



**HAL**  
open science

# Spark plasma sintering : couplage entre les approches : modélisation, instrumentation et matériaux

Charles Manière

► **To cite this version:**

Charles Manière. Spark plasma sintering : couplage entre les approches : modélisation, instrumentation et matériaux. Matériaux. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2015. Français. NNT : 2015TOU30219 . tel-01362029v2

**HAL Id: tel-01362029**

**<https://theses.hal.science/tel-01362029v2>**

Submitted on 8 Sep 2016

**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.



# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Présentée et soutenue le 16/11/2015 par :

**Charles MANIERE**

**Spark Plasma Sintering : couplage entre les approches Modélisation,  
Instrumentation et Matériaux**

---

---

### JURY

PHILIPPE OLIVIER	Professeur Université Paul Sabatier	Président du jury
OLIVIER GUILLON	Professeur Docteur Ingénieur Université de RWTH Aachen	Rapporteur
KIM VANMEENSEL	Professeur Université de Leuven-KU	Rapporteur
PHILIPPE ROGEON	Maître de conférences Université de Bretagne-Sud	Examineur

---

#### École doctorale et spécialité :

*SDM : Sciences et génie des matériaux - CO034*

#### Unité de Recherche :

*Institut Carnot CIRIMAT et CEMES*

#### Directeur(s) de Thèse :

*Claude ESTOURNÈS (DR-CNRS) et Lise DURAND (MCF- UPS)*

#### Rapporteurs :

*Olivier GUILLON et Kim VANMEENSEL*



# Remerciements

Je tiens à remercier les directeurs de mes deux laboratoires d'accueil, avec pour le CIRIMAT, Francis Maury et Philippe Tailhades et pour le CEMES Alain Claverie et Virginie Serin.

Je remercie également les directeurs de mes deux équipes respectives avec côté CIRIMAT, Christophe Laurent pour l'équipe *Nanocomposites et Nanotubes de Carbone* (NNC) et côté CEMES, Marie-José Casanove pour l'équipe *Matériaux Cristallins sous Contraintes* (MC2).

Je tiens tout particulièrement à remercier mes directeurs de thèse, Claude Estournès, directeur de recherche au CNRS / CIRIMAT et Lise Durand, Maître de conférence à l'université Toulouse III Paul Sabatier / CEMES. Tous deux ont fait preuve d'un grand soutien à mon égard sur le plan théorique, expérimental, logistique et très important au niveau humain. Je tiens en particulier à remercier Lise pour avoir complété ma formation en mécanique et en calcul tensoriel et pour m'avoir apporté son soutien sur toute la partie physique "dure" et pour les corrections. Je tiens également à remercier en particulier Claude pour son aide concernant la partie science des matériaux (théorique et expérimentale) et pour m'avoir fait bénéficier de sa grande expertise concernant le frittage SPS et enfin pour son soutien m'ayant permis de pousser mes travaux le plus loin possible.

Je souhaite remercier Olivier Guillon, professeur à l'université de Aachen (en Allemagne) et Kim Vanmeensel professeur à l'université de KU Leuven (en Belgique), pour avoir accepté d'évaluer mes travaux de thèse.

Je tiens également à remercier, Philippe Rogeon, Maître de conférence à l'université Bretagne sud (HDR) d'avoir participé comme examinateur à mon jury de thèse.

Je tiens également à remercier Philippe Olivier, Professeur à l'université Toulouse III Paul Sabatier de m'avoir fait l'honneur de présider ce jury de thèse.

Je tiens à remercier l'université Toulouse III Paul Sabatier pour le financement du projet SPS-MODMAT et notamment le contrat doctoral associé.

Je tiens à remercier Geoffroy Chevallier et Isabelle Vauthier et toutes les personnes travaillants de près ou de loin à la PNF<sup>2</sup> contribuant à une excellente ambiance de travail. Je tiens tout particulièrement à remercier Geoffroy pour les discussions et son expertise expérimentale. Je tiens également à souligner l'aide apporté par Yannick Beynet et Romain Epherre sur le plan expérimental et pour les discussions ; ces derniers sont en train de monter une startup sur le thème du frittage SPS, je leur souhaite de réussir dans leur entreprise et une croissance à au moins trois chiffres.

Je souhaite également remercier Ugras Kus, Julitte Huez, Denis Delagnes et Ronan Mainguy pour la collaboration fructueuse qu'il a été possible de mener sur l'étude du fluage et de la compaction de l'alliage TA6V.

Je tiens tout particulièrement à remercier Christophe Laurent et Claire Arnaud pour notre collaboration fructueuse réalisé sur le frittage SPS du Cuivre.

Je tiens également à remercier, Alicia Weibel pour l'aide précieuse apporté en microscopie électronique à balayage, les discussions et les travaux scientifiques réalisés concernant les mécanismes de densification et de croissance granulaire.

Je tiens également à remercier, Vincent Bley pour les discussions et travaux scientifiques réalisés concernant les mesures de courant pulsé et les mesures de résistances de contact électriques.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres de l'ANR IMPULSE pour les longues discussions très riches scientifiquement auxquelles nous avons pu prendre part.

Je remercie également Catherine Elissalde, Gilles Philippot, Mario Maglione pour ma participation à l'étude du champ de contrainte local pour le (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub>.

Je remercie également l'ensemble du personnel de Toulouse Tech transfert pour le support apporté pour le dépôt et la valorisation du brevet MOBILINT.

Je tiens à saluer les membres de l'équipe NNC et du laboratoire pour l'accueil et la disponibilité durant ces trois années de thèse et à l'occasion du stage précédemment effectué.

Je tiens également à saluer Alain Couret et Jean-Philippe Monchoux pour mon accueil au CEMES et je tiens à souligner la qualité et la grande efficacité des rapports inter-laboratoires dont ma thèse à fait l'objet.

Je remercie également Pierre Abeilhou du pôle ingénierie du CEMES pour les différentes manips d'impression 3D et Christophe Collard pour l'aide informatique apportée.

Je tiens également à saluer toutes les personnes du CIRIMAT et du CEMES que j'ai rencontrées.

Je remercie pour finir mes parents, mon beau-frère, ma sœur, ma cousine, ma tante et ma famille dans son ensemble, pour leur soutien et l'aide apportée sur le manuscrit de thèse.

# Sommaire

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I. Bibliographie</b>	<b>5</b>
I.1 Le positionnement du frittage SPS par rapport à d'autres techniques	7
I.1.1 Définition du frittage	7
I.1.2 Le frittage sous charge	8
I.1.3 Le frittage assisté par courant électrique	9
I.1.4 Le procédé Spark Plasma Sintering	10
I.2 État de l'art de la modélisation électrothermique du frittage SPS	11
I.2.1 L'intérêt de la modélisation MEF du procédé SPS	11
I.2.2 Les premières modélisations	13
I.2.3 Modélisations de 2003 à 2015	15
I.3 Les résistances de contacts	24
I.3.1 Généralités	24
I.3.2 Influence des résistances de contact dans le procédé SPS	25
I.4 Conclusion sur la modélisation du chauffage par effet Joule du procédé SPS	26
I.5 Modélisation mécanique du frittage	27
I.5.1 Généralités	27
I.5.2 Les modèles de frittage sous charge	34
I.6 Conclusion sur la modélisation du frittage	45
<b>Chapitre II. Simulation électrothermique du procédé SPS</b>	<b>47</b>
II.1 Introduction	49
II.2 Paramètres de simulation	50
II.2.1 Conditions aux limites	50
II.2.2 Propriétés des matériaux utilisés	51

II.3	Mesures des résistances électriques de contact graphite/papyex/graphite en fonction de la pression et de la température	52
II.4	Étalonnage des résistances électriques et thermiques de contact	57
II.4.1	Mise en évidence expérimentale des phénomènes de contact	57
II.4.2	Étalonnage de la résistance thermique de contact électrode/entretoise	59
II.4.3	Prise en compte du contact vertical (graphite/papyex/graphite)	61
II.5	Modèle étendu des résistances de contact	68
II.5.1	Configurations et cycles utilisés	68
II.5.2	Prise en compte du déplacement dû au frittage	70
II.5.3	Résultats des étalonnages	71
II.5.4	Vérification	79
II.6	Conclusion	82
<b>Chapitre III.</b>	<b>Modélisation mécanique du frittage appliquée au procédé SPS.....</b>	<b>83</b>
III.1	Introduction	85
III.2	Identification des paramètres de frittage	87
III.2.1	Méthode d'identification par essais de fluage	87
III.2.2	Méthode d'identification rapide par essais SPS	99
III.3	Conclusion	128
<b>Chapitre IV.</b>	<b>Modélisation du frottement poudre/moule à haute température.....</b>	<b>131</b>
IV.1	Introduction	133
IV.2	Généralités sur le frottement	133
IV.3	Simulation MEF du frottement	135
IV.3.1	Détermination théorique de l'expression de la condition de frontière	135
IV.3.2	Mise en évidence de l'effet du frottement sur la densification par la simulation	137
IV.4	Caractérisation expérimentale du frottement poudre/moule	139
IV.4.1	Procédure expérimentale	139
IV.4.2	Identification du coefficient de frottement	141
IV.5	Conclusion	143
<b>Chapitre V.</b>	<b>Voies d'optimisations possibles de la technologie SPS.....</b>	<b>145</b>

V.1	Introduction	147
V.2	Étude du frittage SPS par l'approche multi-échantillons	148
V.2.1	Outillage multi-échantillons en configuration parallèle	148
V.2.2	Outillage multi-échantillons en configuration parallèle et série	160
V.3	Conclusion sur l'approche multi-échantillons	164
V.4	Élaboration de formes complexes par frittage SPS	165
V.4.1	Problème des différences de hauteur	165
V.4.2	Approche par matériau sacrificiel	170
V.4.3	Approche par la méthode d'interfaces mobiles	175
V.5	Conclusion sur les approches forme complexe	180
<b>Conclusion et perspectives .....</b>		<b>183</b>





## Liste des figures

Figure I-1 Élimination des différents types de porosité au cours du frittage .....	8
Figure I-2 Représentation des sollicitations en compression: a) Uniaxiale b) Isostatique.....	9
Figure I-3 Schéma général du procédé SPS. ....	10
Figure I-4 Exemple de chaîne de production SPS en tunnel.....	11
Figure I-5 Représentation de l'évolution du nombre de publications et de citations sur le thème "spark plasma sintering". ....	14
Figure I-6 Configuration géométrique employée dans le calcul MEF des travaux de Yoneya et Ikeshoji.....	15
Figure I-7 Différentes configurations géométriques utilisées pour mesurer successivement les différentes résistances électriques de contact (Vanmeensel et al., 2005): a) sans contact b) avec contacts horizontaux c) avec contacts horizontaux (bleu) et verticaux (rouge). ....	18
Figure I-8 Densité de courant pour un échantillon de $Al_2O_3$ le long d'un axe d'étude orienté : a) selon le diamètre du moule en traversant l'échantillon b) le long de l'axe de la colonne SPS (reconstitué à partir de l'exemple de Pavia et al (Pavia et al., 2013))......	19
Figure I-9 Répartition de la température pour un échantillon de $Al_2O_3$ le long d'un axe d'étude orienté : a) le long de l'axe de la colonne SPS b) selon le diamètre du moule en traversant l'échantillon (reconstitué à partir de l'exemple de Pavia et al (Pavia et al., 2013)). ....	19
Figure I-10 a) Répartition de la température en palier b) configuration géométrique utilisée (reconstitué à partir des données de Pavia et al (Pavia et al., 2013)). ....	21
Figure I-11 Répartition du champ de contrainte de von Mises (reconstitué avec la configuration géométrique de Pavia et al (Pavia et al., 2013)). ....	23
Figure I-12 Passage du courant électrique (lignes rouges) à travers une interface de contact rugueuse. ....	25
Figure I-13 Représentation des composantes du tenseur des contraintes dans un repère orthonormé xyz.....	27
Figure I-14 Trois stades de la courbe type de fluage à température constante.....	31
Figure I-15 Représentation des flux atomiques au niveau du grain en compression dans le cas du fluage par diffusion en volume : à gauche, pour un grain rectangulaire (Rahaman, 2008), à droite, pour des grains de matière polycristallins (les formes en pointillé représentent des déformées du fluage). ....	33
Figure I-16 Fonctions c et f issus de modèles théoriques (a, b). Fonctions c et f issus d'essais expérimentaux sur matériau poreux (c, d). ....	38
Figure II-1 Emplacement des contacts internes dans la colonne SPS. ....	51

Figure II-2 Deux configurations de mesures des RCE. ....	53
Figure II-3 Disposition des essais expérimentaux. ....	54
Figure II-4 Représentation des effets relatifs des différents paramètres testés. ....	55
Figure II-5 Résistance électrique de contact en fonction de la pression et de la température, a) Représentation 3D b) Projection 2D. ....	56
Figure II-6 Image thermique en matrice ouverte: a) Echantillon en alumine b) Echantillon en cuivre. ....	58
Figure II-7 Schéma de la colonne SPS avec les emplacements des différents thermocouples. ....	59
Figure II-8 Mesure de température au niveau des thermocouples de contrôle et sur le papyex en matrice fermée. ....	59
Figure II-9 Schéma de la colonne SPS à un piston. ....	60
Figure II-10 a) Cycles thermiques expérimentaux/simulés au niveau de deux thermocouples après étalonnage. b) Coupe verticale de la température simulée en début de palier. ....	61
Figure II-11 Simulation sans prise en compte des effets de contact a) maillage b) champ de température c) températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (courbes continues) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). ....	62
Figure II-12 Simulations après étalonnage de la résistance électrique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (trait plein) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé. ....	63
Figure II-13 Simulations après étalonnage de la résistance thermique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (trait plein) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé. ....	64
Figure II-14 Pertes résistives du modèle de chauffage par effet Joule. ....	65
Figure II-15 Simulations après étalonnage de la résistance thermique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (courbes continues) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé. ....	65
Figure II-16 a) Champ de température simulé b) Champ de température expérimental (remarquons que les légendes de couleurs de (a) et (b) sont différentes). ....	66
Figure II-17 Configurations géométriques utilisées pour l'identification du modèle de contacts étendu, avec (a b c) étalonnage des contacts au niveau des contacts des entretoises et électrodes, (d e f) étalonnage des contacts au niveau des pistons, moule , papyex et échantillon. ....	69
Figure II-18 Emplacement des différents contacts considérés dans les simulations. ....	70

Figure II-19 Courbes de déplacement calculées pour les essais de diamètre 10, 20 et 30 mm.....	71
Figure II-20 Résultat de l'étalonnage du modèle de contact à un piston : en haut) coupe verticale de la température durant la montée et le refroidissement, en bas) les courbes expérimentales et simulées prises au niveau des thermocouples.....	72
Figure II-21 Résistances thermiques (a) et électriques (b) de contact sur les parties électrodes et entretoises. ....	72
Figure II-22 Etalonnage du modèle de contact en configuration homothétique : en haut) coupe verticale de la température durant la montée et le refroidissement, en bas) les courbes expérimentales et simulées prises au niveau des thermocouples après étalonnage. ....	74
Figure II-23 Photographies du champ de températures au cours de l'essai de diamètre 30mm pour différentes températures prises au niveau du moule. ....	75
Figure II-24 Valeurs des résistances de contacts piston/entretoise: (à gauche) valeurs de RCE (à droite) valeurs de RCT.....	77
Figure II-25 Valeurs des résistances de contacts thermiques : (à gauche) piston/échantillon (à droite) échantillon/moule. ....	77
Figure II-26 Valeurs des résistances de contacts graphite/papyex/graphite: (à gauche) valeurs de R0 (à droite) valeurs de RTp. ....	77
Figure II-27 Dépendance des facteurs Fe et FT en fonction du diamètre de piston ou de l'écart de température maximal entre les pistons et le moule.....	78
Figure II-28 Configuration géométrique utilisée pour l'expérience de vérification.....	79
Figure II-29 a) Champ de température simulé à 700s b) photographie en montée c) champ de température simulé à 900s. ....	80
Figure II-30 Confrontation des températures expérimentales/simulées avec (a,b) et sans (c,d) résistances de contact.....	81
Figure III-1 Rappel des principales équations intervenant dans les modèles de densification. ....	85
Figure III-2 Configurations pour essais de fluage avec chauffage a) direct (échantillon entre deux pistons) b) indirect (en matrice fendue et échantillon isolé électriquement par du spray BN).....	87
Figure III-3 Force appliquée et taux de déformation calculé à partir des données d'extensométrie (données machine en gris et issues d'une caméra optique dédiée en bleu) pour les essais de fluage avec chauffage direct. ....	89
Figure III-4 Régression linéaire des points expérimentaux pour différentes températures (aq309, etc: nom des essais).....	90
Figure III-5 Photographies de l'éprouvette en début et fin de palier thermique.....	91

