ce capteur de position à bruit avec un écart type de l'ordre de 0.005 V soit 0.45 mm, comme ce bruit est suffisamment faible par rapport à la composante basse fréquence de la position, on peut directement échantillonner à 1 kHz et faire un filtrage passe bas numérique ensuite, sans risque que le repliement du spectre dû à l'échantillonnage interfère avec la mesure.

Pour le capteur de puissance magnétique on a un bruit avec un écart type de l'ordre de 0.05 V donc on néglige aussi le repliement du spectre. Comme la position du piston et la puissance magnétique variant suivant la position ont des variations assez faible donc nous utilisons le même filtre passe bas de fréquence de coupure de 15 Hz à -20 dB soit  $a=0,1$  et  $t=0.0095$

### La conversion tension-position

Le piston, dans notre utilisation, a une excursion de position de 90 mm : de 70 mm à 160 mm. Expérimentalement nous avons trouvé que pour une position à 70mm, la tension reçue était de 0.88 V et pour 160 mm la tension reçue était de 4.46 V, d'où la relation permettant de passer de la tension à la position :

$$Position = (tension - 0.88) * \frac{160 - 70}{4.46 - 0.88} + 70$$



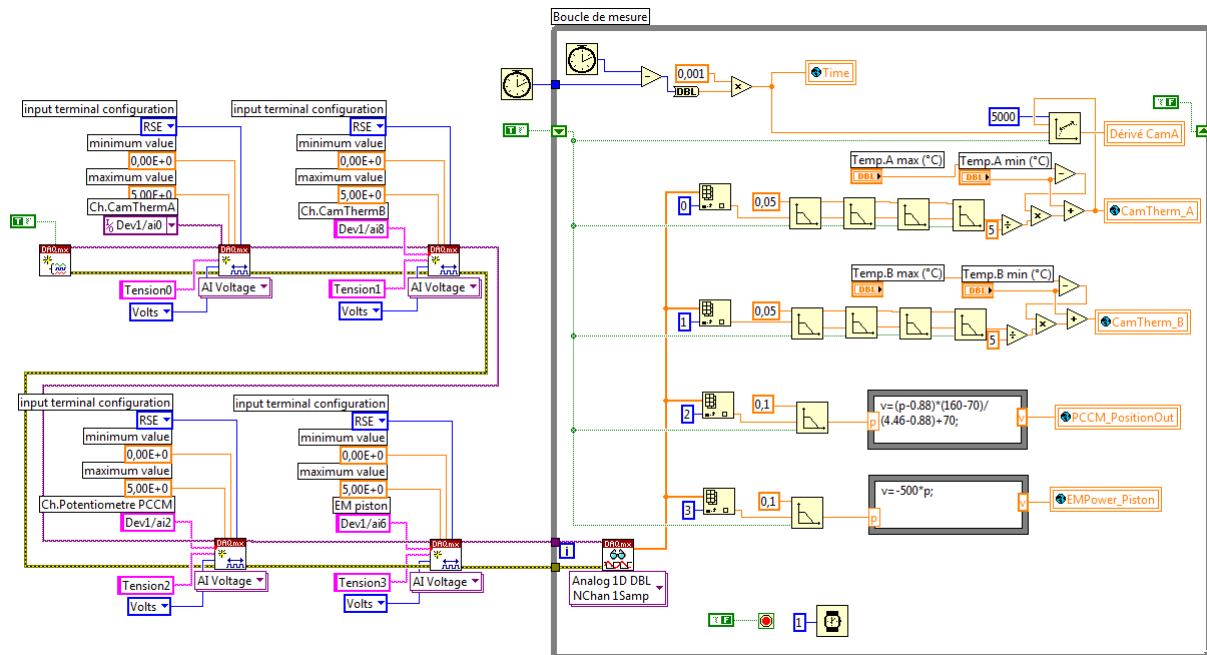
### La conversion tension-puissance

Le capteur de puissance envoie une tension proportionnelle à la puissance captée, d'où la relation permettant de passer de la tension à la puissance.

$$Puissance = -500 * tension$$



## Programme d'acquisition dans son ensemble



Remarque :

Les variables créées : EMPower\_Piston, PCCM\_PositionOut, CamTherm\_A et CamTherm\_B sont des variables globales. On peut ainsi les réutiliser partout dans le programme.

## L'interface RS232 et le générateur de micro-ondes

Le générateur peut être relié à LabVIEW par une connexion RS232 et un protocole simple de communication : 'CXXXX' avec 'C' le nom de l'instruction et XXXX la valeur associée. Cette interface aurait dû permettre d'acquérir la puissance du magnétron et la puissance réfléchie vers le magnétron, ainsi que de contrôler sa puissance de sortie, mais le port série COM1 de l'ordinateur ne s'initialisait pas correctement avec LabVIEW. Comme le port série marchait avec l'ancien ordinateur nous avons réinstallé des drivers plus récents pour port série sans succès. Les recherches que nous avons faites afin de corriger ce problème sont toutes restées sans résultat. Comme cet interfaçage du générateur n'a qu'un intérêt ergonomique, nous avons finalement laissé ce problème de côté.

## **L'enregistrement des données**

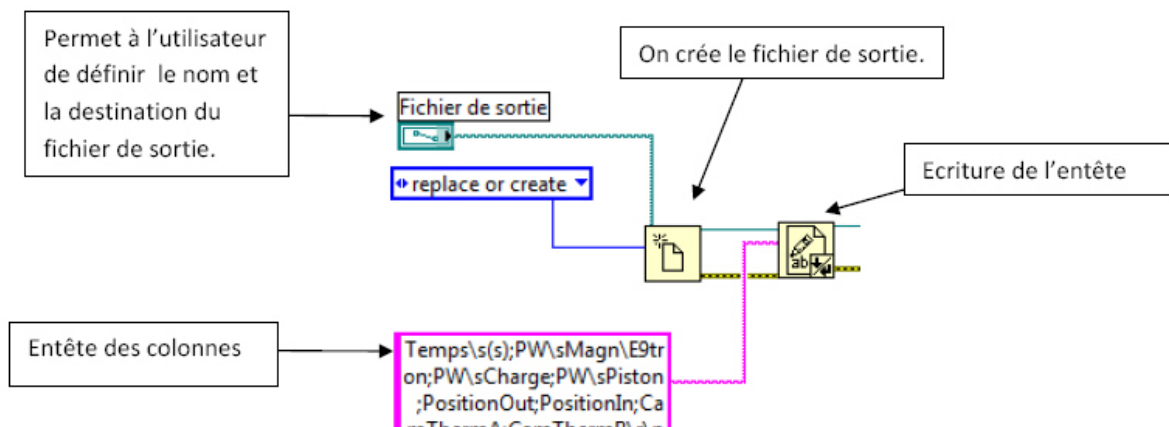


Le cahier des charges nous imposait d'enregistrer les différentes données de l'expérimentation. Nous avons choisit d'enregistrer les données dans un fichier .csv, l'extension .xls n'étant pas disponible dans les extensions de fichiers de sortie de LabVIEW. Ce fichier est lisible sous Excel et il est ainsi possible d'utiliser toutes les données dans le but de tracer les différentes courbes.

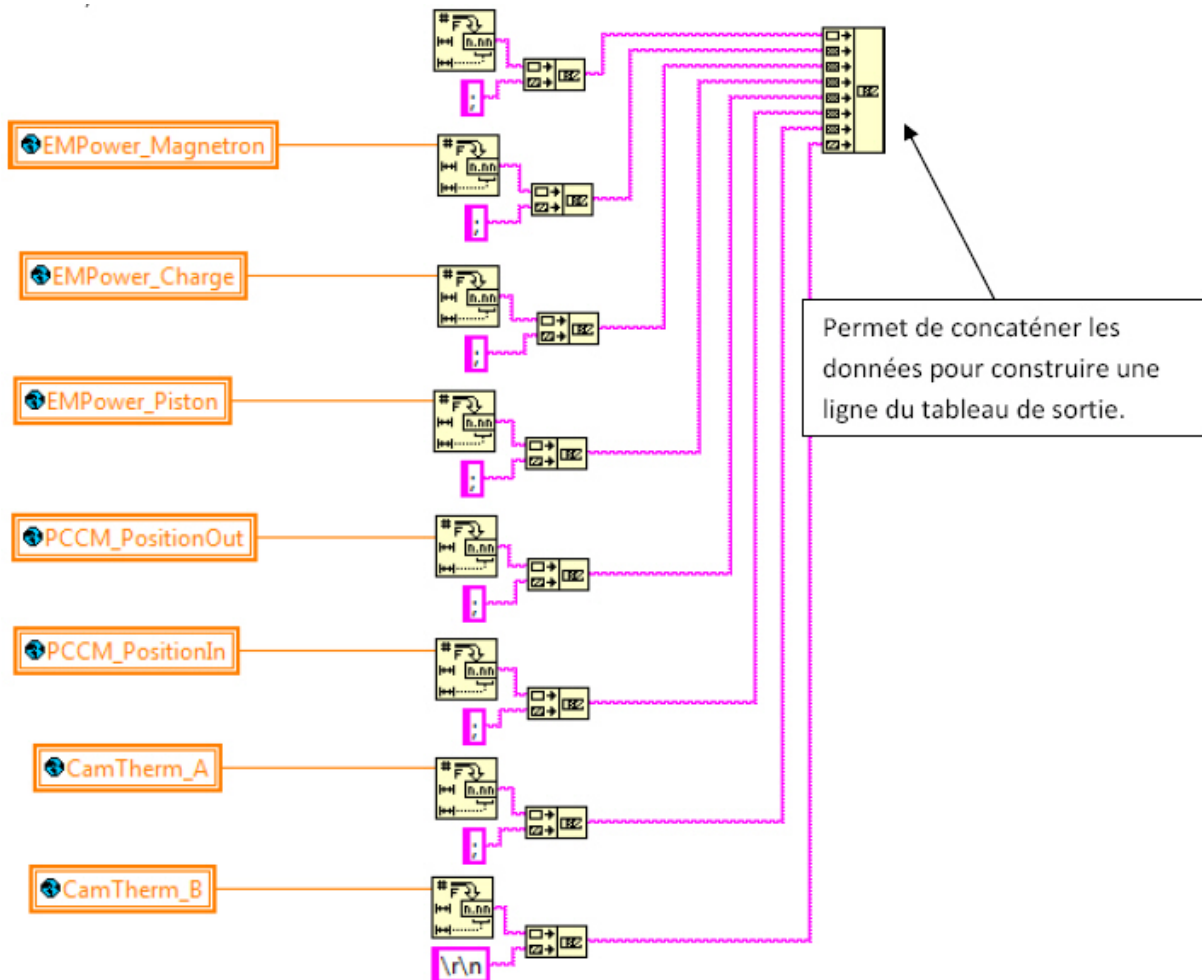
Temps (s)	PW Magnétron	PW Charge	PW Piston	PositionOut	PositionIn	CamTherma	CamThermB
0	0	2,696682	94,103949	131,873763	131,8	515,373933	423,359407
0,1	0	2,696682	82,06299	122,673934	131,8	16,15887	13,620973
0,2	0	2,696682	86,501255	131,336344	131,8	118,112407	99,631782
0,3	0	2,696682	86,745121	132,069498	131,8	264,972186	222,755071
0,4	0	2,696682	88,199013	132,147412	131,8	387,682462	325,90727
0,5	0	2,696682	87,552715	132,087864	131,8	467,707058	394,456108
0,6	0	2,696682	90,388613	132,047462	131,8	508,400591	430,479063
0,7	0	2,696682	91,006696	132,056463	131,8	527,436978	446,702151
0,8	0	2,696682	92,206367	131,940808	131,8	537,457916	452,913155
0,9	0	2,696682	93,01162	131,955074	131,8	543,359856	454,986209
1	0	2,696682	93,416425	131,9272	131,8	545,489379	455,417571
1,1	0	2,696682	91,857976	131,877402	131,8	545,964702	456,64383
1,2	0	2,696682	94,754138	131,909979	131,8	545,084487	457,131181
1,3	0	2,696682	94,922739	131,868076	131,8	545,759554	458,792476
1,4	0	2,696682	94,873086	131,832182	131,8	547,368489	461,630198
1,5	0	2,696682	94,9285	131,792262	131,9	549,024024	462,176503
1,6	0	2,696682	94,060749	131,824464	131,9	549,276965	461,537131
1,7	0	2,696682	93,886327	131,800579	131,9	548,689416	460,948112
1,8	0	2,696682	94,534929	131,842131	131,9	547,49744	460,144348
1,9	0	2,696682	94,197955	131,797841	132	547,408171	460,128393
2	0	2,696682	92,552484	131,883524	132	548,863514	460,856693
2,1	0	2,696682	91,83188	131,886078	132	549,18251	460,62582
2,2	0	2,696682	92,281676	131,843789	132	549,376706	461,226301
2,3	0	2,696682	91,549941	131,898642	132	549,081272	462,037381
2,4	0	2,696682	91,982967	131,916503	132	548,358911	461,269156
2,5	0	2,696682	91,31107	131,974677	132	548,245541	460,126888
2,6	0	2,696682	90,315226	131,968917	131,9	548,40604	458,324652
2,7	0	2,696682	90,05829	131,96958	131,9	548,768121	457,827365