Figure III-6 Champ de température simulée pour la configuration de chauffage direct sans résistance thermique de contact (avec uniquement la valeur de conductivité thermique de papyex de 4 W/(mK)).....	92
Figure III-7 État final des éprouvettes après les essais de fluage en configuration de chauffage indirect. ....	93
Figure III-8 Force appliquée et taux de déformation pour les essais de fluage en configuration de chauffage indirect. ....	94
Figure III-9 Régression linéaire des points expérimentaux pour différentes températures en configuration de chauffage indirect. ....	95
Figure III-10 Comparaison des valeurs de $n$ identifiées par cette étude et issus de la littérature en fonction de la température (Surand, 2013; Xue et al., 2011). ....	95
Figure III-11 Déplacement et force appliquée pour a, b) les essais de fluage poreux c) l'essai de compression en matrice.....	97
Figure III-12 Détermination des fonctions $c$ et $f$ : a) fonctions expérimentales $c+f$ et $4/c+1/f$ b) fonction $c$ obtenue c) fonction $f$ obtenue. ....	98
Figure III-13 Courbes de densification expérimentales/modélisées pour les essais à 50 et 100K/min. ....	99
Figure III-14 Cycle de densité relative et de température de l'échantillon. ....	103
Figure III-15 Détermination de $A_0$ et $Q$ par régression linéaire pour différents $n$ . ....	104
Figure III-16 Comparaison des courbes de densité relative expérimentale et simulées. ....	105
Figure III-17 Courbes de densification expérimentales et calculées pour différentes conditions expérimentales de pression et de vitesses de montées en température. ....	108
Figure III-18 Évolution des paramètres de fluage $A_0$ et $Q$ tracés en fonction de la vitesse de montée en température. ....	109
Figure III-19 Confrontation expérimentale du modèle de frittage avec prise en compte de la vitesse de densification. ....	109
Figure III-20 a) Courbes de densification du modèle de frittage avec prise en compte de la croissance granulaire pour différentes énergies d'activation et expérimentale. b) Évolution du diamètre de grain modélisé pour une énergie d'activation de 520kJ/mol. ....	111
Figure III-21 Image MEB de fracture de l'échantillon obtenue dans l'expérience à 75MPa et 100K/min. ....	112
Figure III-22 Images MEB des fractures des échantillons obtenus avec les essais en paliers interrompus. ....	113
Figure III-23 Identification des paramètres de croissance granulaire a) Détermination de l'exposant $m_G$ b) Détermination de la constante $k_0$ et de l'énergie d'activation $Q_G$ . ....	114
Figure III-24 Valeurs des tailles de grain expérimentales et calculées. ....	115
Figure III-25 Modèle de frittage avec et sans prise en compte de la croissance granulaire. ....	116

Figure III-26 Courbes de densité relative modélisées pour différentes valeurs de n et pour différents matériaux.....	119
Figure III-27 Courbes de déplacement et de contraintes par la méthode de Li et al.....	121
Figure III-28 Valeur des fonctions c et f de Besson (Besson, 1990).....	125
Figure III-29 Courbes de régression linéaire pour l'identification de $A_0$ et Q avec le modèle d'Abouaf.....	125
Figure III-30 Densités relatives expérimentales et calculées pour différentes valeurs de n.	126
Figure IV-1 Force de frottement des lois de frottement viscoplastique et de Coulomb en fonction de la vitesse de glissement.....	135
Figure IV-2 Emplacement des conditions aux limites pour les simulations d'un échantillon de poudre cylindrique.....	137
Figure IV-3 Simulation de la densification d'un échantillon cylindrique avec différents coefficients de frottement a) courbes de déplacement b) champ de déplacement et de densification à 570s.....	138
Figure IV-4 Géométrie employée pour les essais d'identification du coefficient de frottement.....	140
Figure IV-5 a) interface poudre/moule avec séparateur b) spray graphite c) spray BN d) papyex.....	141
Figure IV-6 Détermination des coefficients de frottement par comparaison de la courbure des champs de déplacement expérimentaux/simulés.....	142
Figure V-1 Montage parallèle à 37 échantillons.....	149
Figure V-2 Cycle de température et de pression pour l'étalonnage.....	150
Figure V-3 Étalonage des résistances de contact a) géométrie et emplacement des thermocouples d'étalonnage b) courbes de température expérimentales/simulées après étalonnage.....	150
Figure V-4 Emplacement des résistances des contacts étalonnées.....	152
Figure V-5 Cycle de température et de pression pour la simulation ETMM à un étage.....	153
Figure V-6 Simulation ETMM a) champ de température (les flèches noires sont les vecteurs de densité de courant) b) champ de densification c) champ de taille de grain.....	153
Figure V-7 Cycle de pression et de température déterminé par imitation du premier cycle réalisé en contrôle manuel.....	154
Figure V-8 Repérage de chaque échantillon suivant sa position.....	155
Figure V-9 Images MEB de fracture pour les premiers essais à 37 échantillons.....	156
Figure V-10 Essais correctifs envisagés par la simulation ET pour une homogénéisation du champ de température (les flèches noires sont les vecteurs densité de courant).....	157
Figure V-11 Images MEB de fracture pour l'essai correctif n°1.....	158
Figure V-12 Images MEB de fracture pour l'essai correctif n°3.....	159

Figure V-13 Géométrie des empilements à trois étages avec et sans entretoises intermédiaires.....	161
Figure V-14 Simulations d'optimisation du champ de température en configuration série/parallèle.....	162
Figure V-15 Simulations d'optimisation du champ de température en configuration série/parallèle avec moule externe. ....	163
Figure V-16 Configuration en T dans les travaux de a) Mondalek et al(Mondalek et al., 2011) b) Matsugi el al(Matsugi, Kuramoto, Yanagisawa, et al., 2003). ....	166
Figure V-17 Simulation de la densification et du champ de déplacement vertical d'une pièce cylindrique avec "marche". ....	167
Figure V-18 Géométrie de la pièce ASTM. ....	167
Figure V-19 Champ de densité relative et champ de déplacement vertical simulé pour la pièce ASTM.....	168
Figure V-20 Image MEB de la pièce ASTM obtenue en fin de frittage. ....	169
Figure V-21 Simulation de l'état de densification en fin de cycle pour la pièce cylindrique avec "marche", avec loi de fluage de l'alliage TA6V. ....	170
Figure V-22 Géométrie de la pièce ASTM avec anneau de poudre sacrificiel.....	171
Figure V-23 Champ de densification et de déplacement simulé pour la pièce ASTM avec anneau de poudre sacrificiel.....	172
Figure V-24 Géométrie employée pour les expériences utilisant la pièce ASTM. ....	173
Figure V-25 Simulation ETMM du champ de taille de grains de la pièce ASTM avec anneau sacrificiel. ....	173
Figure V-26(en haut) Photographie de pièces obtenues pour les trois essais (en bas) mise en évidence de l'aspect translucide de la pièce AP379 à la lumière de soleil. ....	174
Figure V-27 Image MEB de fracture en deux endroits de la pièce ASTM. ....	175
Figure V-28 Description de la méthode d'interface mobile.....	176
Figure V-29 Photographies du démoulage de la demi-sphère et de la sphère complète.....	177
Figure V-30 Méthode d'interface mobile avec une interface de séparation en papyex.....	178
Figure V-31 Photographie des échantillons obtenus avec séparation papyex. ....	179
Figure V-32 Image MEB de fracture sur la partie sacrificielle de la pyramide. ....	179
Figure V-33 Pièces obtenues avec la méthode « mobilint » avec deux matériaux. ....	180
Figure V-34 Images MEB de fracture obtenues au centre et au bord du cône en zircone... 180	180







---

---

# Introduction

---

---



Le procédé de frittage "Spark Plasma Sintering" (SPS) rencontre beaucoup de succès auprès du milieu scientifique depuis les quinze dernières années de par ses temps de frittage courts, son contrôle microstructural et sa très large gamme d'utilisation de matériaux. En effet ce procédé permet de densifier des poudres de matériaux très différents parmi les principales classes (céramiques, métaux, polymères, matériaux composites). Outre le frittage, ce procédé permet également un très large éventail de processus de mises en forme tels que le forgeage, l'assemblage/soudage de pièces, la consolidation de poudres, etc.

Bien que ce procédé soit très présent dans le monde de la recherche, il est très peu employé pour la production industrielle. Les principales raisons à cela sont que sous sa forme la plus courante cette technologie bien que rapide ne permet que le frittage d'un seul échantillon à la fois. Le frittage simultané de plusieurs échantillons est techniquement possible, mais beaucoup plus difficile à maîtriser. L'autre raison est que cette technologie basée sur le principe de la compression uniaxiale en matrice (avec un chauffage par effet Joule) rend le frittage de formes complexes denses plus difficile.

Le procédé SPS a longtemps été une boîte noire rendant difficile la maîtrise du champ de température et de pression dans les outillages. La simulation MEF du procédé permet de répondre à une partie de ces problématiques, mais plusieurs points rendent cette approche difficile à mettre en œuvre :

- La modélisation du chauffage par effet Joule du procédé demande de prendre en compte les résistances électriques et thermiques de contact présentes au niveau de toutes les interfaces de l'outillage. Mais ces résistances de contact varient fortement avec la pression et la température ce qui rend leurs identifications plus difficiles.

- La modélisation du frittage demande de longues campagnes expérimentales pour l'identification des différents paramètres de simulation.

- En fonction du logiciel de simulation utilisé, il n'est pas toujours évident d'effectuer un couplage entre les physiques de l'effet Joule et celles du frittage.

Dans ce contexte, ce travail de thèse a permis l'implémentation couplée de l'effet Joule et du frittage sous charge et l'identification des paramètres de simulation du procédé SPS ainsi que la mise en pratique du modèle obtenu pour l'optimisation du procédé.

Le premier chapitre de thèse est un état de l'art bibliographique consacré principalement à la modélisation et la simulation du procédé SPS.

Dans le deuxième chapitre, une méthode d'identification des résistances de contact par analyse inverse est développée. Elle a permis d'obtenir très rapidement un jeu de paramètres permettant de simuler un champ de température proche des températures réelles.

Le troisième chapitre est consacré à la modélisation du frittage. Deux méthodes d'identification sont employées et testées sur plusieurs matériaux ; l'une utilise classiquement des essais de fluage et l'autre plus rapide utilise des essais SPS.

Le quatrième chapitre est consacré à l'étude et l'identification du phénomène de frottement au niveau de l'interface poudre/moule.

Enfin, le dernier chapitre utilise le modèle identifié pour l'optimisation du procédé SPS. Une approche multi-échantillons est étudiée pour résoudre le problème de productivité. Par ailleurs, deux approches par matériau sacrificiel sont étudiées pour la résolution des problèmes de densification de pièces de formes complexes.

---

---

# **Chapitre I. Bibliographie**

---

---



## **I.1 Le positionnement du frittage SPS par rapport à d'autres techniques**

Le procédé de frittage SPS est décrit dans ce chapitre en le positionnant par rapport à d'autres techniques de frittage et en retraçant son apparition dans l'historique du frittage résistif.

### *I.1.1 Définition du frittage*

Même si la définition du frittage ne fait pas l'unanimité auprès de la communauté scientifique, ce phénomène est généralement décrit comme une opération de consolidation d'un matériau (poudre ou matériau poreux) engendrant dans la plupart des cas une diminution de sa porosité interne. Ce processus utilise un traitement thermique avec ou sans application de pression et s'accompagne d'une réduction de l'énergie libre globale du système. Un autre point important est que les processus thermiques mis en œuvre se font à des températures généralement en dessous de la température de fusion du matériau de départ. En effet certains matériaux céramiques réfractaires comme l'alumine ou la zircone ont un point de fusion très élevé (au-delà de 2000°C) et tout l'intérêt du frittage consiste entre autres à consolider ces matériaux à des températures plus faibles.

Une des premières applications de ce phénomène était la cuisson de briques pour consolider leurs grains de matière entre eux et augmenter leur résistance mécanique. Il s'agit du frittage naturel qui utilise un traitement thermique (sans pression) pour activer les phénomènes de mouvement de matière aux grains en contact permettant la densification du matériau initialement poreux (ou pulvérulent). Il existe plusieurs mécanismes possibles de mouvement de matière permettant l'élimination de la porosité. Parmi les plus connus on peut citer, la diffusion atomique par le volume ou aux joints de grains, l'écoulement visqueux, la déformation plastique, le réarrangement de grains et le transport gazeux. La force motrice du frittage naturel est principalement l'énergie de surface engendrée par la courbure des grains en contact qui est fortement diminuée au cours du frittage par la coalescence progressive de ces grains. À titre d'exemple, ce phénomène peut être comparé à la coalescence de deux gouttes d'eau mises en contact. À l'état initial, les deux gouttes d'eau ont une énergie de surfaces bien supérieure que celle de la goutte à l'état final. Comme il s'agit de liquide, le phénomène de coalescence est très rapide. Dans le cas du frittage de particules solides, les grains de matières sont portés à haute température jusqu'à ce que les mécanismes de mouvement de matière cités précédemment puissent être activés, mais comparé à un liquide les cinétiques de coalescences sont beaucoup plus longues. La densification du matériau de départ se fait généralement en trois étapes (Figure I-1) (Bernache-Assollant et Bonnet, 2005). Au départ l'activation des cinétiques de frittage au contact intergranulaire permet la



formation de cous entre les grains. Cette étape ne diminue que de très peu la porosité du matériau et pour de nombreuses applications comme la fabrication de briques ou de tuiles cette étape peut suffire. Puis dans une deuxième étape, le matériau poreux obtenu voit sa porosité ouverte (pores intercommunicants) diminuer complètement et dans une troisième étape la porosité fermée et quasi complètement éliminée.

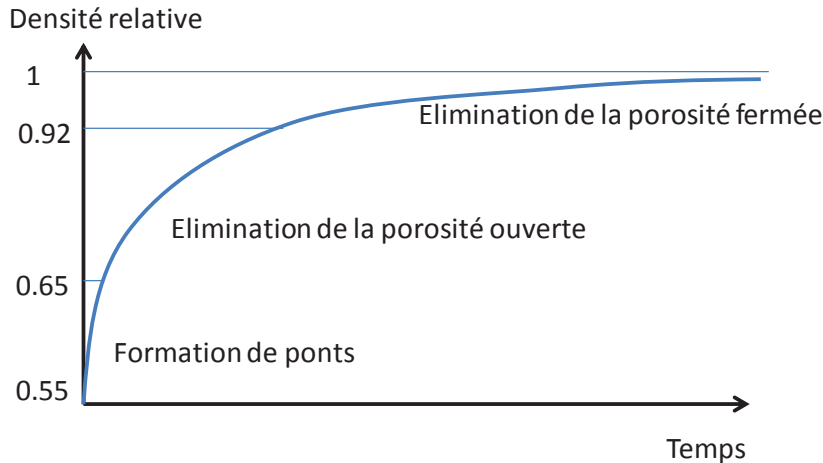


Figure I-1 Élimination des différents types de porosité au cours du frittage

Le frittage naturel est le procédé de frittage le plus répandu car il utilise des fours permettant le frittage simultané d'un grand nombre de pièces. Cependant, ce mode de frittage est très long, par exemple pour densifier complètement une poudre d'alumine micrométrique, il faut environ 72 heures.

### 1.1.2 Le frittage sous charge

Lorsqu'en plus du cycle thermique, une pression extérieure est appliquée au matériau, on parle alors de frittage sous charge. Dans ce cas, les grains sont sollicités mécaniquement et par des phénomènes de diffusion ou de déformation plastique le taux de densification est fortement accéléré. Il existe deux grands modes de compression pour le frittage sous charge, la compression uniaxiale en matrice où la pression est appliquée par deux pistons (Figure I-2;a) dans un moule, dont le procédé compression uniaxiale à chaud ou "Hot Pressing" (HP) fait partie et la compression isostatique à chaud (CIC), qui fait intervenir un gaz à très haute pression pour appliquer une pression uniforme sur toutes les surfaces extérieures de l'échantillon à densifier (Figure I-2;b). Pour des procédés tels que le HP ou le CIC, les cycles de frittage ne sont que de quelques heures.

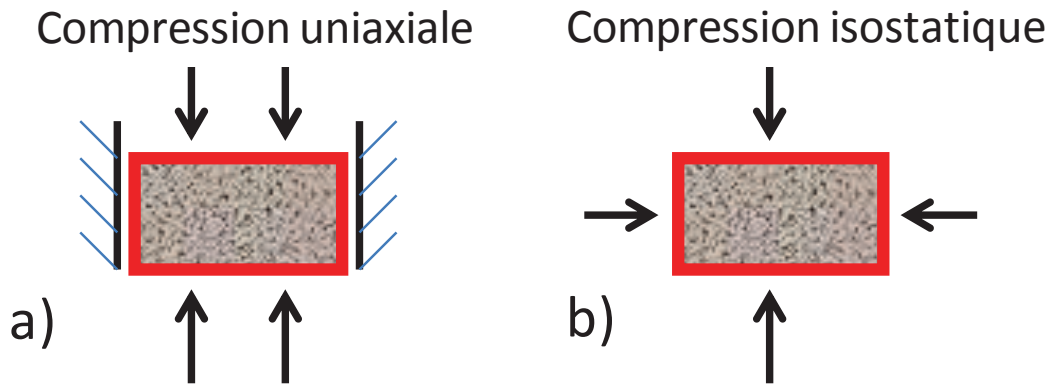


Figure I-2 Représentation des sollicitations en compression: a) Uniaxiale b) Isostatique.

### 1.1.3 Le frittage assisté par courant électrique

Une des premières applications du frittage assisté par un courant électrique était en 1906 avec les travaux de Bloxam (Bloxam, 1906) consistant à densifier du molybdène et du tungstène. Ces travaux ont permis la production des filaments utilisés dans les ampoules à incandescence. En 1913 une configuration relativement proche du procédé SPS apparaît avec les travaux de Weintraud et Rush (Weintraud et Rush, 1913) pour la fabrication de barreaux de bore. La poudre est pressée dans un tube électriquement isolant en alumine par deux pistons qui font office d'électrode. Ce procédé a été par la suite largement repris par d'autres auteurs comme Duval D'Adrian (D'Adrian, 1922) qui ont densifié du tantale, de la zirconie et du thorium. Taylor a montré en 1933 (Taylor, 1933) que les cinétiques de frittage peuvent être grandement accélérées en appliquant un courant pulsé qui selon lui diminuait la résistance de la poudre à la consolidation. En 1944 Cremer (Cremer, 1944) et en 1955 Lenel (Lenel, 1955) ont adapté une machine de soudage par point au procédé de frittage par résistance avec application simultanée d'une pression.

Le procédé de frittage le plus rapide est incontestablement le "Flash Sintering" (dénomination anglo-saxonne) qui permet un frittage en quelques secondes (Cologna et al., 2010). L'exemple le plus connu de ce procédé consiste à appliquer une tension électrique aux bornes d'un cru préchauffé de zirconie (matériau dont la conductivité électrique est fortement augmentée par la température) jusqu'à ce que le système se déclenche brutalement et que le courant passe très fortement dans l'échantillon. Le système chauffe et se densifie très rapidement (quelques secondes), pour des microstructures finales relativement homogènes.

### 1.1.4 Le procédé Spark Plasma Sintering

Le procédé Spark plasma sintering (SPS, Figure I-3) utilise conjointement les principes du "hot pressing" (HP) et du frittage résistif. Dans ce procédé, le chauffage n'est pas extérieur comme dans le "hot pressing", mais est généré par effet Joule sur l'ensemble moule pistons échantillon (Figure I-3) (Orrù et al., 2009). En fonction de l'intensité du courant pulsé injecté, il est possible de faire des cycles thermiques très courts de l'ordre de quelques minutes. Par ailleurs, l'application simultanée de pressions pouvant aller jusqu'à 100MPa (outils en graphite) permet de diminuer les températures de frittage ce qui conjointement à des cycles thermiques courts permet de considérablement diminuer le phénomène de croissance granulaire et in fine, de conserver des tailles de grains nanométriques.

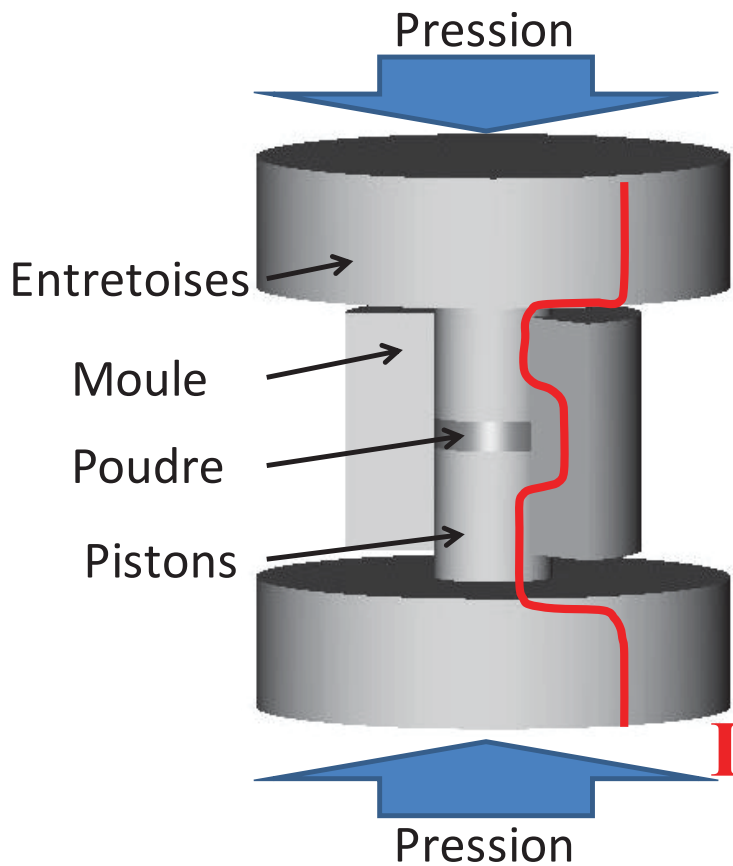


Figure I-3 Schéma général du procédé SPS.

En fonction de la conductivité électrique de l'échantillon, la répartition du courant et de la température peut être très différente. En effet, un échantillon isolant électrique est principalement chauffé par les éléments extérieurs en contact, alors qu'un échantillon conducteur est chauffé à la fois de l'intérieur et de l'extérieur. La densification homogène de formes complexes présente également un grand défi qu'il s'agisse du procédé SPS ou HP étant donné la difficulté à densifier des zones d'une même pièce possédant des épaisseurs

de compaction très différentes. L'intérêt de la simulation par éléments finis de ce procédé est d'anticiper le chauffage interne ainsi que la compaction de l'échantillon afin de trouver par une approche numérique des solutions aux problèmes précédents.

La technologie SPS a été introduite pour la première fois par Inoue en 1965 (Inoue, 1965) dans des travaux traitants de l'influence des pulses de courant créant des arcs électriques entre les grains favorisant le frittage. Sous la direction de Sumitomo Coal Mining Co, la première machine SPS utilisant des moules et pistons en graphite et un courant pulsé est brevetée par Inoue en 1991 (Inoue, 1991) pour une commercialisation au niveau mondial. Des chaînes de productions en tunnel (Figure I-4) ou en table rotative utilisant le procédé SPS sont brevetées en 2002 sous la direction de Sumitomo Coal Mining Co par Tokita (Tokita, 2002).

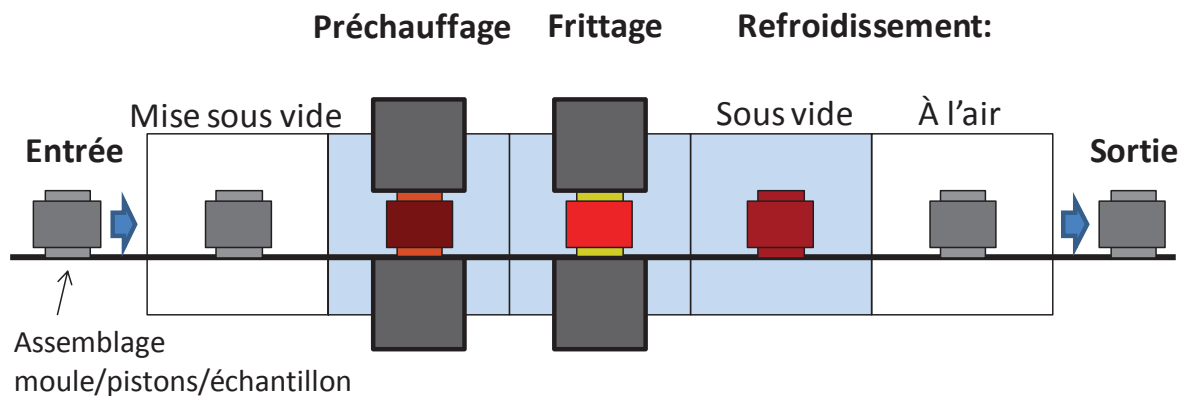


Figure I-4 Exemple de chaîne de production SPS en tunnel.

## I.2 État de l'art de la modélisation électrothermique du frittage SPS

Un état de l'art non exhaustif sur la simulation électrothermique du procédé SPS est proposé dans ce chapitre allant des plus anciennes simulations aux plus récentes.

### I.2.1 L'intérêt de la modélisation MEF du procédé SPS

Bien que le procédé Spark-Plasma-Sintering présente de nombreux intérêts en terme de vitesse de frittage et de microstructure, il reste une boîte noire dont les principaux moyens de contrôle se limitent à la température servant à réguler le courant injecté et à la pression extérieure appliquée. Il est possible de faire des mesures expérimentales de grandeurs physiques telles que la température en divers endroits de la colonne y compris au cœur de la poudre, mais cela peut perturber le bon déroulement du frittage. En outre les champs de température et de densités de courant sont sensibles à la configuration géométrique, à la cinétique thermique et également à la pression appliquée qui modifie les résistances de

contact présentes à toutes les interfaces internes du système étudié. Même si l'on parvient à mesurer en des zones stratégiques le champ de température expérimental, ces données ne seront pas généralisables à toutes les géométries possibles du procédé SPS. Ainsi la modélisation électrothermique du procédé SPS est motivée en premier lieu par l'évaluation en tout point du système de la température ainsi que d'autres grandeurs physiques telles que les contraintes mécaniques internes, les densités de courant, les phénomènes de contacts, etc. Une fois que le modèle est déterminé et est rendu généralisable à un large champ expérimental, son utilité ne se limite plus à l'explication des phénomènes en présence, mais il devient un modèle prédictif. Il est alors possible de faire varier les paramètres géométriques et physiques pour arriver grâce au modèle, au résultat répondant à un cahier des charges désiré sans faire de longues campagnes expérimentales très coûteuses.

Ces résultats théoriques sont en effet essentiels pour le contrôle, la compréhension et l'optimisation de certains phénomènes physiques observés. Par exemple la présence de gradients de température, le grossissement des grains qui semble plus important au centre que sur la périphérie des échantillons conducteurs (Wang et al., 2010) etc. La méthode de modélisation par éléments finis (MEF) utilisée dans ces travaux permet d'obtenir une solution approchée des équations aux dérivées partielles (EDP) des différentes physiques mises en jeu au niveau des nœuds d'un maillage effectué sur l'objet étudié. Un maillage consiste à segmenter l'objet d'étude en un nombre fini d'éléments dont les sommets sont appelés nœuds. L'ensemble des éléments permet de représenter de manière approchée l'objet d'étude. Plus le maillage sera fin (avec un grand nombre de nœuds), plus le calcul en résultant sera précis. Il existe différents logiciels de modélisation MEF commerciaux comme COMSOL Multiphysics, ABAQUS, ANSYS etc. Ces logiciels permettent de faciliter la prise en main du problème par des interfaces permettant de reproduire la géométrie de l'objet, faire un maillage automatique et de coupler plusieurs physiques pour résoudre des problèmes complexes. Mais les résultats théoriques obtenus n'en restent pas moins des approximations, car les résolutions des équations sont souvent itératives (proches du résultat réel à une tolérance relative près, en général 1%) et ne s'effectuent qu'aux nœuds avec interpolation au reste du domaine. Il est donc primordial de garder un esprit critique quant au type de maillage effectué, sa finesse, ainsi qu'aux physiques et conditions aux limites mises en jeu.

Dans la plupart des travaux concernant l'aspect électrothermique du frittage SPS (Anselmi-Tamburini et al., 2005), la température est calculée à partir de deux équations aux dérivées partielles : L'équation de conservation du courant (I-1) et l'équation de chaleur (I-2).

$$\nabla \cdot \vec{j} = \nabla \cdot (\sigma \vec{E}) = \nabla \cdot (-\sigma \nabla U) = 0 \quad \text{I-1}$$

$$\nabla \cdot (-\lambda \nabla T) + \rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{j} \cdot \vec{E} \quad \text{I-2}$$

avec,  $J$  la densité de courant,  $E$  le champ électrique,  $U$  le potentiel électrique,  $\sigma$  la conductivité électrique,  $C_p$  la capacité calorifique,  $\lambda$  la conductivité thermique et  $T$  la température.

Les conditions aux limites électriques sont généralement un potentiel (I-3) ou un courant électrique imposé (I-4) et des isolations électriques (I-5) sur les faces extérieures.

$$U = \text{valeur imposée} \quad \text{I-3}$$

$$-\vec{n} \cdot \vec{j} = \text{valeur imposée} \quad \text{I-4}$$

$$-\vec{n} \cdot \vec{j} = 0 \quad \text{I-5}$$

Les conditions aux limites thermiques sont quant à elles des flux de chaleurs (I-6) au niveau des zones proches du circuit de refroidissement (Molénat et al., 2010), des températures imposées (I-7), un rayonnement thermique sur les faces extérieures (I-8) et des isolations thermiques sur les autres faces (I-9). Les échanges thermiques convectifs sont généralement négligés, car la chambre SPS est dans la plupart des cas sous vide en raison de pièces en graphites qui s'enflammeraient à haute température.

$$\phi_c = h_c \cdot (T_i - T_w) \quad \text{I-6}$$

$$T = \text{valeur imposée} \quad \text{I-7}$$

$$\phi_r = \sigma_s \cdot \varepsilon \cdot (T_e^4 - T_a^4) \quad \text{I-8}$$

$$-\vec{n} \cdot (-\lambda \nabla T) = 0 \quad \text{I-9}$$

Avec,  $\vec{n}$  le vecteur normal à la frontière sur laquelle s'applique la condition de limite,  $\phi_r$  le flux de chaleur radiatif,  $\sigma_s$  la constante de Stefan-Boltzmann,  $\varepsilon$  le coefficient d'émissivité,  $T_e$  la température d'émission de la surface,  $T_a$  la température de la chambre,  $\phi_c$  le flux de chaleur de conduction,  $h_c$  le coefficient de conduction,  $T_i$  la température de la surface et  $T_w$  la température du circuit d'eau.