Différentes données sont enregistrées alors que nous n'avons pas accès à leur valeur comme PW Magnétron ou encore PW Charge. Le programme est donc déjà prêt à enregistrer ces valeurs dans le cas où la communication avec le port série fonctionne.

### La boucle d'enregistrement



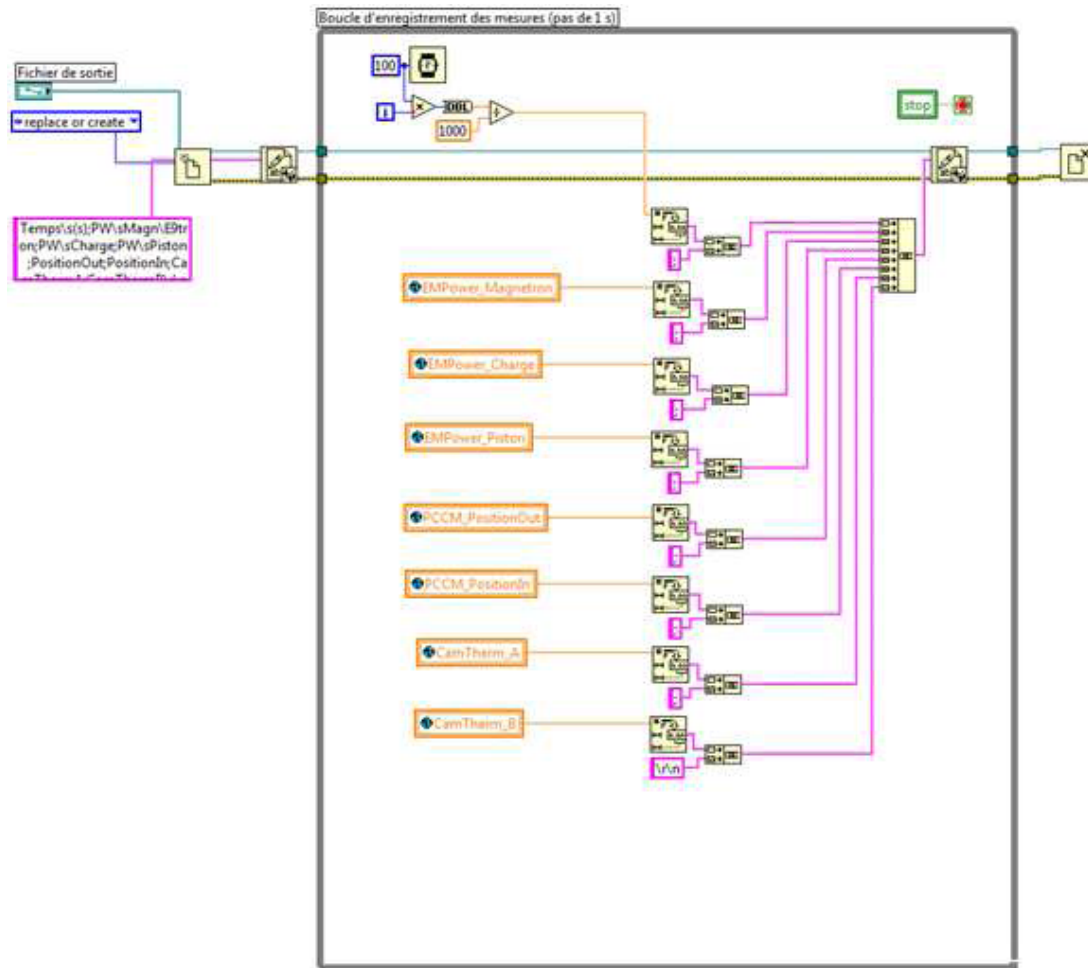
Comme pour la boucle d'acquisition, pour que l'écriture des données se fasse en temps réel, il faut définir l'écriture des données dans une boucle while « infinie » d'une itération toutes les secondes. Pour l'écriture des données dans le fichier, une fonction de LabVIEW nous permet d'écrire dans un fichier (autorisé en écriture).



A la fin de la manipulation, la boucle while s'arrête. Les données étant stockées dans le fichier .csv, il ne nous reste plus qu'à fermer ce dernier grâce à la fonction suivante :

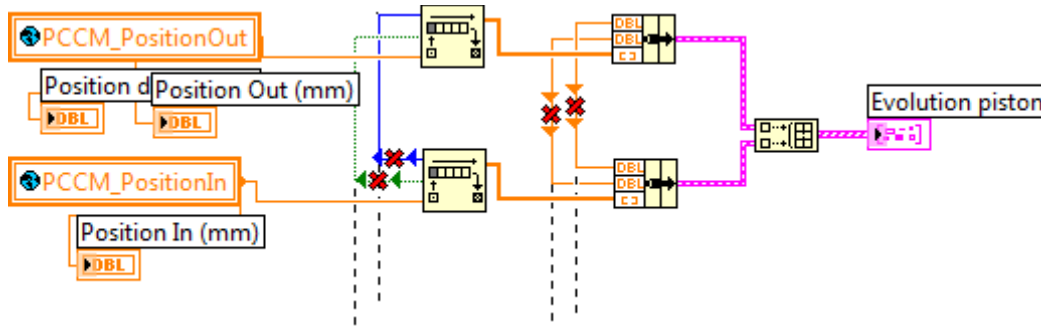


Au final nous obtenons la boucle ci-dessous :

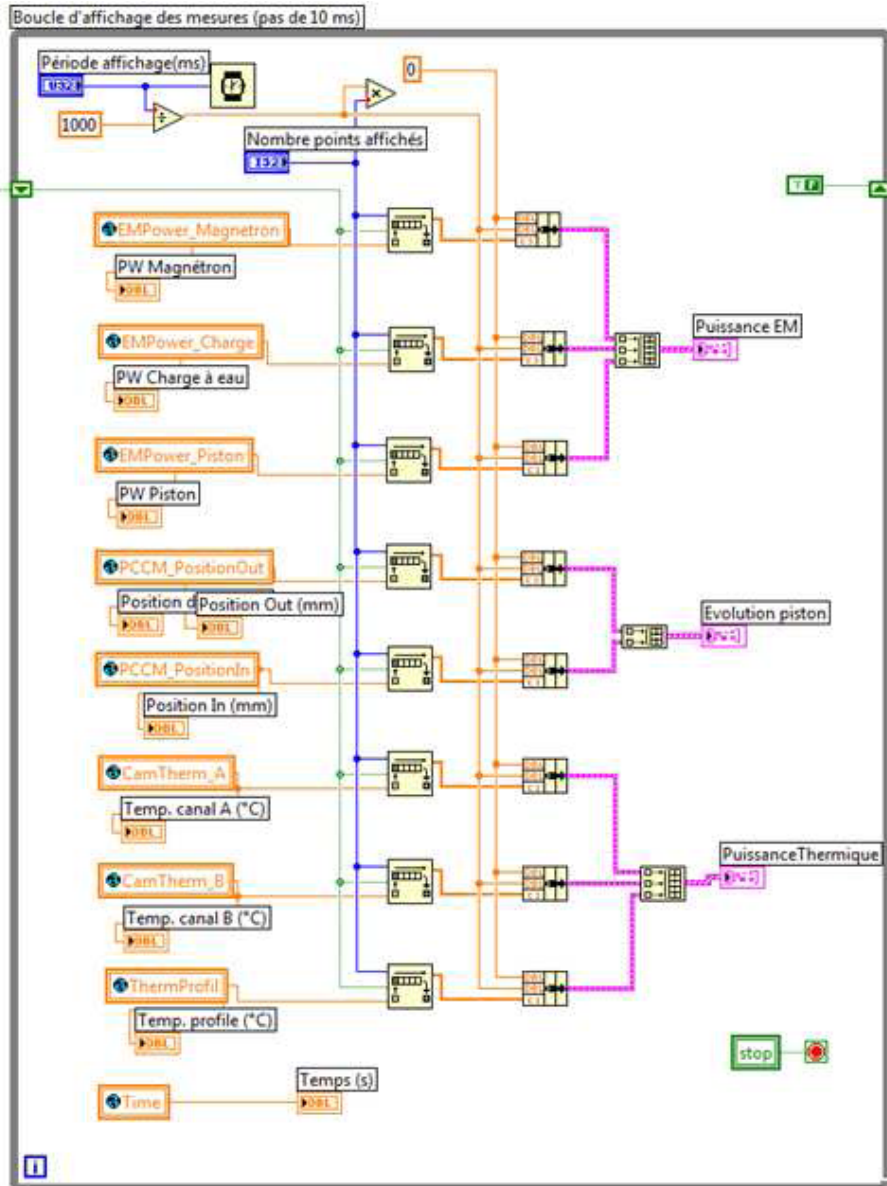


### La boucle d'affichage

Cette boucle nous sert à afficher certaines variables en temps réel. Pour cela nous rassemblons nous mettons la nouvelle valeur de chaque variable dans une liste FIFO renvoyant une liste de valeurs qui peuvent ensuite être à l'instrument d'affichage de graphique nommé 'Evolution piston' dans le cas décrit ci-dessous, où l'on assemble la liste de PositionOut et de PositionIn afin de les mettre sur un même graphique :