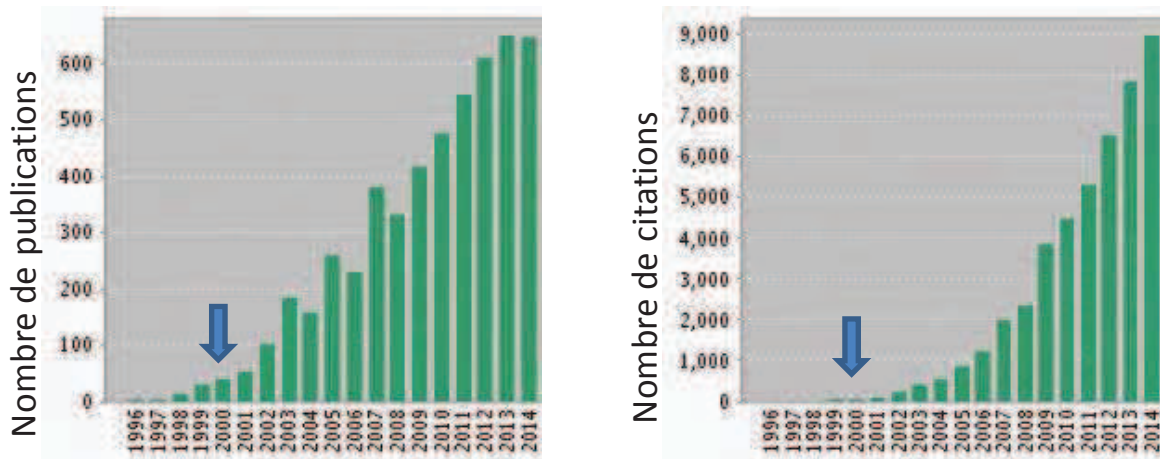
### 1.2.2 Les premières modélisations

Orrù et al (Orrù et al., 2009) ont présenté dans une revue de 160 pages consacrées au procédé SPS, un historique de l'élaboration des modèles électrothermiques de ce type de

procédé. En 1989 une première étude de modélisation du procédé est réalisée par Raichenko et Chernikova (Raichenko et Chernikova, 1989). Ils ont résolu analytiquement le problème mathématique d'effet Joule en le simplifiant à une dimension, en prenant en compte les effets des contacts. Ces résultats constituent une première brique de base pour l'étude du champ de température dans ce type de procédé.

Depuis les années 2000 l'engouement pour cette technologie n'a cessé de croître et de plus en plus de publications et de citations sur cette technologie voient le jour parallèlement à des capacités de calcul en pleine augmentation (Figure I-5).

En 2001, Yoneya et Ikeshoji (Yoneya et Ikeshoji, 2001) modélisent numériquement la matrice, une partie des pistons et l'échantillon (Figure I-6) dans un modèle MEF prenant en compte les pertes thermiques conductrices et radiatives sur des échantillons de cuivre et de graphite. Ils prennent comme conditions aux limites électriques d'entrée le potentiel électrique au niveau des pistons et des isolations électriques sur les autres faces extérieures. Une de leurs principales conclusions est que la génération de chaleur se fait principalement au niveau des pistons. Les gradients de température horizontaux dans l'échantillon sont relativement faibles pour les deux matériaux testés et de l'ordre de moins d'une dizaine de kelvin.



Source: Web of Knowledge, le 12/01/15, mot clef « Spark Plasma Sintering »

Figure I-5 Représentation le l'évolution du nombre de publications et de citations sur le thème "spark plasma sintering".

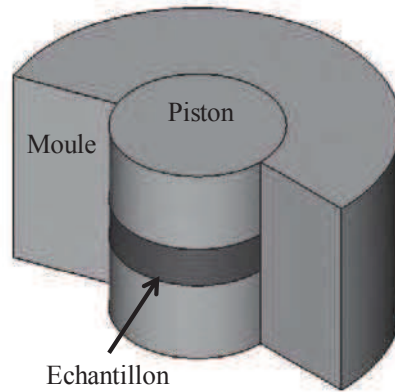


Figure I-6 Configuration géométrique employée dans le calcul MEF des travaux de Yoneya et Ikeshoji.

L'année suivante Yucheng et Zhengyi (Yucheng et Zhengyi, 2002) publient une étude d'un modèle analytique avec un échantillon de  $TiB_2/BN$  de 40 mm et obtiennent une différence de température radiale entre le centre et le bord de l'échantillon calculée de 350 K et mesurée de 450 K (par deux thermocouples). Le  $TiB_2/BN$  est un composé avec une résistivité électrique similaire à celle du graphite, mais une conductivité thermique plus faible, ce qui expliquerait les importants gradients thermiques comparé à ceux du graphite dans l'étude précédente. Plus tard Tiwari et al (Tiwari et al., 2009) confirmeront que plus la conductivité thermique d'un matériau est basse et plus celui-ci est susceptible d'avoir de forts gradients thermiques.

### 1.2.3 Modélisations de 2003 à 2015

À partir des années 2003 avec les publications de Matsugi et al (Matsugi, Kuramoto, Hatayama, et al., 2003; Matsugi, Kuramoto, Yanagisawa, et al., 2003) les modèles deviennent plus élaborés. En effet le domaine d'études ne se limite plus à l'échantillon et ce qui l'entoure, mais prend également en compte la totalité des pistons, de plus ces premiers modèles ont été plus fortement confrontés à l'expérience. Le modèle de Matsugi prend comme conditions aux limites électriques la différence de potentiel (entre les pistons), les résistances électriques de contacts, et les températures sont mesurées expérimentalement par six thermocouples en divers endroits de la matrice, de l'échantillon et des pistons. La confrontation des températures calculées en ces six positions en état stationnaire et celles affichées par les thermocouples est relativement bonne. Les profils de répartition de température montrent que dans le cas de l'alumine la partie supérieure des pistons est la source principale de chaleur, en revanche dans le cas du titane (un matériau conducteur) c'est la partie entourant l'échantillon qui est la plus dissipatrice de chaleur. Selon les auteurs, les pistons sont les principaux foyers de dissipation thermique du fait de la réduction de section dont ils font l'objet quel que soit l'échantillon considéré. En effet, les goulets d'étranglement que constituent les pistons, concentrent toutes les lignes de courants en ces



endroits, ce qui en fait les zones où la densité de courant est la plus élevée de toute la colonne. Ainsi dans leur seconde publication (Matsugi, Kuramoto, Yanagisawa, et al., 2003) de la même année ces mêmes auteurs étudient la répartition de température dans un échantillon en forme de T, ce phénomène de variations de section prend alors tout son sens. En effet la dissymétrie causée par cet échantillon implique que la température soit plus élevée d'environ 200°C là où la section de piston est la plus faible. Ce phénomène engendre donc de considérables gradients de température au sein même de l'échantillon. Ainsi les auteurs montrent que ces gradients de température se traduisent par des gradients de densification, les zones de l'échantillon les plus froides sont en effet celles dont la densification est la moins élevée.

La précédente étude a été effectuée en état stationnaire, mais en 2003 Wang et al étudient l'évolution temporelle du champ de température sur un échantillon de nitrure de bore électriquement isolant (Wang et al., 2003). Le modèle présenté par les auteurs utilise le logiciel d'éléments finis ANSYS. Les contacts électriques et thermiques sont supposés parfaits, et une différence de potentiel est appliquée aux extrémités des pistons. L'auteur montre ainsi que la génération de chaleur débute au niveau des pistons et diffuse vers la matrice, l'échantillon étant toujours l'élément le plus froid. La température s'homogénéise alors petit à petit jusqu'à ce que la température de l'échantillon soit proche de celle du bord intérieur de la matrice. L'analyse de la répartition radiale de la température montre alors une répartition relativement homogène de la température dans l'échantillon et une chute linéaire de la température du moule jusqu'au bord extérieur. En 2006 le même auteur réalise une étude similaire sur un matériau conducteur électrique le  $TiB_2/BN$  et montre que contrairement à l'étude précédente c'est l'échantillon conducteur qui est l'élément le plus chaud (Wang et al., 2007). Les auteurs concluent que le moyen le plus efficace de limiter les gradients thermiques dans l'échantillon consiste à effectuer des cycles avec des vitesses de montée en température lente, il est en effet tout à fait concevable qu'une cinétique de montée en température rapide ne laisse que peu de temps pour atteindre l'équilibre thermique et par conséquent l'homogénéisation des températures.

En 2004 Zavaliangos et al (Zavaliangos et al., 2004) ont proposé une simulation du procédé SPS prenant en compte la totalité de la chambre, les résistances électriques et thermiques de contacts et ont fait un bilan des différentes pertes thermiques de l'ensemble pistons, échantillon et moule. Leurs modélisations ont été menées grâce au code d'éléments finis ABAQUS. Une différence de potentiel électrique a été prise comme conditions aux limites électriques et les pertes thermiques sont de deux types, par rayonnement au travers des parois extérieures et par conduction au niveau du système de refroidissement. Les auteurs soulignent l'importance des résistances de contact et en distingue deux types, les contacts

horizontaux (piston-échantillon, piston-entretoise) qui sont soumis à une forte pression comparée aux contacts verticaux (piston-moule, échantillon-moule) qui auront donc un plus grand effet (Anselmi-Tamburini et al., 2005). Le bilan des pertes thermiques de cette étude montre que les pertes par conduction au niveau du piston et les pertes radiatives à la surface extérieure de la matrice constituent environ 80 % des pertes thermiques totales. Les pertes radiatives au niveau des pistons et des faces horizontales de la matrice ne contribuent que pour 10 à 20 % des pertes totales, mais leur proportion augmente avec la température.

En 2005 Vanmeensel et al (Vanmeensel et al., 2005) mènent une campagne expérimentale afin de déterminer les résistances de contacts en fonction de la température. Le principe général consiste à utiliser différents assemblages avec et sans contact de manière à remonter progressivement aux différentes résistances des contacts horizontaux puis verticaux (Figure I-7). Ils obtiennent des valeurs de résistivité électrique et thermique qui diminuent avec la température et plus importantes pour les contacts verticaux que pour les contacts horizontaux, comme cela avait été observé par Zavaliangos et al (Zavaliangos et al., 2004). Les auteurs ont ensuite intégré ces valeurs de résistance de contacts dans des simulations avec des échantillons de  $ZrO_2$  et TiN, ils remarquent que le contrôle expérimental de la température n'est pas fiable lorsque celui-ci est pris en surface de matrice étant donné que les gradients de température à ce niveau peuvent être de l'ordre de la centaine de degrés. Ils suggèrent à la place de prendre la température au niveau des pistons et au plus près de l'échantillon. Ils proposent également d'entourer la surface extérieure de la matrice d'une feutrine de graphite thermiquement isolante pour réduire les gradients thermiques radiaux au niveau de l'échantillon.

En 2007 Vanmeensel et al (Vanmeensel et al., 2007) proposèrent une étude visant à tester l'effet d'une feutrine isolante sur les gradients thermiques radiaux. Ils déterminent ainsi que pour un diamètre de 40 mm, un gradient thermique engendrant une différence de température de 140°C se voit réduit à 30 °C juste par ajout d'une feutrine isolante en graphite. Dans la plupart des modèles, l'effet de la feutrine de graphite est modélisé par une simple isolation thermique. En réalité, une faible quantité de chaleur est évacuée à travers cette feutrine de graphite. Pour répondre à cette problématique, une étude présentée par Antou et al en 2009 (Antou et al., 2009) a considéré la feutrine de graphite dans son intégralité (épaisseur, conductivité thermique, etc) pour avoir une distribution de température à cet endroit plus réaliste.

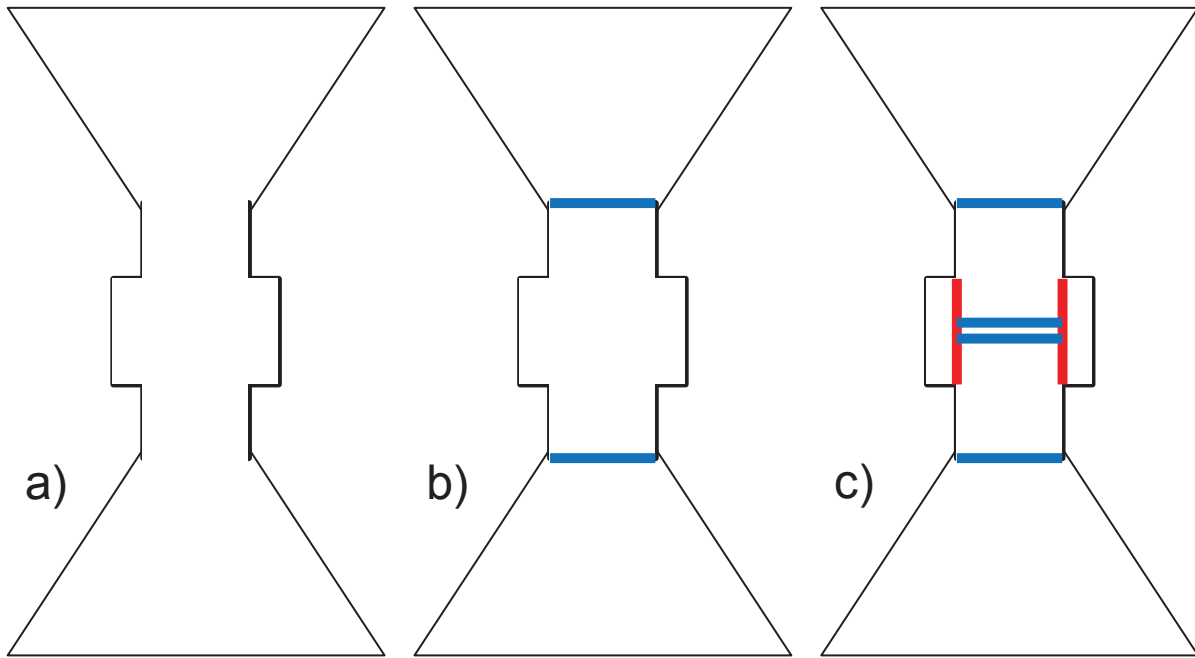


Figure I-7 Différentes configurations géométriques utilisées pour mesurer successivement les différentes résistances électriques de contact (Vanmeensel et al., 2005): a) sans contact b) avec contacts horizontaux c) avec contacts horizontaux (bleu) et verticaux (rouge).

En 2005 Anselmi-Tamburini et al (Anselmi-Tamburini et al., 2005) étudient l'influence d'un grand nombre de paramètres du procédé SPS. Ils étudient entre autres l'influence des résistances électriques de contact horizontal, et déterminent que celle-ci diminue en fonction de la pression appliquée jusqu'à des valeurs négligeables au-delà d'une pression de 50MPa. Par la suite, beaucoup d'auteurs (Antou et al., 2009; Cincotti et al., 2007; Luo et al., 2012; Molénat et al., 2010) se placent à des pressions supérieures à ces 50 MPa de manière à ne pas considérer ces phénomènes de résistances de contacts dans les simulations. Ces auteurs ont mené dans ce même travail une analyse des pulses expérimentaux et ont déterminé par une décomposition de Fourier que la plupart des modes se situent à basse fréquence ce qui permet de négliger l'éventuel effet de peau favorisant un passage privilégié des électrons près de la surface du conducteur considéré. Cela implique que le signal peut parfaitement être assimilable à un signal continu dans les simulations, les valeurs efficaces de signal électrique dans les conditions aux limites sont donc justifiées. Dans la partie modélisation, les auteurs ont étudié la répartition de la densité de courant, de la température et de la puissance électrique dissipée pour des échantillons en cuivre et d'alumine. De même que dans les publications précédentes les effets de chauffage au niveau du piston par réduction de sections apparaissent clairement que l'on soit avec un échantillon très conducteur comme le cuivre ou très isolant comme l'alumine. Les graphiques de répartition radiale de la densité de courant montrent que le courant passe préférentiellement dans la matrice au plus près de l'échantillon (Munir et al., 2006) (Figure I-8). La répartition verticale des densités de courant montre l'effet de réduction de sections au niveau des pistons qui

concentre les lignes de courant en ces endroits, ceci est confirmé par les représentations de la puissance générée qui elle aussi est maximale au niveau des pistons (non représenté). L'évolution de la répartition verticale de la température au cours du cycle nous montre quant à elle un chauffage en début de cycle préférentiel au niveau du piston ce qui engendre un fort gradient vertical de température dans l'ensemble pistons, échantillon (Figure I-9). Ces gradients s'atténueront progressivement à mesure que le cycle avance jusqu'à n'atteindre qu'un gradient de quelques dizaines de degrés.

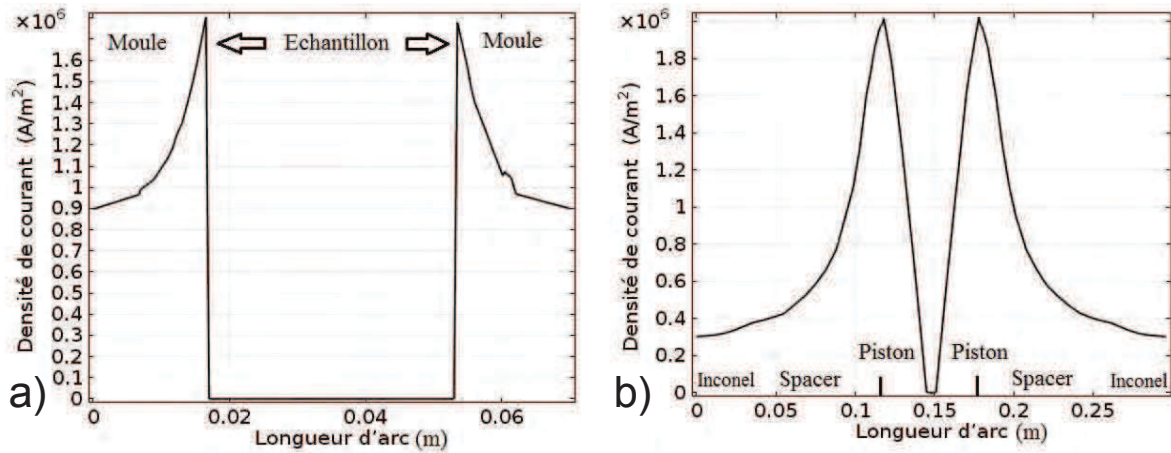


Figure I-8 Densité de courant pour un échantillon de  $Al_2O_3$  le long d'un axe d'étude orienté : a) selon le diamètre du moule en traversant l'échantillon b) le long de l'axe de la colonne SPS (reconstitué à partir de l'exemple de Pavia et al (Pavia et al., 2013)).

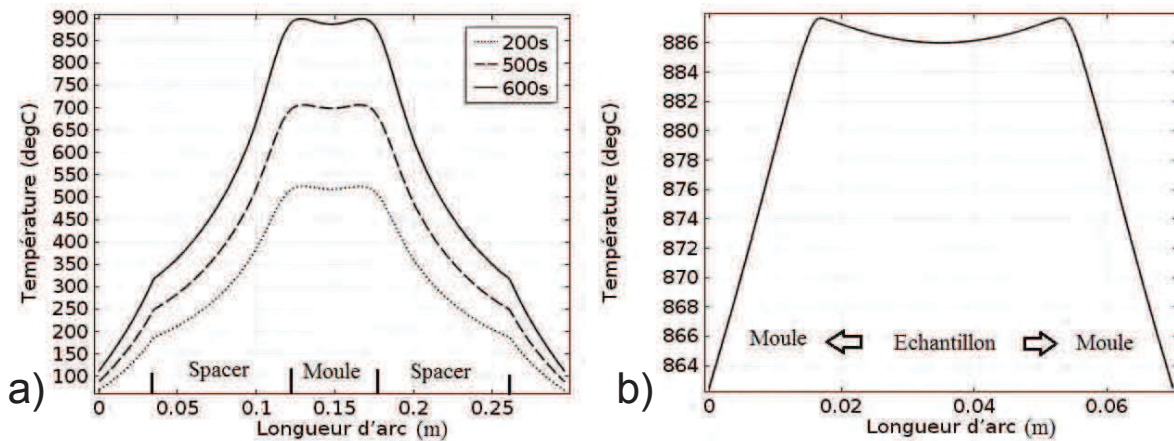


Figure I-9 Répartition de la température pour un échantillon de  $Al_2O_3$  le long d'un axe d'étude orienté : a) le long de l'axe de la colonne SPS b) selon le diamètre du moule en traversant l'échantillon (reconstitué à partir de l'exemple de Pavia et al (Pavia et al., 2013)).

En 2006 McWilliams et al (McWilliams et al., 2006) ont publié une étude sur l'influence des dimensions de l'outillage sur les champs de température et la puissance électrique demandée à la machine. Tout d'abord les auteurs s'intéressent à la variation de température maximale dans les pistons. Si l'on augmente la hauteur des pistons, la température maximale à l'intérieur de ceux-ci augmente, de même si l'on augmente le diamètre du moule

cela a pour effet d'augmenter la température maximale au sein des pistons. En revanche l'augmentation de la hauteur de matrice semble ne pas avoir d'effet significatif sur la température maximale. Les auteurs s'intéressent par la suite à l'étude de la puissance électrique demandée en fonction des variations de diamètre et hauteur de matrice ainsi que la présence d'une feutrine isolante en surface de matrice. Il apparaît clairement que l'augmentation du diamètre de la matrice ou de la hauteur de matrice autrement dit l'augmentation du volume de matrice engendre une augmentation de la puissance électrique demandée. Cette même étude est réalisée avec une feutrine isolante en surface extérieure de matrice et donne les mêmes résultats, mais avec un décalage en faveur d'une puissance électrique demandée moins grande.

En 2010 Molénat et al (Molénat et al., 2010) ont écrit, un article sur la modélisation électrothermique du procédé SPS pour trois matériaux différents: L'alumine, le carbure de silicium et le TiAl. Le TiAl se caractérise par un changement de phase vers 1330 °C ce qui permet d'estimer la température réelle de l'échantillon et ainsi de confronter l'expérience à la simulation. Le frittage est effectué sur la machine de la "plateforme nationale CNRS de frittage flash" (Dr Sinter 2080, SPS Syntex Inc) localisée à l'Université Toulouse III Paul Sabatier France. Les conditions aux limites électriques sont entrées sous forme d'une différence de potentiel, les conditions aux limites thermiques sont constituées, d'un flux de chaleur causé par le système de refroidissement et de pertes thermiques radiatives au niveau des faces latérales. Les propriétés des matériaux sont essentiellement issues de mesures en température effectuées par le fournisseur ainsi que des travaux de Vanmeensel (Vanmeensel et al., 2005) et de Enweani (Enweani et al., 1995). Les calculs ont été effectués à une tension de 4,2 V la température stationnaire atteinte en surface est de 1581 °C ce qui est bien plus élevé que la valeur mesurée expérimentalement de 1190°C. Afin de retrouver les résultats expérimentaux; un pas de temps calculé antérieur à l'état stationnaire calculé a été sélectionné pour une température de surface de 1190°C. À ce pas de temps là, la température calculée au centre avoisine les 1330°C ce qui correspond au changement de phase caractéristique du TiAl qui est observé expérimentalement. Cela indique que l'ensemble du système n'était probablement pas à l'état stationnaire au moment de la mesure, les simulations doivent donc prévoir l'évolution du champ de température dans le temps. Les simulations à l'état stationnaire sont souvent plus rapide cependant de tels calculs prennent le risque de ne pas être représentatifs de l'expérience. Concernant l'alumine et le carbure de silicium, de nombreuses mesures ont été effectuées par des thermocouples en divers endroits du moule. La comparaison entre les températures simulées et expérimentales a donc pu être effectuée, les écarts sont en moyenne de l'ordre de 5%.

Par la suite, d'autres études (Mondalek et al., 2011; Pavia et al., 2013; Voisin et al., 2013) ont été réalisées sur les mêmes bases de départ que cet article. Ces études portent principalement sur le frittage des formes complexes à des fins industrielles, mais également sur les effets des dimensions d'outillage et même sur le frittage de la poudre.

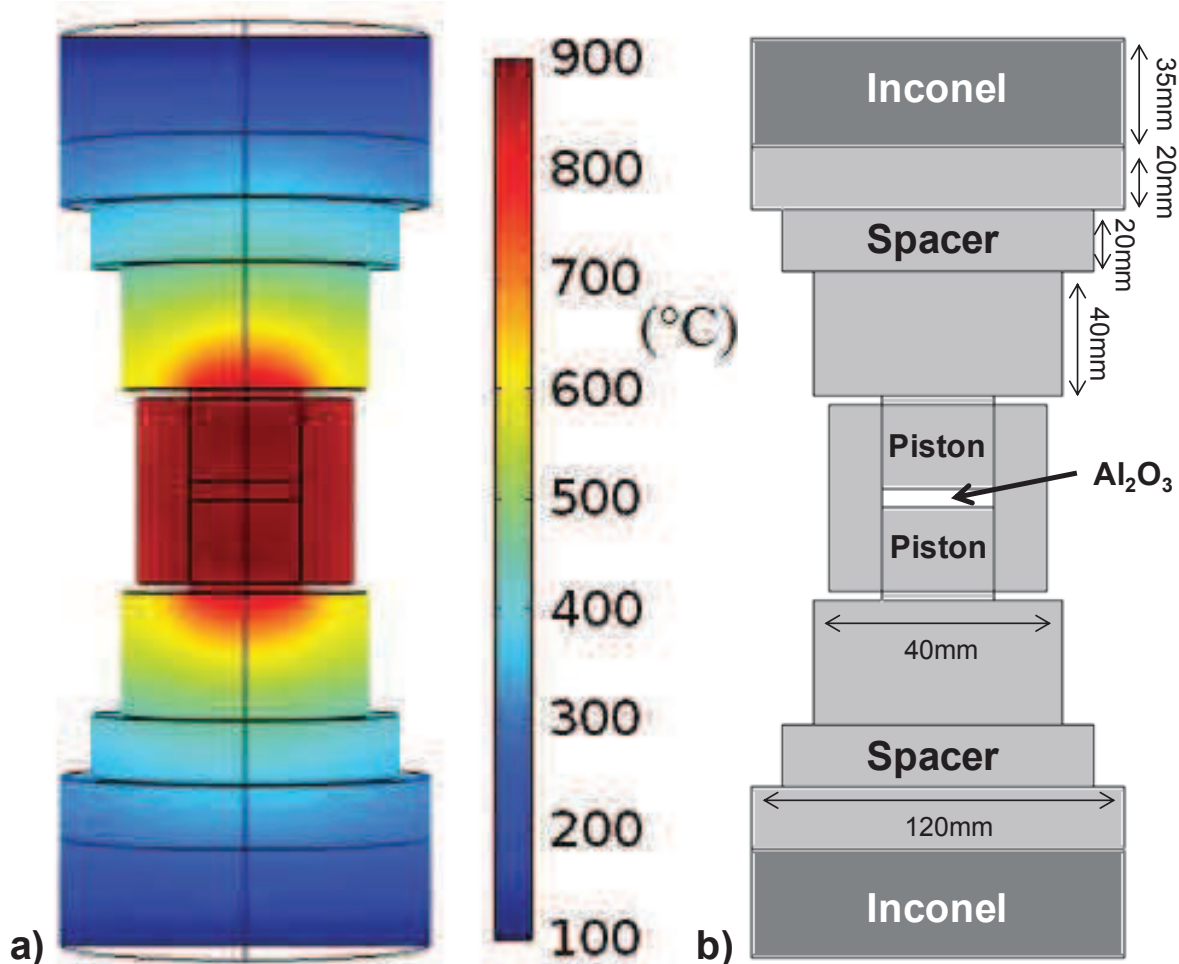


Figure I-10 a) Répartition de la température en palier b) configuration géométrique utilisée (reconstitué à partir des données de Pavia et al (Pavia et al., 2013)).

En 2013 Pavia et al (Pavia et al., 2013) ont effectué des modélisations temporelles de toute la colonne SPS dans le cas d'un échantillon électriquement isolant (alumine). Le modèle utilise comme donnée d'entrée les valeurs efficaces de la tension mesurée à l'aide d'électrodes métalliques en acier inoxydable placée aux extrémités de la colonne en graphite. La confrontation de la température prise au niveau du thermocouple et celle modélisée au même endroit est relativement bonne, les erreurs ne dépassant pas les 40 °C en palier. Les gradients thermiques radiaux sont de l'ordre de 35 °C du centre jusqu'au bord extérieur de la matrice (Figure I-10). En revanche le courant efficace mesuré est environ 20 % plus élevé par rapport au courant modélisé. Pour déterminer d'où vient ce problème, une étude paramétrique sur les propriétés du graphite a été menée en prenant des valeurs de

résistivité électrique, de capacité calorifique et de conductivité thermique différentes (données de la littérature et données du constructeur). Les résultats de ces études paramétriques ont effectivement prouvé que les variations de température engendrées par ces différentes valeurs pour le graphite créent de grandes variations de température et donc des différences sur le courant modélisé. Cela prouve l'importance des propriétés du graphite qui doivent être déterminées avec précision. Il est également à noter que l'effet des résistances électriques de contacts non prises en compte peuvent tout autant causer des écarts sur le courant simulé.

La majeure partie des simulations employées dans les publications précédentes utilisent comme conditions aux limites électriques d'entrée la tension ou le courant efficace mesuré expérimentalement. Ces simulations ont principalement vocation à expliquer ou reproduire les températures observées et les éventuelles conséquences de ce paramètre sur l'échantillon final. Pour passer à des modèles anticipatifs, autrement dit des modèles ne nécessitant pas de faire au préalable l'expérience pour obtenir les données d'entrée du modèle, certains auteurs (Allen et Walter, 2012; Muñoz et Anselmi-Tamburini, 2010, 2013; Zavaliangos et al., 2004) ont implémenté (de même que sur les machines SPS) un régulateur de température type PID. Ce régulateur fait varier le courant d'entrée de manière à faire suivre une consigne de température imposée en un point donné de la colonne SPS modélisé. L'équation (I-10) représente l'expression du courant  $I(t)$  injecté aux bornes de la colonne.

$$I(t) = K_p e(t) + K_I \int_0^t e(t) d\tau + K_D \frac{de(t)}{dt} \quad \text{I-10}$$

avec:  $e(t)$  l'erreur entre la température de consigne et la température simulée et  $K_p$ ,  $K_I$  et  $K_D$  les constantes spécifiques aux termes proportionnel, intégral et dérivé du régulateur.

En principe un seul de chacun des termes de la somme (I-10) peut permettre d'effectuer une régulation. Mais avec un seul terme la régulation résultante peut osciller autour de la consigne avec une amplitude croissante ce qui peut dans la réalité causer un endommagement du matériel. Pour cette raison les trois termes sont pris en compte dont tout particulièrement le terme de dérivée de l'erreur permettant une diminution de l'amplitude des oscillations et beaucoup plus d'adaptabilité au procédé utilisé.

Dans la plupart des simulations précédentes, l'ensemble de la colonne SPS est pris en compte, mais il est également possible de simuler l'échauffement de la matière au niveau des grains de poudre. Il s'agit de simulations discrètes comme celle menée par Zhang et al (Zhang et Zavaliangos, 2011) qui ont montré entre autres que le chauffage à l'échelle du

grain est beaucoup plus rapide et homogène dans le cas d'un courant pulsé par rapport à un courant continu.