Comme pour les deux boucles précédentes, le temps réel est réalisé par une boucle infinie. Cela nous donne finalement la boucle ci-dessous :



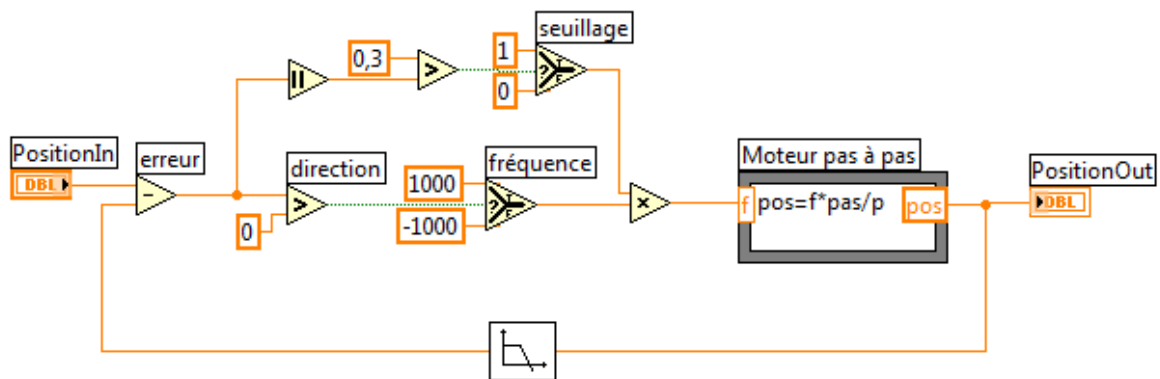
## C. COMMANDE DU PISTON COURT-CIRCUIT MOTORISE

Le piston est mis en mouvement par un moteur pas à pas que l'on contrôle par des impulsions sur un bit nommé stepclock en entrée de la PCCM pour le déplacement, et par un bit pour la direction du déplacement.

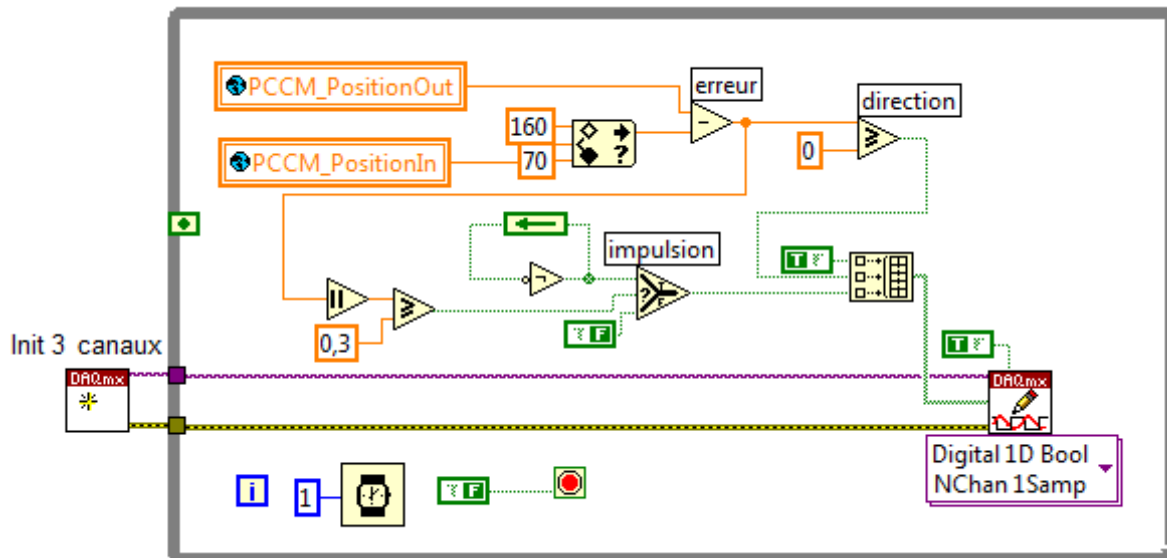
Afin de contrôler le moteur nous avons commencé par faire un système de contrôle simple, puis nous l'avons amélioré afin d'obtenir une précision et une stabilité plus grande. La vitesse des impulsions est limitée par LabVIEW à un changement d'état par itération, puisque les objets de lecture/écriture ne peuvent être utilisés deux fois sans un temps d'attente suffisant, limités par les timers à des pauses supérieures à la milliseconde. Comme le moteur a une précision de 400 pas par millimètre, la vitesse maximale est de 1.25 mm/s.

### Première méthode de contrôle

Nous avons construit un asservissement qui avance dans un sens ou l'autre suivant le signe de l'erreur en allant à la vitesse maximal jusqu'à ce que la consigne soit atteinte. Le problème pour que le piston ne vibre pas trop à cause du bruit, est qu'il faut arrêter le moteur avant la consigne de façon à ce que l'erreur reste de même signe malgré le bruit. Nous avons fixé cette marge à 0.3 mm ce qui est une erreur importante sachant que la puissance peut varier de manière importante sur 1 mm au niveau du maximum de puissance, ce système n'est pas linéaire et peut être décrit comme suit :



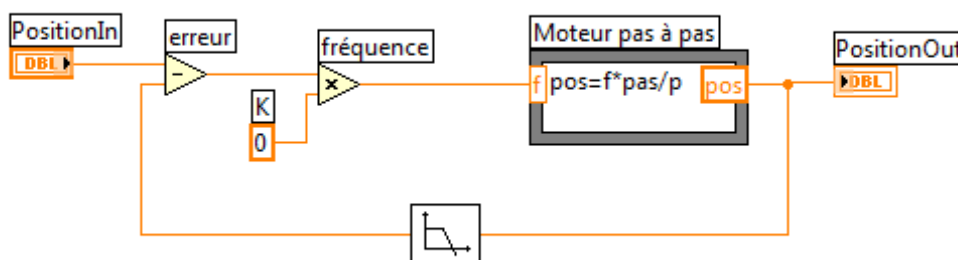
Avec LabVIEW, nous implémentons ce système de contrôle dans une boucle avec une itération toutes les millisecondes :



Le programme commence par initialiser les 3 canaux de pilotage du moteur (bit d'activation, bit stepclock, bit de direction), à chaque itération on fait passer le bit stepclock entre 0 et 1 afin de créer les impulsions de contrôle, et l'on met le bit de direction à 1 si l'erreur est positive et 0 si elle est négative. La consigne 'PCCM\_PositionIn' est au préalable tronqué aux valeurs min = 70mm et max = 160mm de la position piston.

### Seconde méthode de contrôle

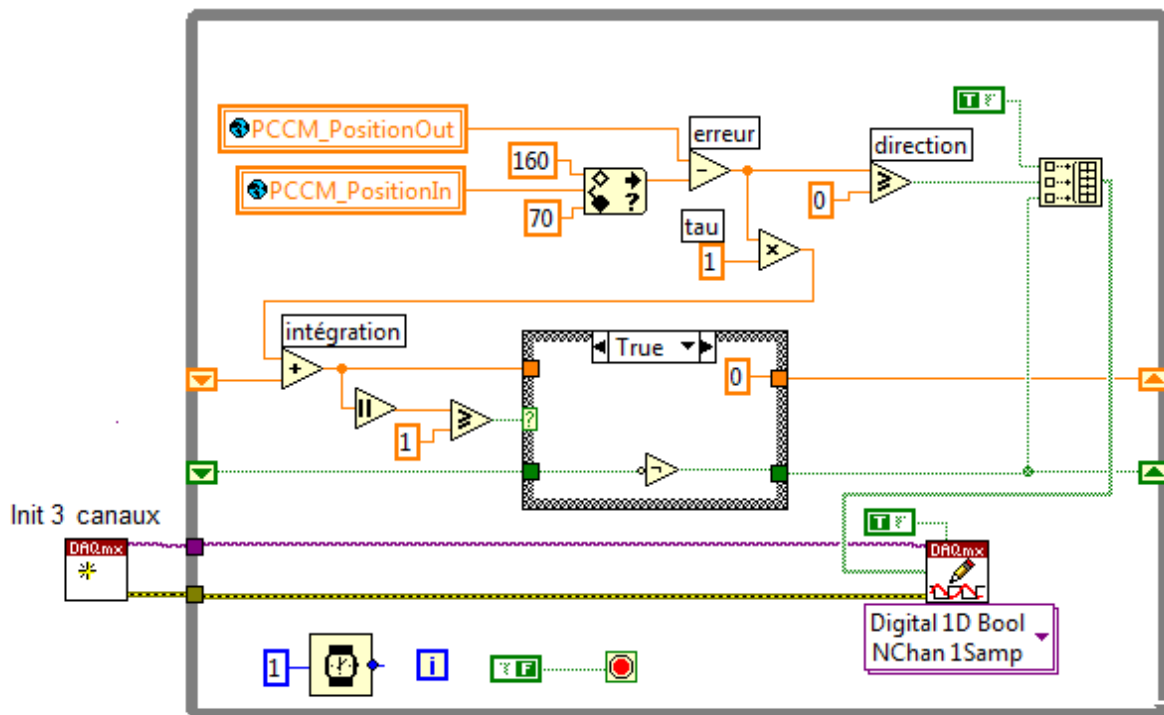
Notre seconde méthode contrôle cette fois le moteur en vitesse grâce à un correcteur proportionnel K:



On obtient donc un asservissement du premier ordre :

$$\frac{Position_{Out}}{Position_{In}} = \frac{K \cdot pas \cdot (1 + \tau \cdot p)}{K \cdot pas + p + \tau \cdot p^2} \approx \frac{1}{1 + \frac{p}{K \cdot pas}} \quad \text{avec } \tau : \text{constante de temps du filtre (négligeable)}$$

Avec LabVIEW, nous implémentons ce système de contrôle dans une boucle avec une itération toutes les millisecondes, en modifiant seulement la partie gestion de la fréquence de la première solution :



Dans le programme on a choisit une constante nommée tau de façon à être à vitesse maximal pour une erreur supérieure à 1 mm. La méthode pour changer la fréquence consiste à incrémenter un compteur avec une valeur proportionnelle à l'erreur, ainsi dès que ce compteur prend une valeur supérieure ou égale à 1 : on déclenche un changement d'état du bit stepclock et une mise à zéro du compteur. Ce qui permet de moduler la fréquence. Avec cette méthode de contrôle on arrive à obtenir une précision de 0,05 mm, ce qui est une nette amélioration par rapport au système de contrôle précédent. De plus grâce à l'intégration de l'erreur par le compteur avant le déclenchement permet de stabiliser le piston pour les faibles erreurs.

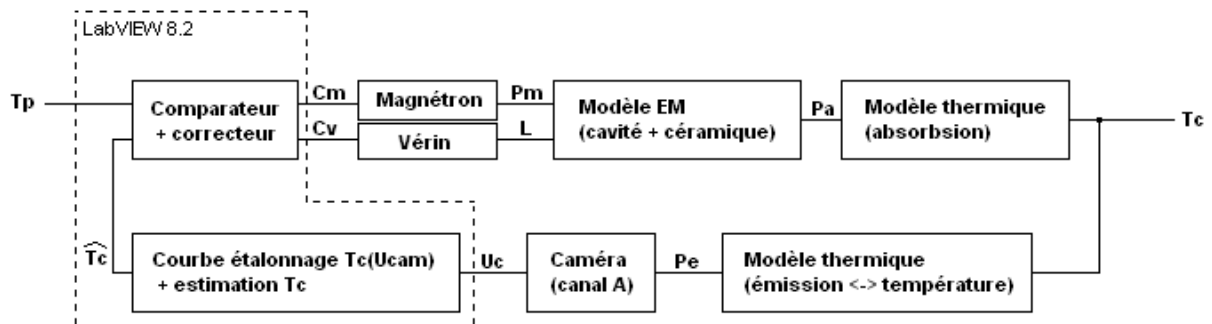
## D. ASSERVISSEMENT DU FOUR MICRO-ONDES

### Modélisation du système

Le but de cet asservissement est de piloter le four de manière à ce que la céramique suive un profil de température paramétré par l'utilisateur définissant les valeurs de  $T_p$ , contrôlant le système.

Le système est pilotable par deux variables :  $C_v$  pour la distance  $L$  entre le réflecteur piston et l'iris, et  $C_m$  pour la puissance de sortie du magnétron  $P_m$ , mais on utilisera seulement  $L$  en fixant  $P_m$ . De plus, la seule variable utilisable parmi toutes celles mesurées est la température déductible de la tension sortante du canal A de la caméra.

Afin de mieux cerner le problème, on définit un modèle de ce système (ci-dessous). Cependant la seule partie modifiable est la partie implémentée sur LabVIEW, il n'est pas question de modifier le four ou de rajouter des capteurs.



Maintenant que nous avons défini les différents modèles physiques régissant le système, il faut définir les relations mathématiques issues de ces modèles, afin de pouvoir construire un système de pilotage adapté et optimisé.

### **Équations du système**

Les coefficients  $k\#$  sont les coefficients inconnus du modèle qui dépendent de la conception du four, de la céramique utilisée, et même de l'état thermochimique du matériau donc non constant.

### **Chaîne d'action**

# Modèle PCCM :



$$\frac{dL}{dt} = pas \cdot f_c$$

pas : avancement du piston par pas du moteur (m/pas)

# Modèle EM :

$$P_a = P_{cav}(P_m, L, x_c) \cdot k_1(T_c)$$

Pcav : la puissance dans la cavité

k1 : coefficient d'absorptions

# Modèle Thermique :

$$C_c \cdot \frac{dT_c}{dt} = P_a - k_2 * (T_c - T_{cav}) - k_4 * (T_c^4 - T_{cav}^4)$$

$$P_T = P_a + P_p$$

Cc : capacité thermique de la céramique

k4 : coefficient d'échange par rayonnement, k4 = e.S.s

k2 : coefficient d'échange par conduction/convection

PT : puissance totale

PP : puissance des pertes

### Chaîne d'acquisition

# Modèle Thermique :

$$P_e = k_5 * (T_c^4 - T_{cav}^4)$$

k5 : coefficient d'échange par rayonnement, avec la caméra

# Caméra :

$$U_c = \frac{[T_c]_{mesure} - T_{min}}{T_{max} - T_{min}} \cdot 5 \text{ Volt}$$

Tmin : température min de l'échelle de température

Tmax : température max de l'échelle de température

### Méthode d'asservissement

Asservir un système implique d'être capable de prévoir la réaction du système à plus ou moins long terme suivant les excitations qu'on lui applique. Sachant qu'il y a beaucoup

d'inconnues sur ce système, alors le seul moyen de prévoir son comportement futur est d'observer son comportement passé, par exemple en estimant la pente entre n et n-1 pour en déduire la valeur à n+1, si la pente varie trop vite on peut estimer son futur avec son accélération calculée sur n-2, n-1 et n, etc. Cette connaissance du système permet d'ajuster au mieux les différents coefficients de l'asservissement.

### Limite de la théorie

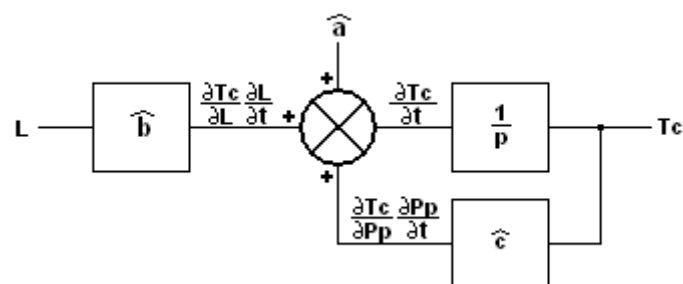
Le problème est que nous et même l'utilisateur n'avons aucune idée des différents coefficients du modèle mathématique, par exemple rien que pour le coefficient d'échange par convection et conduction qui dépendent du matériau (coef. de conduction thermique, si il est entouré d'un sucepteur ou non), du gaz l'entourant (mouvement du gaz dans la cavité : modifié par l'élévation de température et des mouvements du piston). Sans compter que le modèle électromagnétique du four est un vrai casse tête à définir, les chercheurs travaillant sur ce projet n'arrivent pas à obtenir des valeurs réalistes, seuls les tendances du modèle sont proches de la réalité. Donc avec toutes ces inconnues il nous est impossible d'utiliser un modèle mathématique pour optimiser notre asservissement.

La solution semble donc de linéariser le modèle mathématique en y insérant des coefficients dont on estime la valeur à chaque itération avant le calcul des valeurs de sortie.

### Linéarisation du modèle thermique

Pour linéariser ce modèle température on considère que Pa dépend seulement de la variable L puisque les paramètres Xc et Pm sont fixes, en ce qui concerne Pp on considère que seul Tc influe sur sa valeur on néglige les éventuelles variations des coefficients d'échange thermique dus à la modification du matériau par la chaleur, d'où l'équation :

$$\frac{dT_c}{dt} = \hat{a} + \hat{b} \cdot L + \hat{c} \cdot T_c$$



Donc on voit ici que le calcul des coefficients du modèle linéarisé nécessite de connaître les dérivés de  $T_c$  suivant  $t$  et  $L$ . Le problème c'est que la valeur de  $T_c$  est bruitée et que

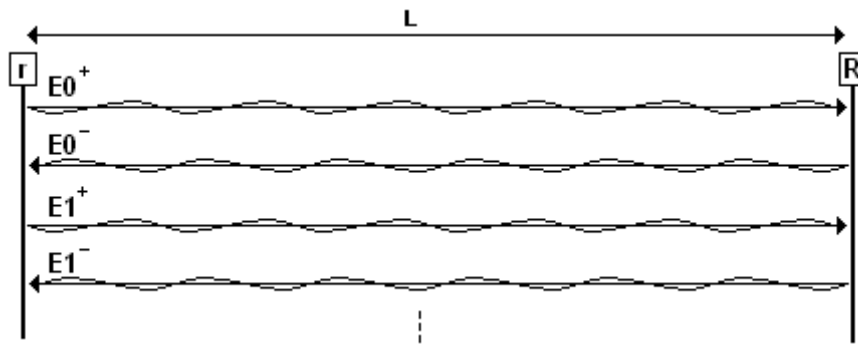
le bruit a le désavantage d'avoir une dérivée beaucoup plus importante que le signal  $T_c$  voir prépondérante, ce qui impose d'utiliser énormément d'échantillons afin de calculer ses valeurs de dérivés. Elles seraient donc déjà périmées au moment où on les déterminera, puisque le point de fonctionnement du système aura eu le temps de changer.

Donc toutes ces difficultés nous amènent à la conclusion que la seule solution qu'il nous reste est finalement une méthode un peu archaïque qui consiste à reproduire le comportement que l'on a quand on asservit le système à la main : c'est à dire apporter plus de puissance à la céramique si elle n'est pas assez chaude, soit ne pas en mettre si elle est trop chaude en laissant les pertes thermiques refroidir le matériau. Pour cela on étudie plus en détail la puissance dans la cavité.

### Etude de la puissance $P_{cav}$ dans la cavité

Afin de définir une méthode d'asservissement, il faut déterminer la forme de la courbe de puissance  $P_{cav}$  dans la cavité en fonction de la longueur de cavité  $L$ , de la puissance absorbé  $P_a$  et des réflexions sur chaque coté de la cavité. Dans cette optique nous définissons un modèle très simplifié dont le but est de nous permettre de cerner le problème.

La cavité est délimitée par un iris à gauche avec un coefficient de réflexion  $r$  et un réflecteur à droite avec un coefficient  $R$ . Ces coefficients représentent grossièrement les pertes de puissance de l'onde après chaque traversée dans la cavité, ils vont dépendre du matériau des réflecteurs, de la puissance au niveau des réflecteurs, ainsi que de la puissance absorbée  $P_a$  qui peut être ramenée sur les coefficients  $r$  et  $R$  pour simplifier. Nous nous intéressons qu'à la puissance du champ électrique puisque le champ magnétique n'applique qu'une force perpendiculaire à la vitesse des électrons et ne leur apporte donc pas d'énergie, seul le champ électrique les excite :