Les études précédentes ne traitent que de l'aspect électrothermique et ne s'intéressent donc qu'à la température, elles ne traitent pas de l'aspect mécanique et du frittage. En effet le déplacement des pistons dû au frittage peut causer de fortes variations de la puissance électrique dissipée au niveau de la partie des pistons émergeant du moule qui constitue la plus faible section de la colonne. En fonction de l'épaisseur de l'échantillon de plus ou moins fortes variations de température peuvent subvenir. Dans le but de résoudre ce problème certains auteurs comme Maizza et al (Maizza et al., 2009) ont ajouté à leurs simulations électrothermiques un maillage mobile grâce à la méthode ALE (Arbitraire Lagrangienne Eulérienne) permettant d'inclure les déplacements réels des pistons ainsi que la variation de hauteur de l'échantillon. D'autres auteurs (Giuntini et al., 2013; McWilliams et al., 2015; Mondalek et al., 2011) modélisent directement le frittage de la poudre et couplent les trois physiques (électrique, thermique et mécanique). Nous développerons plus loin cette partie de la simulation du procédé SPS cruciale pour la simulation de formes complexes. Il est également possible de limiter la partie de la simulation mécanique aux phénomènes purement élastiques et de regarder le champ des contraintes internes. En procédant ainsi Wang et al (Wang et al., 2007) ont montré que le champ des contraintes est très important au niveau des interfaces échantillon/moule et piston/entretoise ce qui explique entre autres l'endommagement des pistons au niveau des extrémités en contact avec les entretoises. La reconstitution Figure I-11 à partir de la configuration de Pavia (Pavia et al., 2013) montre bien une concentration des contraintes mécaniques au niveau du contact piston/entretoise et sur les bords de l'échantillon.

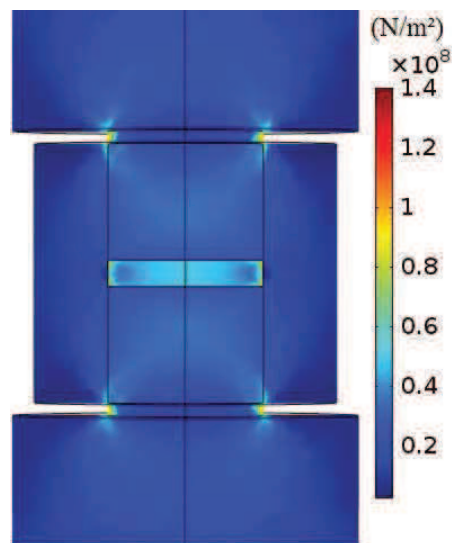


Figure I-11 Répartition du champ de contrainte de von Mises (reconstitué avec la configuration géométrique de Pavia et al (Pavia et al., 2013)).



### I.3 Les résistances de contacts

L'étude des résistances de contacts étant un des grands points abordés dans les présents travaux de thèse, le chapitre suivant en introduit les grands principes ainsi que leurs influences sur le procédé SPS.

#### I.3.1 Généralités

La plupart des contacts entre deux matériaux (différents ou non) ne sont généralement pas parfaits et présentent une rugosité d'interface susceptible de gêner le passage du courant et/ou un flux thermique le traversant. Le courant ou le flux en question doit alors passer par de petites zones de contacts locales au lieu de la totalité de l'interface (Figure I-12). Plus ces aires de contacts locales sont importantes par rapport à l'aire totale de l'interface, meilleur est le contact. Si les matériaux concernés étaient infiniment durs, ces aires de contacts n'évolueraient pas. Mais en réalité les matériaux peuvent localement se déformer ou se fractionner en petits morceaux et ainsi leurs aires de contacts équivalentes vont croître ce qui a pour effet de faire tendre le contact initial vers un contact parfait (surtout en cas de fortes sollicitations). Les phénomènes de déformation plastique ou de fluage étant activés thermiquement et fortement amplifiés sous l'action d'une pression extérieure, l'imperfection des contacts est donc très fortement diminuée par la pression et/ou la température (Yovanovich, 2005).

Pour modéliser ces contacts imparfaits la notion de résistances de contact électrique (RCE) ou thermique (RCT) a été introduite. En effet la conduction électrique ou thermique d'un matériau diminue si on lui ajoute une interface de contact. À pression et température constante, une augmentation de l'aire de l'interface en contact cause une augmentation de la résistance du contact. Pour s'affranchir de l'aire de contact, la conductance de contact est introduite. Ainsi dans les simulations, la densité de courant et le flux thermique aux interfaces de contact prennent la forme suivante:

$$J_{rc} = \sigma_{rc}(U_1 - U_2) \quad \text{I-11}$$

$$\dot{q}_{rc} = h_{rc}(T_1 - T_2) \quad \text{I-12}$$

Avec:  $J_{rc}$  la densité de courant,  $\dot{q}_{rc}$  le flux thermique,  $\sigma_{rc}$  la conductance électrique de contact,  $h_{rc}$  la conductance thermique de contact,  $U_i$  et,  $T_i$  le potentiel électrique et la température de part et d'autre de l'interface.

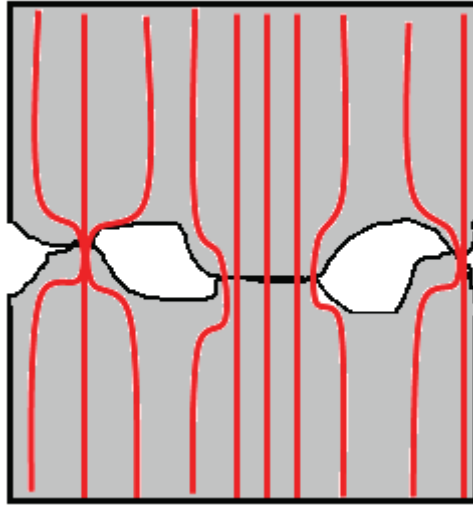


Figure I-12 Passage du courant électrique (lignes rouges) à travers une interface de contact rugueuse.

### 1.3.2 Influence des résistances de contact dans le procédé SPS

Les RCE et RCT sont susceptibles d'influencer le champ de température au niveau de toutes les interfaces internes présentes le long de la colonne SPS. Il y a trois grands types d'interfaces : Électrode/Graphite, Graphite/Graphite et Graphite/Échantillon. Pour chaque type d'interfaces, une feuille de graphite (ou spray graphite) peut être insérée et chaque interface peut être sollicitée horizontalement (perpendiculaire au sens de l'application de pression) ou verticalement (parallèle au sens d'application de pression). Le rôle des résistances de contacts verticales est majeur, car elles ne sont soumises qu'à une très faible pression. En effet, l'interface Moule/Piston est soumise uniquement à la pression engendrée par l'expansion thermique du graphite ce qui est très faible en comparaison de la pression subie horizontalement (diamètre) par les pistons. Anselmi-Tamburini et al. (Anselmi-Tamburini et al., 2005) ont même qualifiés ces contacts comme ayant un impact potentiellement plus important que les propriétés des matériaux. C'est dans cette optique que Vanmeensel et al. (Vanmeensel et al., 2005) ont effectué les mesures des résistances de contacts avec différentes configurations (Figure I-7) pour bien séparer les deux types de contacts (horizontaux et verticaux). En 2009 Grasso et al. (Grasso, Sakka, et Maizza, 2009; Grasso, Sakka, Maizza, et al., 2009) soulignent la forte sensibilité du procédé SPS aux résistances de contacts dans leurs publications visant principalement à étudier l'effet de la pression. Ils ont procédé à courant constant (1400 A) et ont fait varier la pression entre 5 et 80MPa pour comparer l'effet obtenu sur le potentiel mesuré, les gradients de température, la taille de grain, l'homogénéité de la microstructure et la dureté. Les résultats montrent clairement que l'augmentation de la pression diminue les résistances de contacts ce qui a pour effet de: diminuer le potentiel électrique mesuré, la température ainsi que le gradient de température et la taille de grain.

De plus en plus d'auteurs reconnaissent (Cai et al., 2009; Maizza et al., 2009; Vanmeensel et al., 2005; Zavaliangos et al., 2004) que la prise en compte des résistances de contact est cruciale dans la modélisation électrothermique du procédé SPS. Cependant la mesure des résistances de contact à très haute température est très difficile par des moyens conventionnels. Ainsi de plus en plus d'auteurs comme Maizza et al (Maizza et al., 2009) procèdent par analyse inverse et remontent aux résistances de contact par étalonnage des températures expérimentales. Maizza et al donnent les valeurs étalonnées suivantes pour les contacts Graphite/Graphite horizontaux:  $\sigma_{rc}=1,25 \cdot 10^7 \text{ (}\Omega \cdot \text{m}^2\text{)}^{-1}$ ,  $h_{rc}=2,2 \cdot 10^3 \text{ (W/(m}^2\text{K))}$  et pour les contact verticaux:  $\sigma_{rc}=7,5 \cdot 10^6 \text{ (}\Omega \cdot \text{m}^2\text{)}^{-1}$ ,  $h_{rc}=1,32 \cdot 10^3 \text{ (W/(m}^2\text{K))}$ .

#### **I.4 Conclusion sur la modélisation du chauffage par effet Joule du procédé SPS**

Le chauffage dans le procédé SPS se fait principalement aux endroits de la colonne SPS où il y a une réduction de section donc principalement au niveau des pistons. Ce phénomène peut engendrer des gradients de température dans le cas des formes complexes si elles impliquent des changements de section.

L'augmentation de la dimension de l'outillage peut engendrer une augmentation des gradients de température surtout s'il s'agit des pistons. Installer une feutrine de graphite isolante en surface de matrice est préférable autant pour des raisons de consommation électrique que pour diminuer les gradients de température.

Il apparaît que les résistances électriques et thermiques de contact ont un effet particulièrement important sur la répartition de température à l'intérieur de l'ensemble piston/échantillon/moule. La résistance de contact verticale (piston/moule) est très forte, car l'interface n'est sujette qu'à une très faible pression. Cette résistance de contact est même donnée par certains auteurs (Anselmi-Tamburini et al., 2005) comme ayant une influence encore plus importante que les propriétés des matériaux.

## I.5 Modélisation mécanique du frittage

Dans cette partie nous allons aborder un état de l'art sur la modélisation du frittage pour des technologies type spark plasma sintering et équivalentes. En premier lieu, une brève introduction aux notions mécaniques employées sera menée. Puis, les modèles de densification d'Abouaf et d'Olevsky ainsi que les modèles de croissance granulaires seront abordés.

### I.5.1 Généralités

#### I.5.1.1 Le tenseur des contraintes

La modélisation par élément finis (MEF) donne une résolution locale des problèmes physiques rencontrés. Les tenseurs sont donc utilisés pour mettre en relation les efforts et déformations intérieurs subis par la matière quel que soit le repère utilisé.

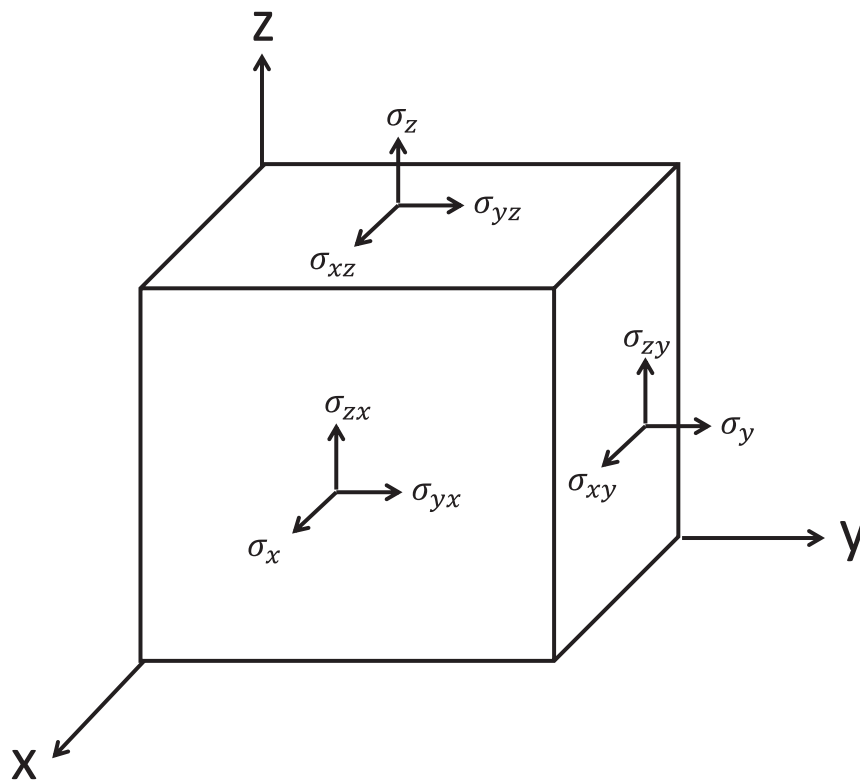


Figure I-13 Représentation des composantes du tenseur des contraintes dans un repère orthonormé  $xyz$ .

Dans ce qui suit, nous différencions les symboles correspondant à des tenseurs en les soulignant.

Le tenseur des contraintes de Cauchy (I-13) dans un repère orthonormé x,y,z (Figure I-13) s'exprime comme suit (Rao, 2011).

$$\underline{\sigma} \equiv \begin{pmatrix} \sigma_x & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_y & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_z \end{pmatrix} \quad \text{I-13}$$

Le tenseur des déformations  $\underline{\varepsilon}$  et celui des taux de déformations  $\underline{\dot{\varepsilon}}$  s'expriment de façons similaires.

Pour la face xy la composante  $\sigma_z$  correspond à un effort normal alors que les composantes  $\sigma_{xz}$  et  $\sigma_{yz}$  correspondent à des efforts tangentiels. Il est courant de décomposer le tenseur des contraintes en une partie sphérique (correspondant aux termes de la diagonale) et une partie déviatoire. Le tenseur des contraintes  $\underline{\sigma}$  est alors défini (I-14) en fonction du tenseur déviateur  $\underline{s}$  et la partie sphérique est composée d'un tenseur diagonal dont les composantes sont la moyenne des composantes diagonale du tenseur des contraintes  $\underline{\sigma}$ .

$$\underline{\sigma} = \underline{s} + \left(\frac{1}{3} \text{tr} \underline{\sigma}\right) \mathbb{i} \quad \text{I-14}$$

Avec  $\mathbb{i}$  le tenseur identité et  $\text{tr} \underline{\sigma}$  qui est la trace du tenseur de contraintes dont l'expression est donnée ci-dessous.

Les tenseurs ont des invariants qui n'évolueront pas quel que soit la base du repère utilisé. Parmi les invariants que nous utiliserons plus loin, on trouve le premier invariant du tenseur des contraintes  $I_1$  (I-15) et le second invariant du tenseur déviateur des contraintes  $J_2$  (I-16):

$$I_1 = \sigma_x + \sigma_y + \sigma_z = \text{tr} \underline{\sigma} \quad \text{I-15}$$

$$J_2 = \frac{1}{6} \left( (\sigma_x - \sigma_y)^2 + (\sigma_y - \sigma_z)^2 + (\sigma_z - \sigma_x)^2 + 6(\sigma_{xy}^2 + \sigma_{yz}^2 + \sigma_{xz}^2) \right) \quad \text{I-16}$$

### 1.5.1.2 Les contraintes équivalentes

Le tenseur des contraintes (ou des déformations) permet un calcul local d'un ensemble des neuf composantes correspondant à l'effort (ou déformation) interne subi par le matériau étudié. Mais il n'est pas facile de comparer l'état de contrainte (ou de déformation) général d'un point par rapport à un autre en comparant leurs neuf composantes respectives. La notion de contrainte ou de déformation équivalente ( $\sigma_{eq}, \varepsilon_{eq}$ ) permettent entre autre de réduire les neuf composantes du tenseur en un seul nombre capable de rendre compte d'un état de contrainte (ou de déformation) moyen au niveau du point de matière concerné.