Représentation des allées retours de l'onde dans la cavité

L'onde peut être décrite par les équations suivantes :

$$E_k^+ = A \cdot \cos(\omega \cdot t - \Omega \cdot x - 2 \cdot k \cdot L \cdot \Omega) \cdot (r \cdot R)^k$$

$$E_k^- = A \cdot \cos(\omega \cdot t + \Omega \cdot x - 2 \cdot (k + 1) \cdot L \cdot \Omega) \cdot R \cdot (r \cdot R)^k$$

$$E = \sum_{k=0}^{\infty} E_k^+ + E_k^-$$

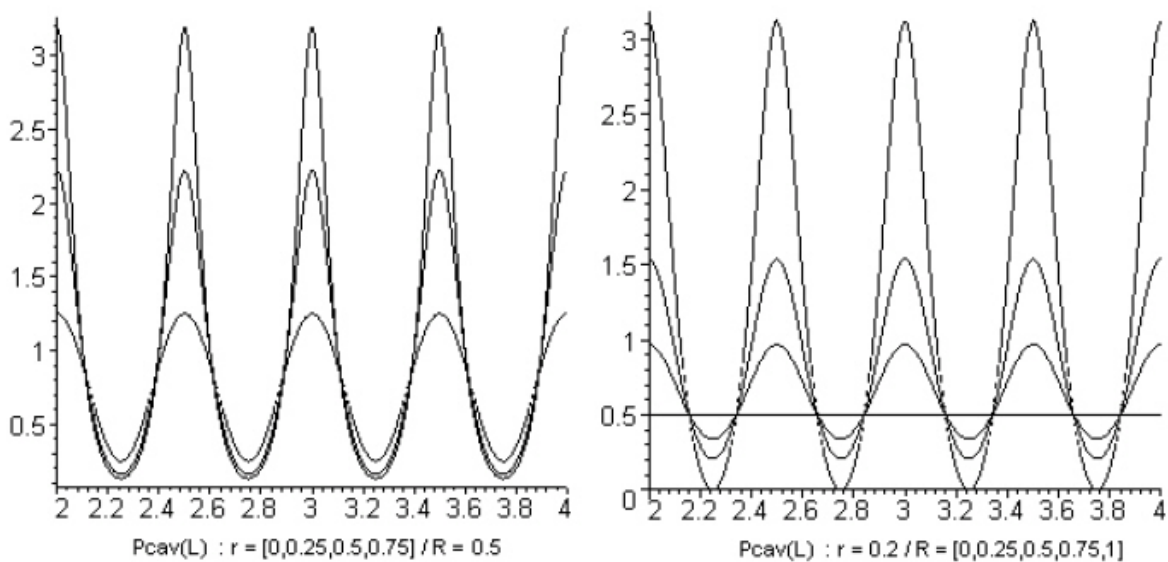
Dont les résultats sont les équations suivantes :

$$E = |\mathbf{K}| \cdot [\cos(\omega \cdot t - \Omega \cdot x + \arg \mathbf{K}) + R \cdot \cos(\omega \cdot t + \Omega \cdot x - 2 \cdot L \cdot \Omega + \arg \mathbf{K})]$$

$$P = |\mathbf{K}|^2 \cdot \left[ \frac{(1+R)}{2} + R \cdot \cos(2 \cdot \Omega \cdot (x-L)) \right] = A^2 \cdot \frac{(1+R)/2 + R \cdot \cos(2 \cdot \Omega \cdot (x-L))}{(r \cdot R)^2 - 2 \cdot r \cdot R \cdot \cos(2 \cdot L \cdot \Omega) + 1}$$

avec  $\mathbf{K} = \frac{A}{1 - r \cdot R \cdot e^{-2 \cdot j \cdot L \cdot \Omega}}$

Ces résultats de calculs permettent de déterminer la forme de la courbe de puissance en une position fixe  $X_c$  suivant  $L$ , on obtient ceci :



Parametre :  $A = 1, X_c = 1, \lambda = 1$

Répartition en puissance de l'onde pour quelques valeurs de  $r$  et  $R$  en  $X_c$

Sur ces courbes on observe le phénomène de résonance qui permet d'augmenter de façon importante la puissance (de 0.5 sans réflecteur), et obtenir un maximum de

résonance quand  $L$  est sur un multiple de  $\lambda/2$ . De plus, plus les coefficients de réflexion sont faibles, plus on obtient un minimum important ce qui limite la possibilité de réduire la température passé un certain seuil.

L'observation principale à faire est que l'asservissement sur  $L$  peut se limiter à des valeurs sur l'intervalle  $[\lambda/2; \lambda/2 + \lambda/4]$  ou  $[\lambda/2 + \lambda/4; (k+1)\lambda/2]$ .

### **Test sur la maquette**

Il y a un autre phénomène qui influe sur cette puissance : le fait que la puissance dans la cavité varie fortement suivant la position du réflecteur. On suppose que la réflexion de l'iris dépend de l'onde qui arrive dessus, donc suivant que le champ magnétique ou le champ électrique est maximal on obtient un coefficient de réflexion différent. Nous l'avons observé grâce au capteur de puissance sur le piston qui donne la puissance dans la cavité. Ce qui fait que si l'échantillon est mal placé par rapport à l'iris, la position donnant le maximum de puissance dans la cavité et celle donnant le maximum de résonance au niveau de l'échantillon sont décalés ce qui fait que le four chauffe très mal. Donc l'échantillon est toujours placé de façon à ce que ces deux positions coïncident.

Cette observation à un grand intérêt pour l'asservissement, puisque pour positionner le piston, il faut savoir où se trouve ce maximum de puissance afin de toujours travailler autour de celui-ci. Et comme la détection de ce maximum de puissance est difficile à faire avec le signal extrêmement bruité de la caméra, surtout qu'il faut en déduire la dérivée de la température en fonction de la position et du temps, le fait que le maximum de puissance dans la cavité et celui de la résonance coïncide permet de déduire ce maximum à partir des mesures du capteur sur le piston.

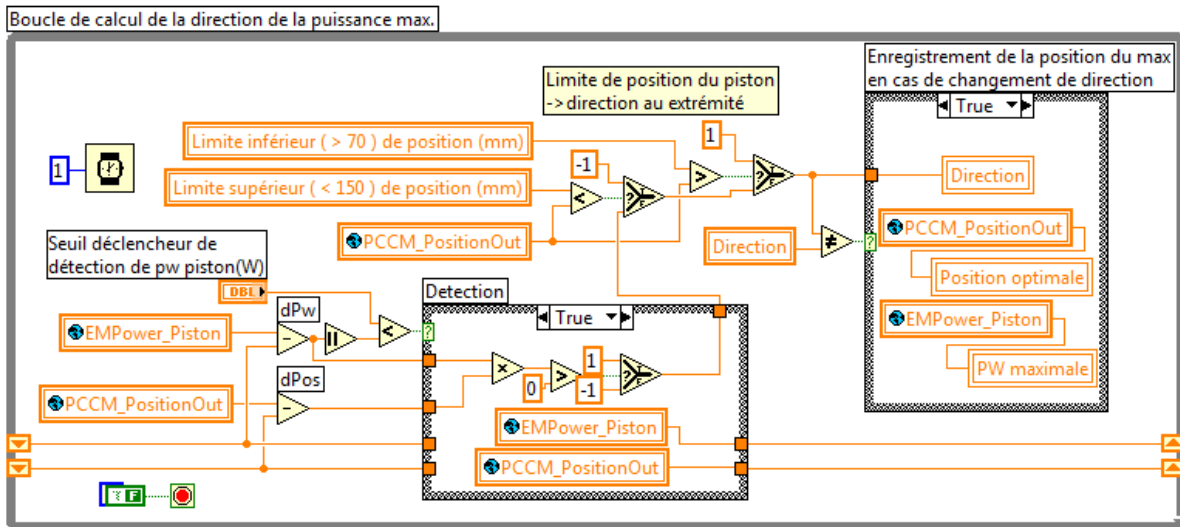
### *Asservissement par correcteur proportionnel*

Dans un premier temps nous avons mis au point un asservissement utilisant un correcteur proportionnel liant une erreur sur la température à un déplacement du piston par rapport à sa position courante dans le sens réduisant l'erreur, donc vers le maximum de puissance si l'erreur est positive, sinon dans l'autre sens.

Cette méthode nécessite de connaître la direction dans laquelle est ce maximum de puissance. Pour ce faire il suffit de dériver la tension mesurée aux bornes du capteur de puissance magnétique du piston en fonction de la position du piston. Le problème est que l'on ne veut aucune erreur sur la direction du maximum de puissance or la mesure est forcément un peu bruitée (quantification, imperfection du capteur,...). Donc nous utilisons un seuil à partir duquel l'écart de puissance entre deux positions est suffisamment grand par rapport au bruit pour que la décision sur la direction du

maximum soit certaine. Pour plus de commodité mathématique nous donnons les valeurs +1 ou -1 à la variable direction suivant le sens.

Sous LabVIEW, on l'implémente de cette façon :

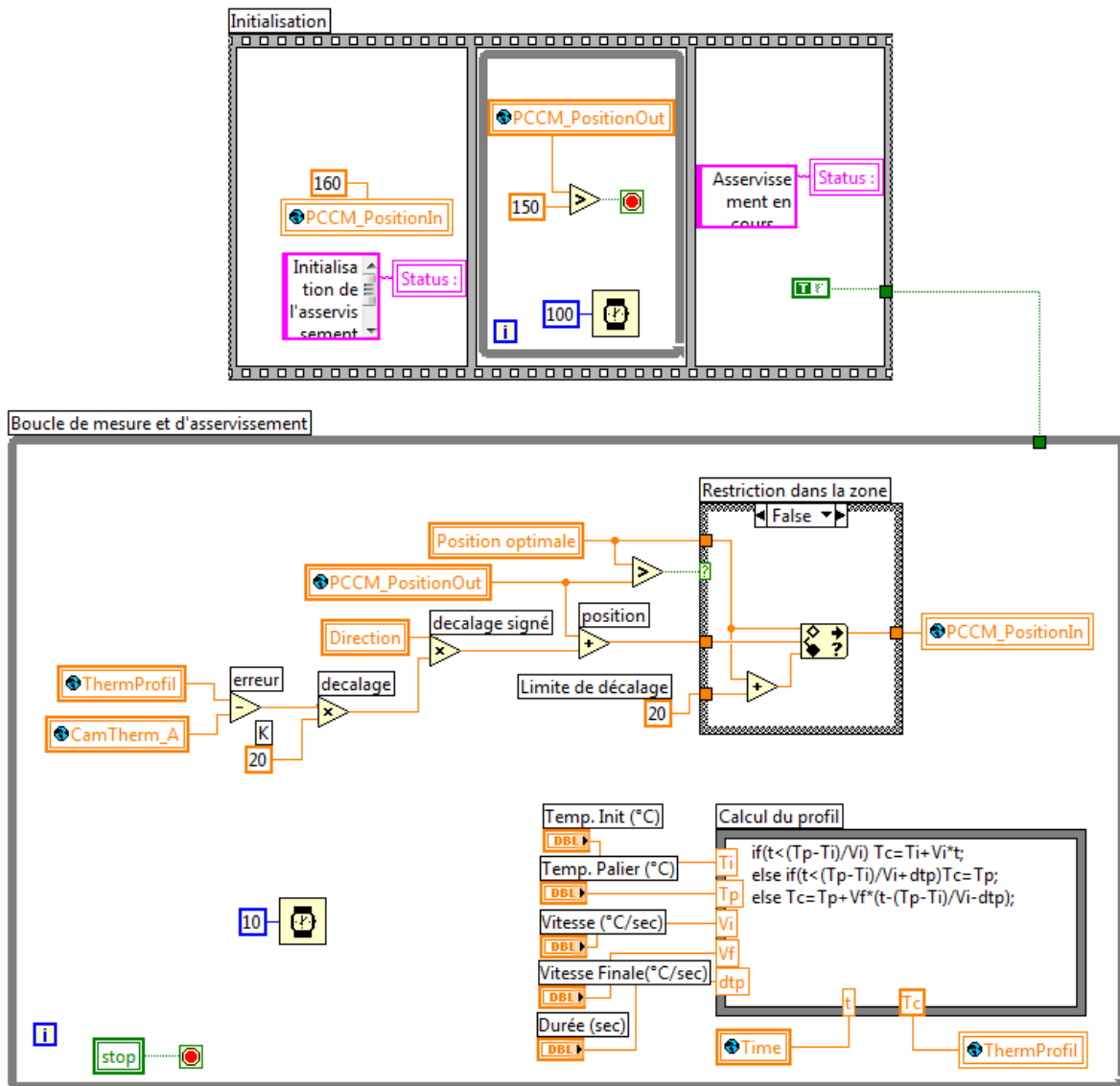


On définit des directions par défaut (dans le sens opposé) aux extrémités du piston, de cette manière lors de l'initialisation il suffit de placer le piston sur l'une des extrémités pour connaître la direction vers laquelle est le maximum de puissance sans passer dessus.

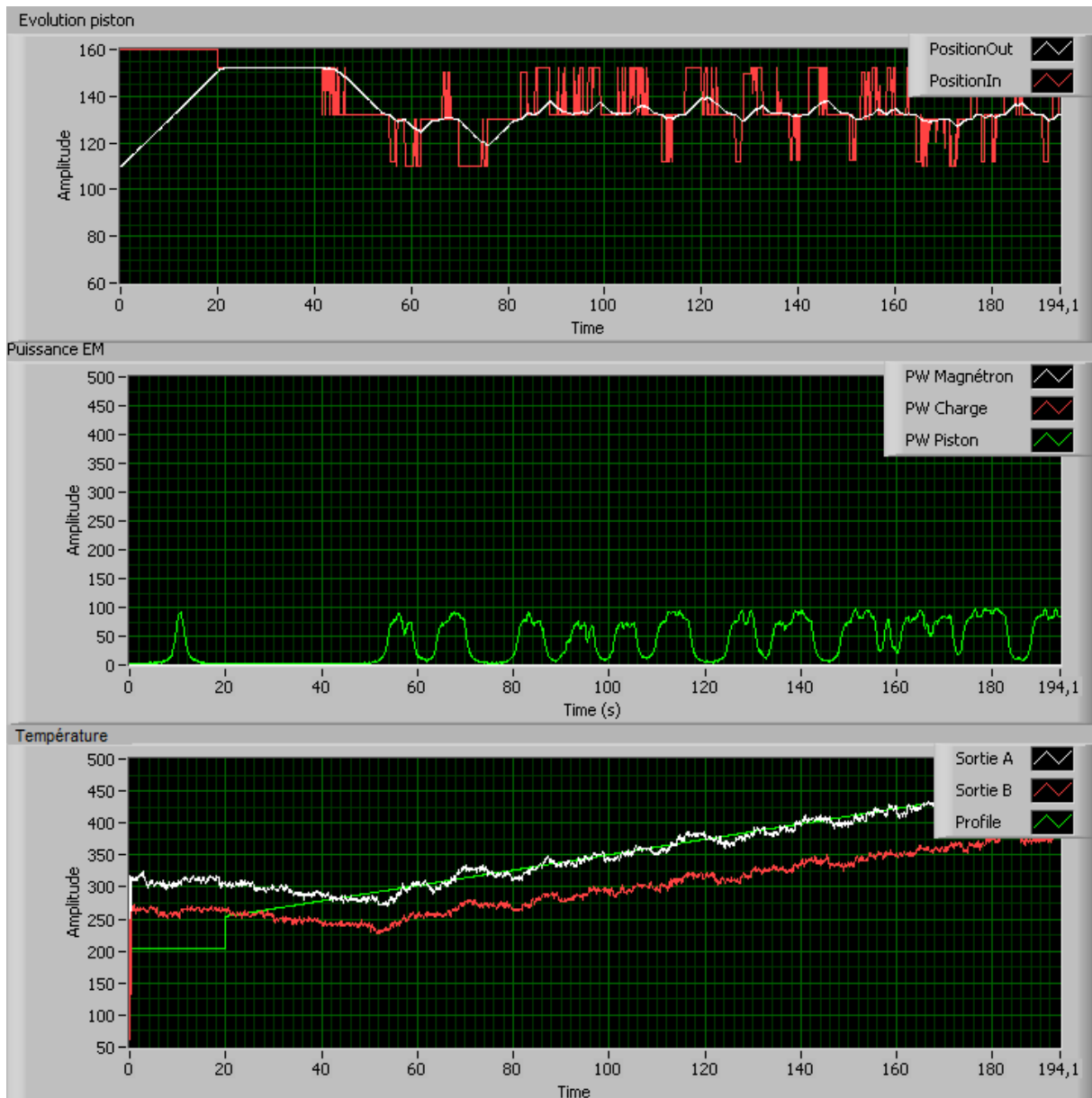
A partir de la direction on peut établir l'asservissement, suivant l'équation :

$$PositionIn_n = PositionOut_n + K \cdot direction \cdot (Ta_n - Tprofil_n)$$

Ce que l'on implémente sous cette forme avec la phase d'initialisation :



Après nos premiers tests, on observe que cette asservissement est instable, il oscille continuellement entre la puissance max et min, et donne une erreur oscillant entre +20°C et -20°C, ce qui est une erreur beaucoup trop grande.



Cet enregistrement de l'un de ces tests montre que le système est très sensible au bruit sur la température puisque la position demandée est extrêmement fluctuante. Et le fait qu'il avance vers le maximum tant que la température n'est pas assez élevée fait que quand elle arrive au niveau désiré, on est sur le maximum de puissance donc la température continue à s'élever le temps que le piston s'éloigne suffisamment de cette position, et inversement lorsque la température est trop grande.

Donc on se retrouve en présence d'un système instable oscillant, qui ne décroche pas complètement seulement grâce au phénomène de saturation. De plus il utilise très mal la puissance disponible, puisque l'on voit que la température est asservit par des pics de puissances, comme le montre la courbe verte PW\_Piston. Ces pics sont du au faite que l'on est un grand retard sur la connaissance de la température actuel, donc l'asservissement a le temps de dépassé la position d'équilibre entre puissance perdu et



absorbé. Il semblerait donc judicieux de baissé le coefficient K, mais dans ce cas on aurait des déplacement beaucoup plus lent ce qui est particulièrement bien lorsque l'on est à la position d'équilibre sauf que lorsque la pente du profile change rapidement l'erreur croit très rapidement et le moteur ce met aussi à oscillé mais à un fréquence très inférieur et à une amplitude beaucoup plus élevé qu'avec un K élevé, d'ou le faite que l'on mette un K très élevé, en contant sur la saturation en vitesse du moteur, ce qui revient à le piloter en tout ou rien le moteur. Pour limiter les oscillations, nous aurions pu utiliser un correcteur PI afin de stabiliser le piston à sa valeur moyenne, mais le temps d'intégration aurait du être extrêmement long donc le système aurai perdu en réactivité, d'où une autre solution.

En conclusion, il faudrait un système lent pour de faible erreur et rapide pour une grande erreur, ce qui revient à réduire la vitesse d'approche de la température pour de faible erreur, soit un asservissement en vitesse. D'où notre second asservissement qui prend en compte la vitesse de la température.

### Estimation de la pente de la température

Afin de mettre au point l'asservissement en vitesse nous avons cherché à dériver le signal malgré le bruit donc nous avons d'abord testé une technique avec un filtre dérivateur.

#### **Estimation par filtre passe-bas**

Afin d'estimer la pente on a pris le filtre de forme  $y_n = (x_n - x_{n-1})/T_e$  avec une période d'échantillonnage suffisamment longue soit 2 secondes, pour que la température ait le temps de changer de manière significative par rapport au bruit. Donc afin d'éviter les repliement de spectre, il faut utiliser au préalable un filtre passe-bas coupant à une fréquence de 0.25 Hz, cette fois nous utilisons un seul filtre passe-bas pour éviter d'avoir des retards trop importants, ce qui laisse donc une partie des signaux de fréquence supérieur à 0.25 Hz et donc une partie du repliement spectrale.

Le problème est que le bruit prend des valeurs aléatoire entre -2°C et 2°C ce qui fait une erreur possible de -1°C/s à 1°C/s que l'asservissement va utiliser pendant 2 secondes avant d'avoir une nouvelle valeur, alors que la vitesse du profil est de l'ordre de 0.5°C/s. D'où parfois un comportement bizarre où l'on voit la température accélérer alors qu'elle est déjà trop élevée.

Comme la méthode du filtre passe-bas n'est pas assez robuste, nous changeons d'approche et choisissons les statistiques pour nous permettre de faire mieux.

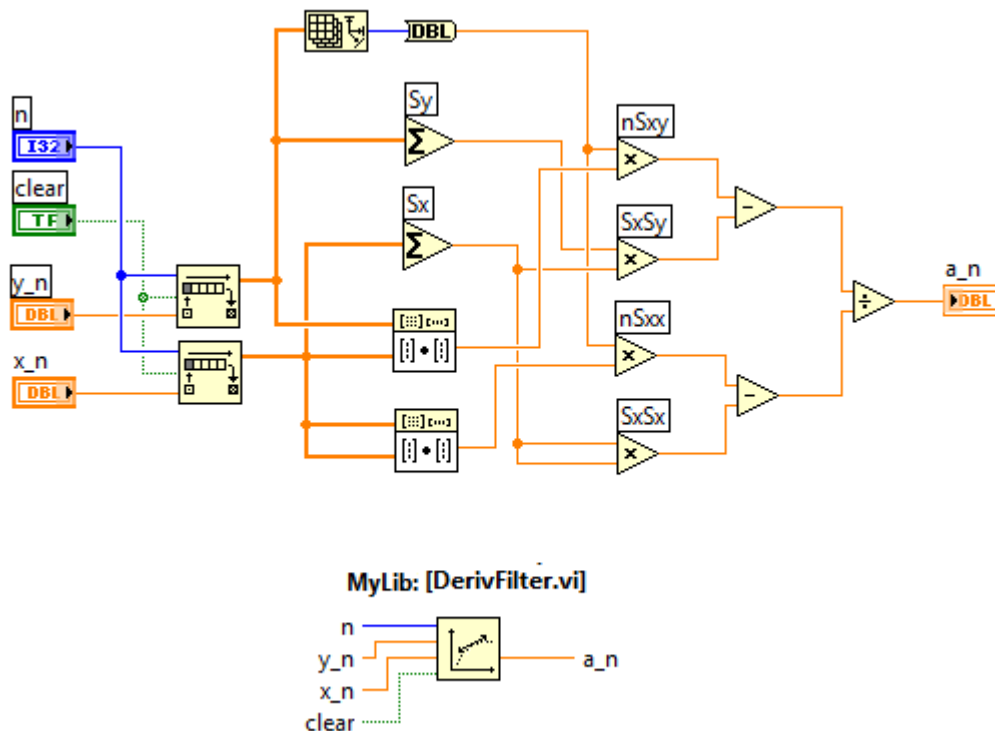
## Estimation par une approche statistique

En statistique, il existe la méthode des moindres carrés qui permet de trouver la droite de forme  $y=a.x+b$  passant au plus près de tous les points d'un nuage de points, en minimisant la variance de la distance entre la droite et ces points. Donc pour dériver un signal bruité, on peut utiliser cette technique sur les  $m$  derniers points du signal et ne garder que le paramètre  $a$ , on se retrouverait donc avec un filtre dérivateur linéaire assez robuste.