Pour les études de matériaux denses, la contrainte équivalente de von Misès (I-17) est très couramment utilisée et se définit en fonction du second invariant du tenseur déviateur des contraintes.  $J_2$ :

$$\sigma_{vmises} = \sqrt{3J_2} \quad \text{I-17}$$

Une définition de la contrainte équivalente d'un matériau poreux (I-18) est donnée par Green (Green, 1972) en fonction des paramètres dépendants de la porosité  $f$  et  $c$ .

$$\sigma_{eq} = \sqrt{3cJ_2 + fI_1^2} \quad \text{I-18}$$

Les coefficients de Green  $c$  et  $f$  permettent le lien entre le comportement en déformation d'un matériau dense et celui d'un matériau poreux, lorsque la densité relative du matériau étudié tend vers 1,  $f$  tend vers 0 et  $c$  tend vers 1 et l'expression de la contrainte équivalente devient alors celle de la contrainte équivalente de Von Mises.

Dans le modèle de frittage décrit par Olevsky (Olevsky, 1998; Olevsky, Bradbury, et al., 2012; Olevsky, Garcia-Cardona, et al., 2012), c'est le taux de déformation équivalent (I-19) qui est exprimé à l'aide d'invariants (I-20, I-21) du tenseur du taux de déformation  $\underline{\dot{\epsilon}}$  et des fonctions  $\psi$  et  $\varphi$  dépendantes de la porosité  $\theta$ .

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{1}{\sqrt{1-\theta}} \sqrt{\varphi \dot{\gamma}^2 + \psi \dot{\epsilon}^2} \quad \text{I-19}$$

Avec les invariants:

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_x + \dot{\epsilon}_y + \dot{\epsilon}_z \quad \text{I-20}$$

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2(\dot{\epsilon}_{xy}^2 + \dot{\epsilon}_{xz}^2 + \dot{\epsilon}_{yz}^2) + \frac{2}{3}(\dot{\epsilon}_x^2 + \dot{\epsilon}_y^2 + \dot{\epsilon}_z^2) - \frac{2}{3}(\dot{\epsilon}_x \dot{\epsilon}_y + \dot{\epsilon}_x \dot{\epsilon}_z + \dot{\epsilon}_y \dot{\epsilon}_z)} \quad \text{I-21}$$

### 1.5.1.3 Equation d'équilibre des forces locales

Les principes de la mécanique statique aboutissent à :

$$\text{div}(\underline{\sigma}) = 0 \quad \text{I-22}$$

Pour un repère (x,y,z) on obtient :

$$\begin{cases} \frac{\partial \sigma_x}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{xz}}{\partial z} = 0 \\ \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_y}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{yz}}{\partial z} = 0 \\ \frac{\partial \sigma_{xz}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{yz}}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_z}{\partial z} = 0 \end{cases} \quad \text{I-23}$$

*1.5.1.4 Loi de comportement locale pour l'élasticité linéaire :*

En traction et en élasticité linéaire, la loi de comportement est classiquement la loi de Hooke (I-24), analytiquement cette loi donne la contrainte appliquée  $\sigma$  comme étant le produit du module de Young  $E$  et de la déformation  $\varepsilon$ .

$$\sigma = E\varepsilon \quad \text{I-24}$$

Mais cette loi n'est qu'un cas particulier; la loi de Hooke généralisée, pour un matériau isotrope fait intervenir le tenseur des contraintes  $\underline{\sigma}$  et des déformations  $\underline{\varepsilon}$  comme suit :

$$\underline{\sigma} = 2\mu\underline{\varepsilon} + \lambda tr(\underline{\varepsilon})\mathbb{I} \quad \text{I-25}$$

Avec  $\mu$  et  $\lambda$  les coefficients de Lamé qui sont reliés au module de Young  $E$  et au coefficient de Poisson  $\nu$  par les relations suivantes.

$$\begin{cases} \mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \\ \lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} \end{cases} \quad \text{I-26}$$

En utilisant la loi de Hooke généralisée et l'expression de l'équation d'équilibre, on obtient l'équation vérifiant les déformations du solide (I-27) qui doit être complétée des conditions aux limites caractérisant un problème élastique.

$$div(2\mu\underline{\varepsilon} + \lambda tr(\underline{\varepsilon})\mathbb{I}) = 0 \quad \text{I-27}$$

*1.5.1.5 Loi de comportement de fluage en température:*

Le fluage est un phénomène physique de déformation irréversible. Ce phénomène est dit "différé" ce qui signifie qu'il n'est pas instantané, mais évolue dans le temps en trois étapes (Figure I-14).

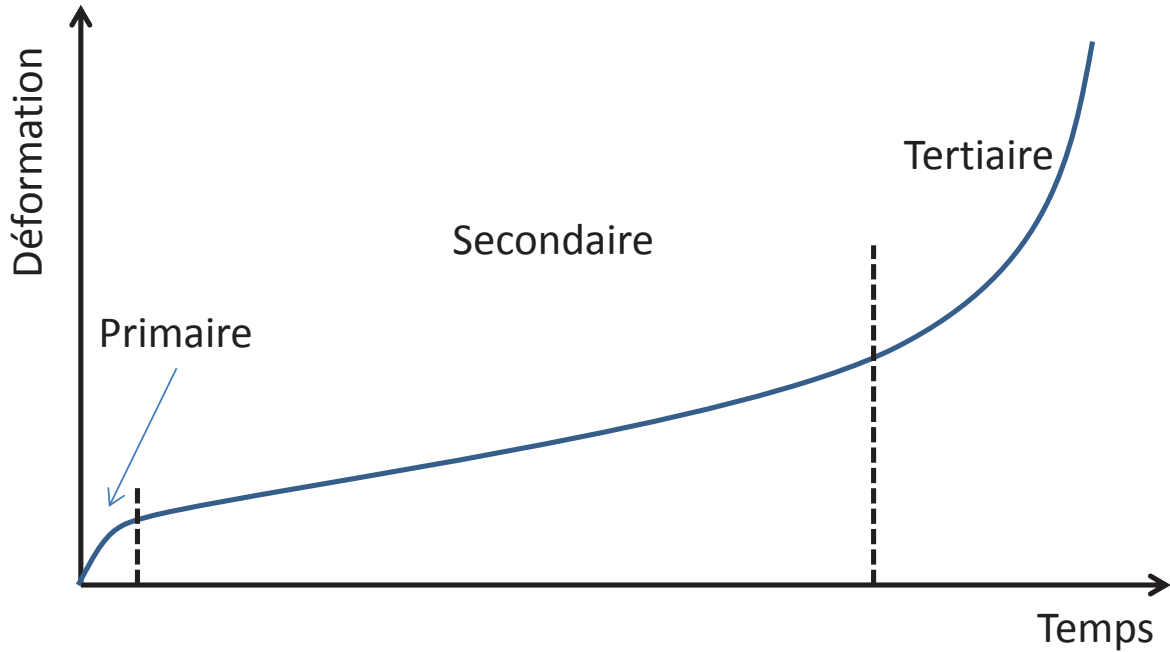


Figure I-14 Trois stades de la courbe type de fluage à température constante.

Le stade primaire (généralement très court) est caractérisé par une diminution très rapide de la vitesse de déformation jusqu'à atteindre une vitesse constante. Le stade secondaire qui constitue généralement la majeure partie du phénomène est caractérisé par une vitesse de déformation minimale et qui reste constante. Le fluage secondaire est généralement associé à des modèles de diffusion atomique au sein de la matière (Bernard-Granger et Guizard, 2007) dont les relations sont de la forme générale suivante:

$$\dot{\varepsilon}_{eq} = C \frac{D\mu b}{kT} \left(\frac{b}{G}\right)^{m_g} \left(\frac{\sigma_{eq}}{\mu}\right)^n \quad \text{I-28}$$

Avec, C une constante, k la constante de Boltzmann, b le vecteur de Burgers, G la taille de grain,  $\mu$  le module de cisaillement,  $\sigma_{eq}$  la contrainte, T la température, D le coefficient de diffusion et avec  $m_g$  et n les exposants de la taille de grains et des contraintes.

À température et taille de grain constante, le coefficient de diffusion est constant et la loi de fluage se simplifie en la loi de Norton (I-29).

$$\dot{\varepsilon}_{eq} = A\sigma_{eq}^n \quad \text{I-29}$$

La loi de Sellars et Tegart (I-30) peut parfois être employée pour les domaines de fortes vitesses de déformations qui peuvent présenter une non-linéarité entre le logarithme du taux de déformation et le logarithme de la contrainte.



$$\dot{\epsilon}_{eq} = A \left( \sinh(\alpha \sigma_{eq}) \right)^n \quad \text{I-30}$$

La dépendance de la température de A (I-31) pour des phénomènes de fluage avec des mécanismes de diffusion en volume ou aux joints de grains ou des mécanismes de dislocations est gouvernée par le coefficient de diffusion qui suit une loi d'Arrhenius (German, 1996; Rahaman, 2008):

$$A = \frac{A_0}{T} \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad \text{I-31}$$

Avec  $A_0$  une constante et Q l'énergie d'activation.

Le stade tertiaire du fluage quant' à lui est caractérisé par la striction de l'éprouvette jusqu'à la rupture dans le cas de la traction.

Il existe plusieurs mécanismes possibles de fluage qui correspondent dans le cas des céramiques à différents couples de valeurs théoriques d'exposant  $m_g$  et n. L'exposant des contraintes est très important car il traduit le caractère non linéaire d'une loi de fluage. Il ressort de la Table I-1 que les lois de fluage par mécanisme de diffusion ou de glissement aux joints de grain sont linéaires ( $n=1$ ) et que les mécanismes faisant intervenir des dislocations sont non linéaires ( $n>1$ ).

Remarquons que la taille de grain, est placée au dénominateur dans l'expression de la loi de fluage vue un peu plus haut (I-28). En d'autres termes, la croissance granulaire devrait contribuer à la diminution de la vitesse de déformation. Le mécanisme de fluage par diffusion en volume permet entre autres de comprendre ce phénomène. Si l'on considère comme présenté Figure I-15, un grain rectangulaire soumis à une compression simple. Son écrasement devrait résulter d'un apport de matière du centre du grain vers les bords par diffusion atomique à travers le volume. Hors plus la taille du grain en question est importante plus le chemin de diffusion (flèches noires Figure I-15) sera long ce qui va avoir pour effet d'amoinrir la vitesse de fluage. Pour les mécanismes de fluage par diffusion ou glissement aux joints de grains, c'est la même chose, plus la taille de grain est importante, moins la quantité d'interfaces de joints de grains est importante donc plus lent est le fluage. La seule exception est pour le mécanisme de déformation plastique qui fait intervenir des dislocations. En effet, le mouvement des dislocations est gêné par les joints de grains ce qui implique une meilleure déformation plastique pour des grains de grande taille. Nous remarquerons que dans ce cas l'exposant de la taille de grain  $m_g$  est égal à zéro (Table I-1).

Table I-1 Valeurs des exposants des contraintes et de taille de grains pour différents mécanismes de fluage de matériaux denses sous contrainte (Rahaman, 2008).

Mécanismes	Exposant de taille de grain ( $m_g$ )	Exposant de contrainte (n)
Diffusion en volume	2	1
Diffusion aux joints de grains	3	1
Glissement aux joints de grains	1	1 ou 2
Déformation plastique	0	>3

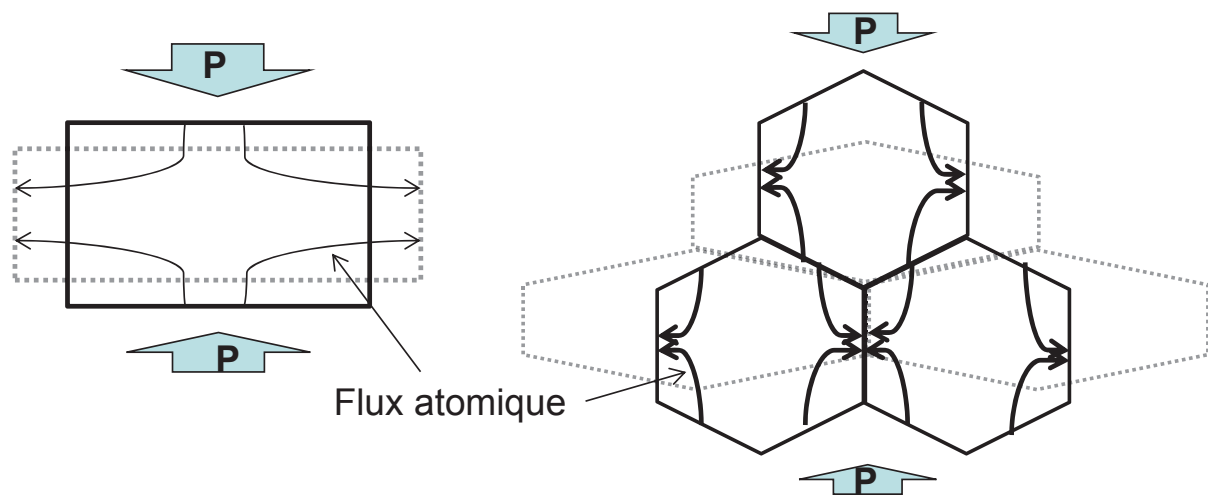


Figure I-15 Représentation des flux atomiques au niveau du grain en compression dans le cas du fluage par diffusion en volume : à gauche, pour un grain rectangulaire (Rahaman, 2008), à droite, pour des grains de matière polycristallins (les formes en pointillé représentent des déformées du fluage).

Ce qui précède nous conduit à une première conclusion très importante pour le frittage des matériaux céramiques. La plupart des céramiques ayant des liaisons iono-covalentes limitant le mouvement des dislocations, les principaux mécanismes de fluage à l'œuvre dans le frittage sous charge sont les mécanismes de diffusion (aux joints de grains ou par le volume) et glissement aux joints de grains. Or d'après ce qui précède le fluage est amoindri pour des tailles de grains importantes. Il est donc possible d'amplifier considérablement les cinétiques de frittage des céramiques en privilégiant des granulométries de poudre de départ nanométriques.

1.5.2 Les modèles de frittage sous charge

1.5.2.1 État de l'art

Bien que le mécanisme de frittage naturel soit présent lors du frittage sous charge, il ne permet pas d'expliquer la forte augmentation des cinétiques de densification engendrée par l'application d'une pression extérieure. Dans la plupart des cas, ce mécanisme est négligeable, surtout pour de fortes pressions. Les modèles traitant du frittage sous charge sont pour la plupart basés sur une loi de fluage pouvant faire intervenir plusieurs mécanismes de déformation (Table I-1). Ainsi l'expression du taux de densification (I-32) reliant la contrainte  $\sigma$ , la densité relative  $\rho$ , la taille de grains  $G$  et les exposants de la contrainte  $n$  et de la taille de grain  $m_g$ , prend la forme générale suivante:

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dt} = A \frac{\sigma^n}{G^{m_g}} \quad \text{I-32}$$

La plupart des modèles analytiques de frittage dans la littérature utilisent la forme précédente. Par exemple, le modèle de Bernard-Granger et al (I-33) (Bernard-Granger et Guizard, 2007), très largement répandu dans la littérature (Guyot et al., 2014; Langer et al., 2009; Santanach et al., 2011) détaille beaucoup de termes utilisés dans les lois de fluage théoriques, comme le coefficient de diffusion  $D$ , la taille de grains  $G$  et le vecteur de Burgers  $b$ :

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\rho}{dt} = BD \frac{\mu_{eff} b}{kT} \left(\frac{b}{G}\right)^{m_g} \left(\frac{\sigma_{eff}}{\mu_{eff}}\right)^n \quad \text{I-33}$$

avec :  $B$  une constante.