Cette technique nous donne la formule suivante :

$$a_n = \frac{m \cdot \sum_{k=n-m}^n x_k \cdot y_k - \sum_{k=n-m}^n x_k \cdot \sum_{k=n-m}^n y_k}{m \cdot \sum_{k=n-m}^n x_k^2 - \left( \sum_{k=n-m}^n x_k \right)^2} \quad \text{avec } m: \text{ le nombre de points utilisés}$$

On implémente ce filtre dans un VI sous LabVIEW de cette manière :



Cette fois on remarque que la vitesse estimée est beaucoup moins fluctuante et plus proche des valeurs attendues. De plus la température est corrigée plus rapidement vue que l'on fait le calcul avec une période d'échantillonnage de 1 ms. Pour obtenir une estimation avec assez d'efficacité, on prend les 2000 derniers points ( $\sim 2$  s), au lieu de 0.5 point/s avec le filtre passe-bas.

## Asservissement en position et vitesse par correcteur proportionnel

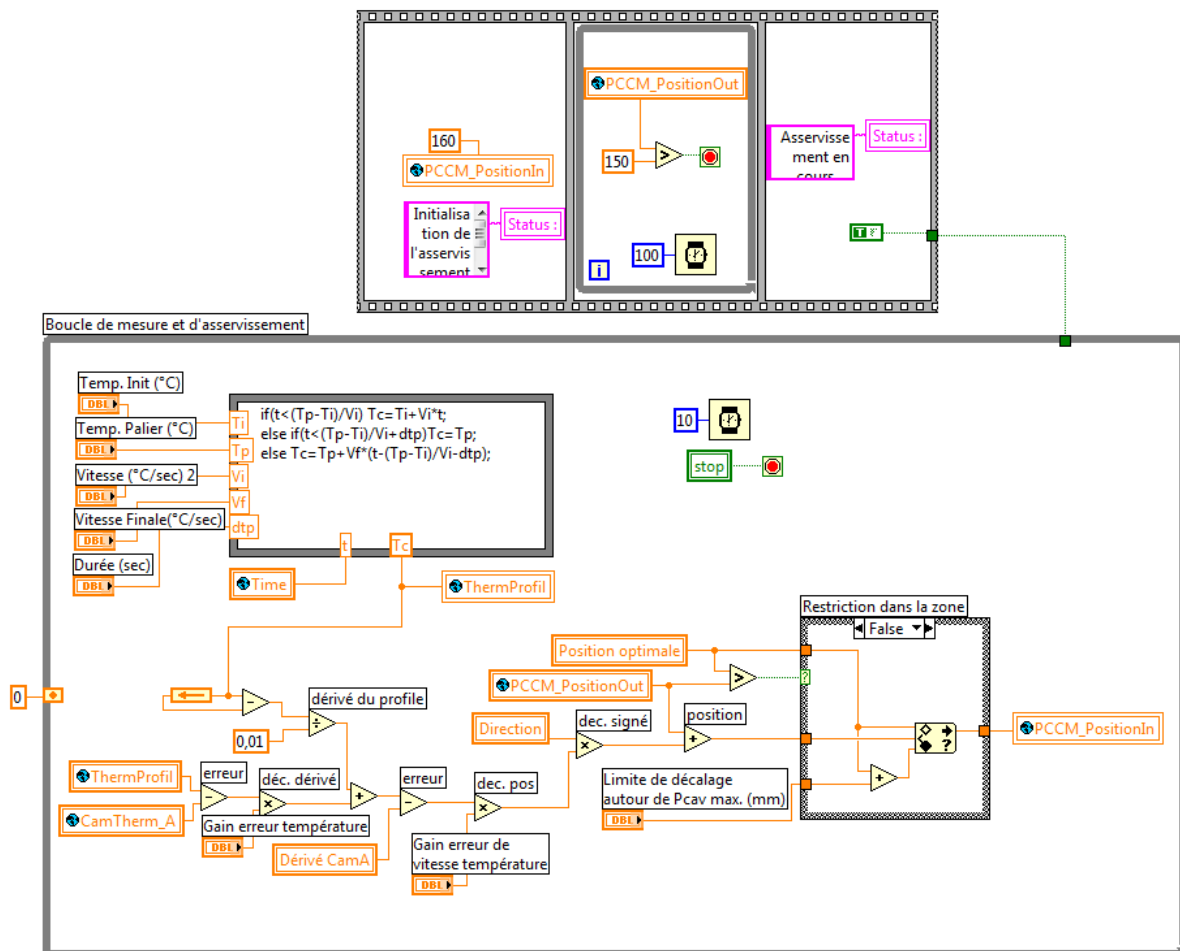
Cette méthode d'asservissement est cette fois régie par les équations :

$$Deriv_n = K \cdot (Tc_n - Tprofil_n) + DerivTprofil_n$$

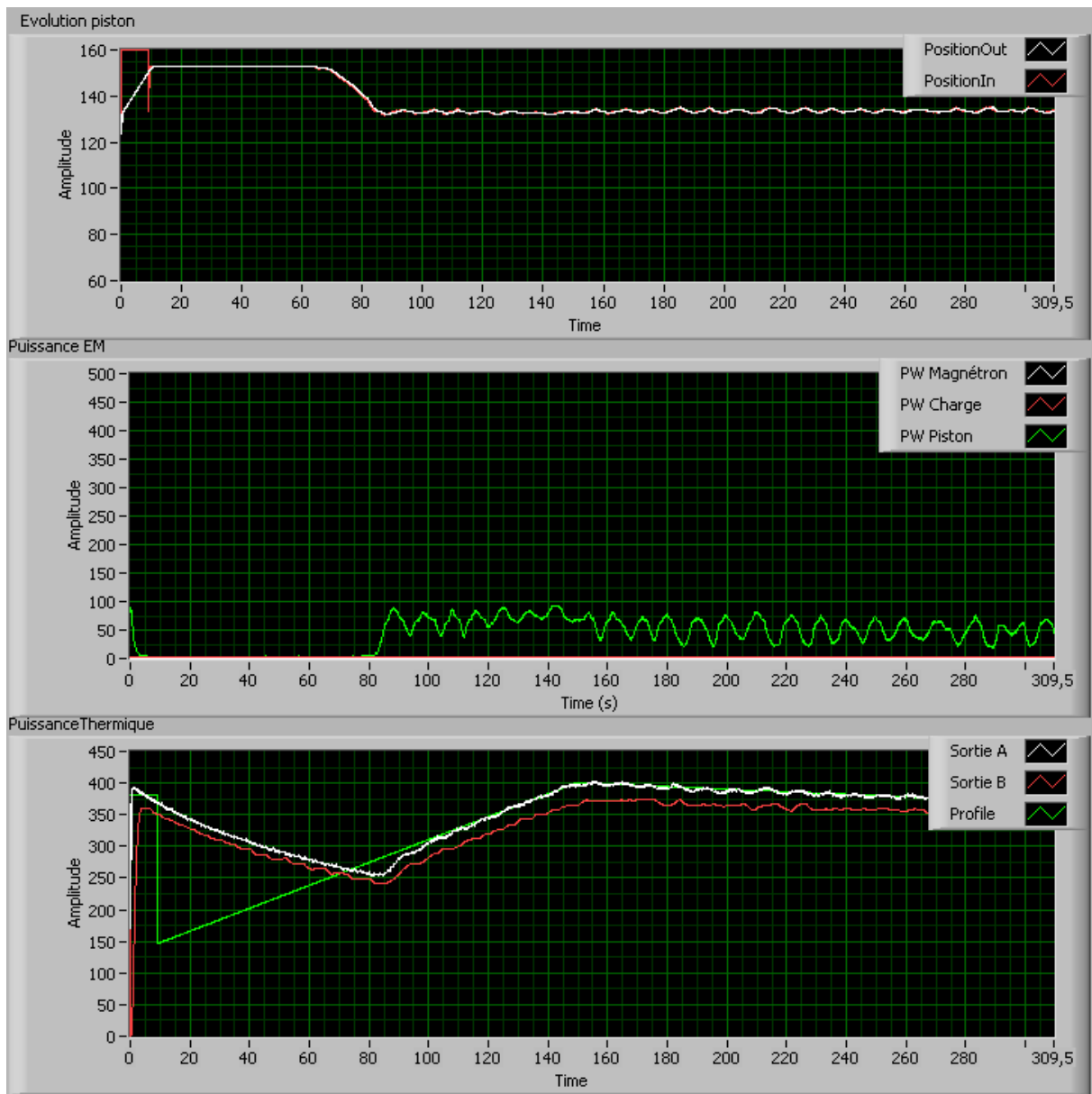
$$PositionIn_n = PositionOut_n + DK2 \cdot direction \cdot (Deriv_n - DrivTc_n)$$

avec DerivTc l'estimation de la pente de température.

Le gain K de l'erreur en température et le gain K2 de l'erreur sur la pente sont déterminés ensuite empiriquement de façon à avoir la réponse la plus précise possible.



Pendant le test de ce programme on visualise ceci :



Avec cet asservissement on arrive à obtenir une réponse avec une erreur de l'ordre de +5°C à -5 °C sur l'affichage mais lorsque l'on regarde les valeurs sur le logiciel de la caméra on remarque que les fluctuations sont en fait plus faibles, ce qui est relativement acceptable comme erreur.

## E. INTERFACE UTILISATEUR

L'interface utilisateur est la représentation graphique des variables locales et ce décline en deux partie : interface de visualisation, interface de configuration :

Configuration    Visualisation du système    Status : Asservissement en cours ...

**Contrôle**

Auto/Manuel  
 Auto  
 Manuel

Temps (s)  
81,849

Puissance kW  
0

**STOP**

---

**Asservissement**

PW maximale  
77,4497

Position optimale  
130,156

Direction  
1

Dérivé CamA  
-1,84211

**Profil de température**

Temp. Init (°C) → 230    Vitesse (°C/sec) 2 → 1,8    Temp. Palier (°C) → 400    Durée (sec) → 3    Vitesse Finale(°C/sec) → -5,2    Temp. Finale (°C)

---

**Paramètres asservissement**

Limite supérieur (< 150) de position (mm) 150	Gain erreur de vitesse 0,2	Seuil déclencheur de détection de pw piston(W) 10
Limite inférieur (> 70) de position (mm) 70	Gain erreur température 0,1	Limite de décalage autour P <sub>cav</sub> max. (mm) 20

---

**Paramètres caméra**

Temp. A max (°C) 2000	Temp. B max (°C) 2000
Temp. A min (°C) 0	Temp. B min (°C) 0

---

**Paramètres affichage**

Nombre points affichés 10000	Période affichage(ms) 100
---------------------------------	------------------------------

---

Fichier de sortie

**Température**

Temp. profile (°C)  
377,323

Temp. canal A (°C)  
370,273

Temp. canal B (°C)  
306,343

---

**Puissance**

PW Charge à eau  
2,69668

PW Magnétron  
0

PW Piston  
72,067

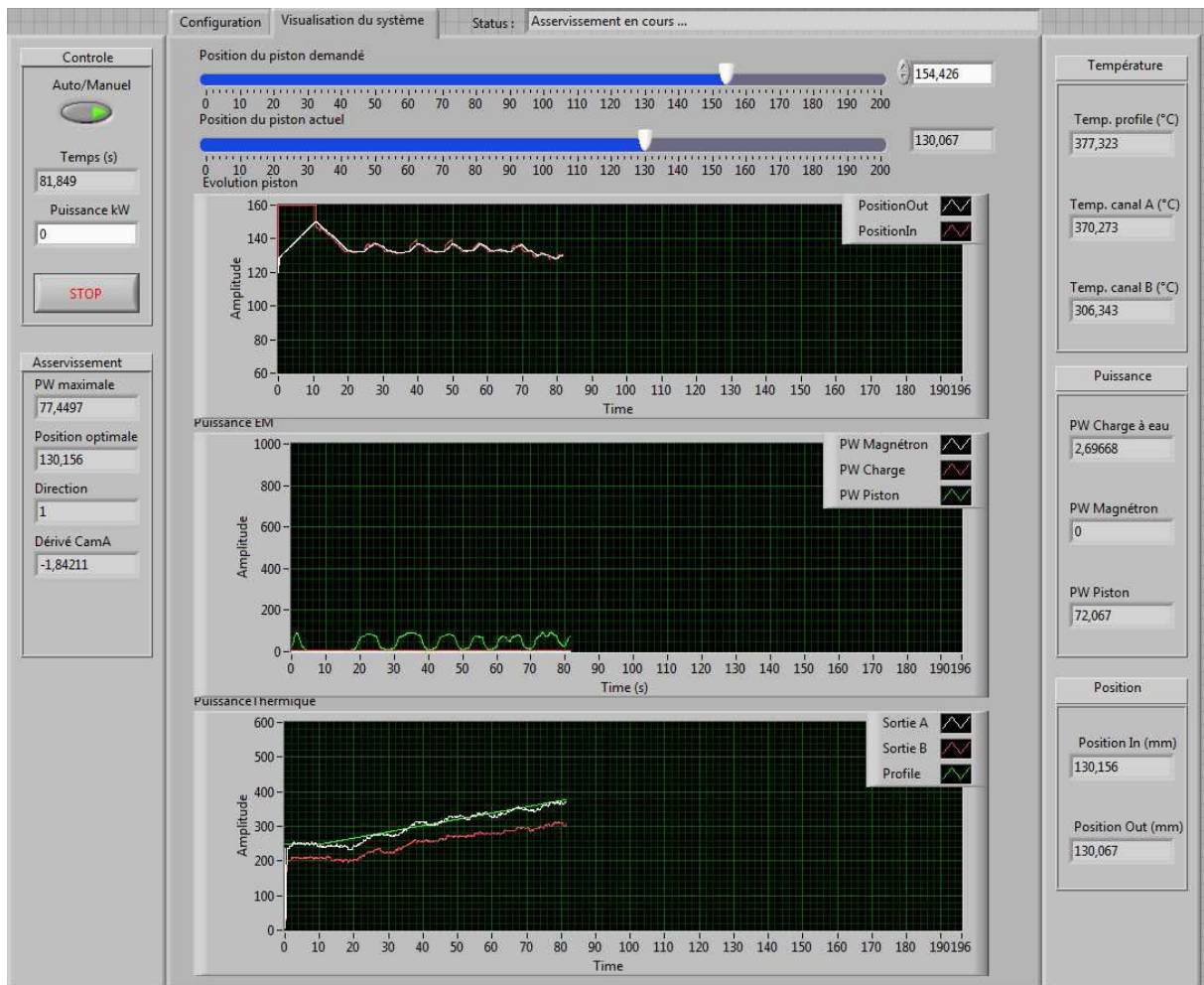
---

**Position**

Position In (mm)  
130,156

Position Out (mm)  
130,067

Interface de configuration



Interface de visualisation

## Références Bibliographiques

Datasheet du capteur LM35 :

<http://www.datasheetcatalog.org/datasheet/nationalsemiconductor/DS005516.PDF>

Manuel d'utilisation de la caméra A-40 M

Cours de traitement du signal de Feng Gang

Cours d'asservissement numérique de Pierre-Yves Coulomb

Technologie frittage par micro-ondes Dr Hocine SI Mohand, TIC(Technology International Consulting)

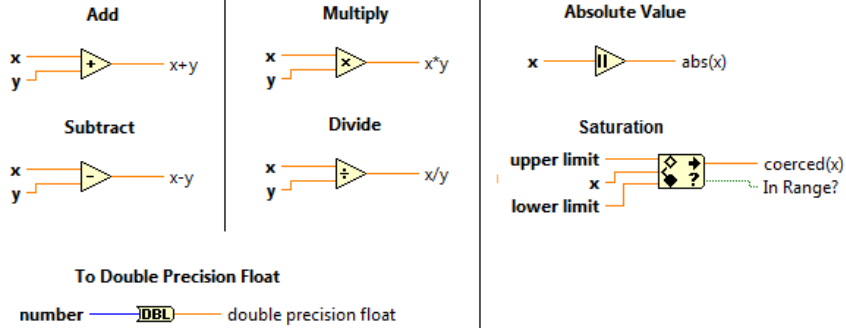
<http://fr.wikipedia.org/wiki/Frittage> : définition et généralités sur le frittage

<http://www.ampereurope.org/> : détails sur le processus de frittage

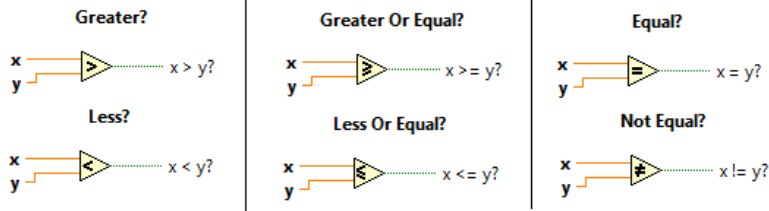
« Mise en route, et premiers essais d'un four de frittage micro-ondes », PFE de David Avogadro

# Annexe Tutorial

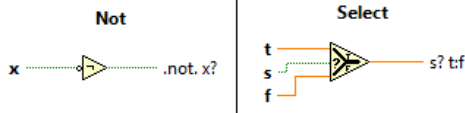
## Opérations algébriques



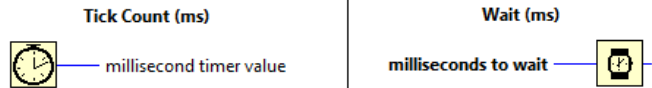
## Opérations de comparaisons



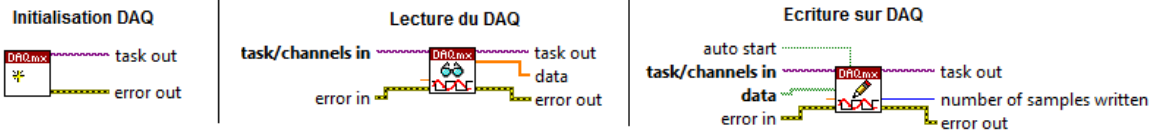
## Opérations binaires



## Timer



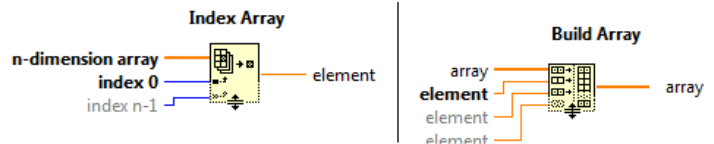
## Opérations sur DAQ



## Variables



## Opérations sur tableaux









## DEVELOPPEMENT D'UN FOUR DE FRITTAGE MICRO-ONDES MONOMODE ET FRITTAGE DE POUDRES CERAMIQUE ET METALLIQUE

Un four micro-ondes à cavité monomode a été développé afin d'étudier le frittage de poudres céramiques et métalliques. Dans cette cavité  $TE_{10p}$ , la distribution du champ électromagnétique est maîtrisée et les matériaux peuvent être chauffés en champ soit électrique soit magnétique prépondérant. Le chauffage micro-onde peut être direct ou hybride (avec suscepteur). La température est mesurée par une caméra infrarouge. Un pilotage en température original a été mis au point. Des études comparatives entre les frittages micro-ondes et conventionnel ont porté sur une poudre céramique et une poudre métallique. Pour la zircone yttrée avec une vitesse de chauffage de  $25^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , le chauffage micro-ondes décale d'une centaine de degrés les courbes de densification, accélère les cinétiques pendant les premiers stades et permet de limiter la croissance granulaire. Pour une poudre de nickel submicronique un frittage n'a été observé qu'en champ électrique dominant et en présence d'un plasma.

### MOTS-CLEFS :

frittage micro-ondes, cavité monomode, zircone yttrée 2Y-TZP, poudre de nickel, thermographie IR

## DEVELOPMENT OF A SINGLE-MODE MICROWAVE CAVITY AND SINTERING OF CERAMIC AND METALLIC POWDERS

A single-mode microwave cavity was developed to study the sintering of ceramic and metallic powders. In this  $TE_{10p}$  cavity, the electromagnetic pattern is controlled and the materials can be heated up under either predominant electric or magnetic field. Samples can be microwave-sintered directly or with a cylindrical SiC susceptor. The temperature was measured by an infrared camera. A new microwave heating procedure was proposed to control a thermal cycle. Comparatives studies between microwave and conventional sintering processes were achieved on ceramic and metallic powders. Microwave sintering of yttria-doped zirconia at  $25^{\circ}\text{C}/\text{min}$  heating rate led to a shift of the densification curve, an enhancement of the kinetics of densification during the initial and intermediate stages and a restricted grain growth. A submicronic nickel powder can be only sintered by plasma-induced heating under predominant electric field.

### KEYWORDS:

microwave sintering, single-mode cavity, yttria-doped zirconia, nickel powder, IR thermography

Laboratoire de **S**cience et **I**ngénierie des **M**atériaux et **P**rocédés (**SIMaP**)  
UMR 5266 CNRS / Grenoble INP / UJF  
1130 rue de la piscine – BP 75  
F-38402 SAINT-MARTIN D'HERES Cedex