De même que pour l'expression de la contrainte équivalente  $\sigma_{eq}$  d'un matériau poreux, la contrainte effective  $\sigma_{eff}$  et le module de cisaillement  $\mu_{eff}$  du modèle de Bernard-Granger et al sont définis en fonction de la densité relative du matériau considéré. Helle et al (Helle et al., 1985) ont proposé des relations théoriques pour  $\sigma_{eff}$  et  $\mu_{eff}$  qui ont été par la suite très largement reprises. Comme pour de nombreux auteurs, Helle et al base sa théorie sur l'hypothèse d'un empilement de sphères dures.

La majorité des lois de compactions théoriques sont basées sur des hypothèses géométriques permettant de traduire le comportement théorique d'un volume élémentaire poreux (à petite échelle), pour déterminer le comportement macroscopique du matériau. Ce volume élémentaire est appelé volume élémentaire représentatif (VER). Certains VER intègrent la porosité d'un matériau comme un empilement de sphères dures (Arzt, 1982; Bouvard et Ouedraogo, 1987; Kuhn et McMeeking, 1992; Rao et Chaklader, 1972), d'autre

comme une sphère (E. A. Olevsky, 1998; Srivastava et Needleman, 2013), une ellipse (Olevsky et Froyen, 2009; Olevsky et Froyen, 2006) ou un cube (Scherer, 1977) de vide. D'autres utilisent des géométries réelles d'empilement granulaire déterminé par tomographie X ou par microscopie électronique. Une autre approche consiste à utiliser des modèles discrets de frittage, c'est à dire des modèles opérant à l'échelle du grain pour déterminer des lois de compaction macroscopiques (Martin et al., 2015; Rasp et al., 2013; Shinagawa, 2014; Wu et al., 2014). Enfin, il est possible d'extraire les lois de compaction à partir d'essais mécaniques spécifiques, comme cela se fait pour les coefficients de Green  $c$  et  $f$  dans le modèle d'Abouaf (Abouaf et Chenot, 1983; Besson, 1990). L'approche expérimentale donne généralement de meilleurs résultats que les approches théoriques, mais les lois obtenues ne sont que rarement généralisables.

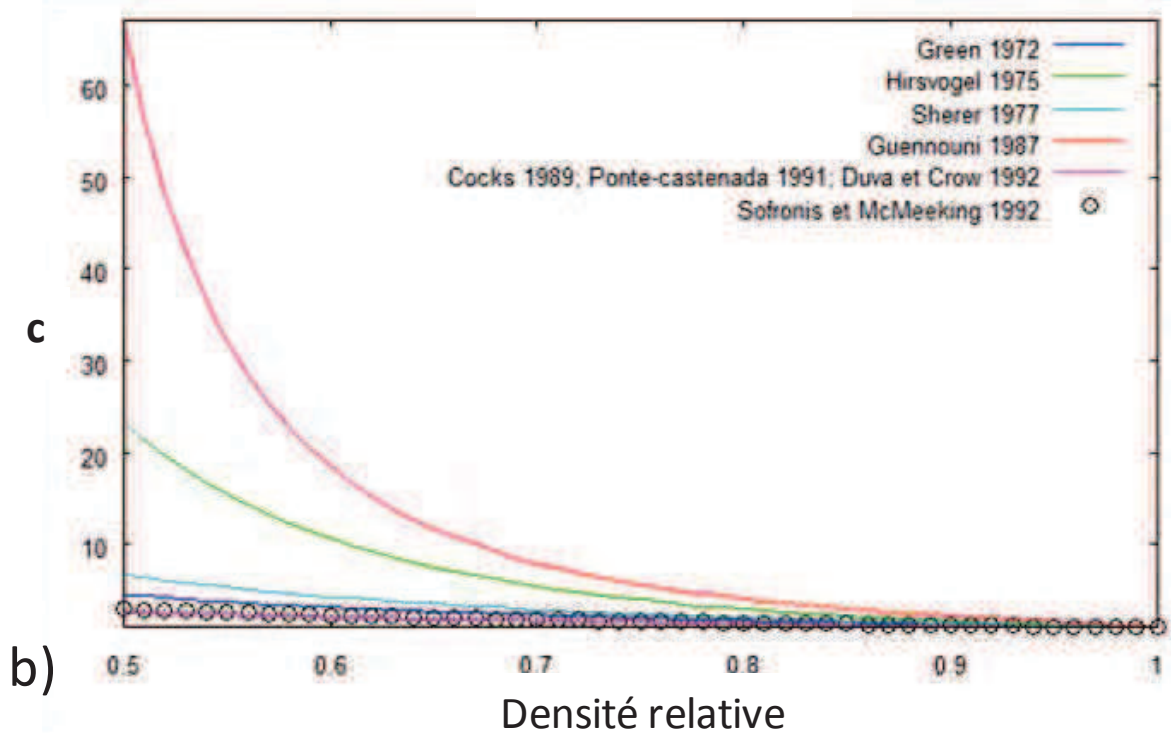
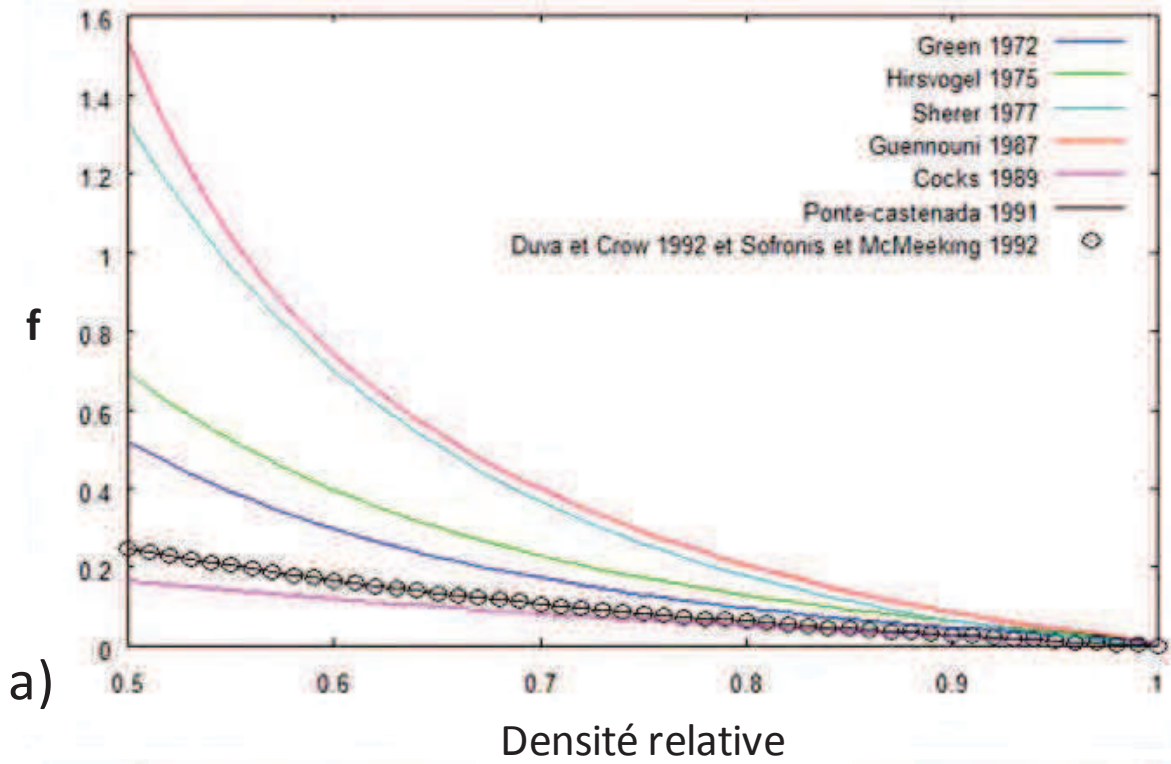
La simulation par la méthode des éléments finis du frittage sous charge fait intervenir comme nous l'avons vu pour le cas de l'élasticité, des lois de comportement locales reliant les tenseurs des contraintes  $\underline{\sigma}$  et du taux de déformation  $\underline{\dot{\epsilon}}$ . On trouve dans la littérature plusieurs types de modèles de compaction, le modèle de Bouvard, McMeeking (Bouvard et Ouedraogo, 1987; Kim et Jeon, 1998; Kuhn et McMeeking, 1992), le modèle Cam Clay (Favrot et al., 2004; Ranjit et al., 2012). Le modèle Cam Clay est initialement un modèle de compaction de poudre à froid utilisé principalement en géophysique, ce modèle est maintenant de plus en plus répandu dans la modélisation du frittage sous charge. Enfin les deux modèles parmi les plus répandus pour la modélisation du frittage sur des procédés type compaction isostatique à chaud (CIC), hot pressing (HP) et SPS sont les modèles d'Abouaf (Abouaf et al., 1988; Abouaf et Chenot, 1986) et d'Olevsky (Olevsky, 1998) utilisés dans ce travail de thèse.

### *1.5.2.2 Modèle d'Abouaf*

#### *1.5.2.2.1 État de l'art*

Les travaux de thèse de Marc Abouaf en 1985 (Abouaf, 1985) constituent une des premières applications du modèle dit "Norton-Green" de compaction de poudre à haute température. L'un des points clefs pour la détermination des paramètres de compaction de ce modèle et la détermination des fonctions  $c$  et  $f$ . Ces fonctions évoluent en fonction de la densité relative et traduisent le comportement sphérique (lié à une sollicitation hydrostatique pour  $f$ ) et déviatoire (lié aux sollicitations de cisaillement pour  $c$ ) d'un matériau poreux ou pulvérulent. Le modèle d'Abouaf (ou modèle "Norton-Green") initialement introduit pour la modélisation de la compaction isostatique à chaud d'un superalliage base nickel a été repris par beaucoup d'autres auteurs pour traiter de la compaction de divers matériaux:

Le cas de l'alumine est traité pour le procédé CIC à l'occasion des travaux de thèse de Jacques Besson (Besson, 1990). Celui du Bore est étudié dans les travaux de thèse de Cyril Nicolle (Nicolle, 1999) pour le procédé CIC. Le cas du plomb est étudié par Geindreau (Geindreau et al., 1999a, 1999b) avec un modèle d'Abouaf modifié permettant la prise en compte du durcissement du matériau. Le cas du Nickel est abordé dans les travaux de thèse de Cyprien Wolff (C. Wolff, 2011; Wolff et al., 2012) pour le procédé SPS. Dans le même procédé Pamela Mondalek (Mondalek, 2012; Mondalek et al., 2011) a étudié la compaction d'une poudre de TiAl allant jusqu'à modéliser l'effet du frottement poudre/moule sur la densification. On trouve également un jeu de  $c$  et  $f$  correspondant à l'alliage TA6V dans les travaux de Xue et al (Xue et al., 2011). Les coefficients de Green  $c$  et  $f$  identifiés par ces différents auteurs sont rassemblés Figure I-16 avec en comparaison les  $c$  et  $f$  issus d'études théoriques obtenus par différents auteurs (Castañeda, 1991; Cocks, 1989; Duva et Crow, 1992; Green, 1972; Guennouni, 1987; Scherer, 1977; Sofronis et McMeeking, 1992). Les valeurs expérimentales des fonctions  $c$  et  $f$  sont de manière générale beaucoup plus élevées que les valeurs théoriques.



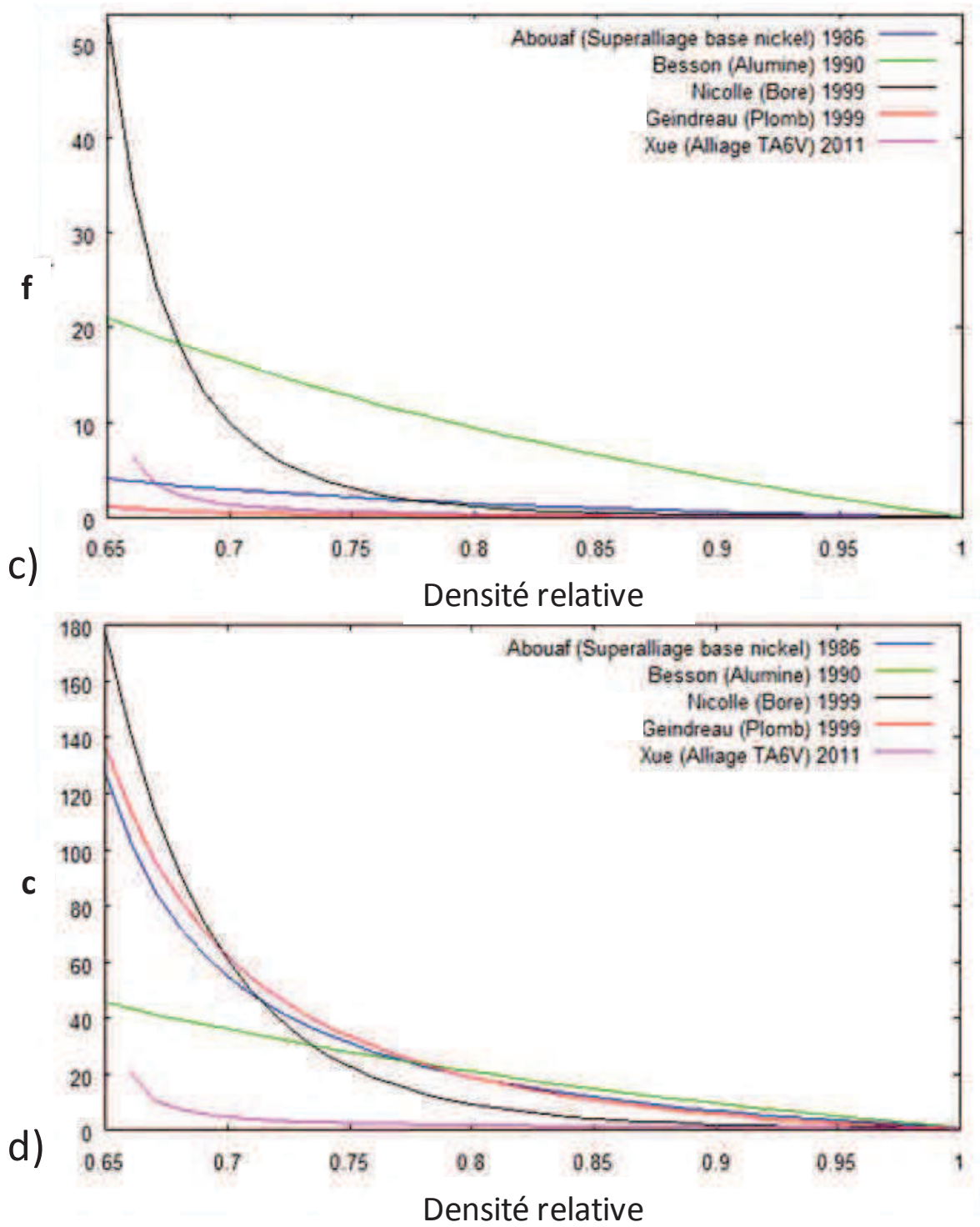


Figure I-16 Fonctions  $c$  et  $f$  issus de modèles théoriques (a, b). Fonctions  $c$  et  $f$  issus d'essais expérimentaux sur matériau poreux (c, d).

#### 1.5.2.2.2 Démonstration et description du modèle

Le tenseur taux de déformation viscoplastique est défini grâce à un potentiel  $\Omega$  qui dépend des contraintes, de la température  $T$  et de la densité relative  $\rho$ .

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\sigma}} \quad \text{I-34}$$

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = \frac{\partial \Omega}{\partial \sigma_{eq}} \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \underline{\sigma}} = \lambda_a \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \underline{\sigma}} \quad \text{I-35}$$

avec le scalaire  $\lambda_a = \frac{\partial \Omega}{\partial \sigma_{eq}}$

On déduit de ce qui précède et de l'expression de la contrainte équivalente de Green, le tenseur du taux de déformation.

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = \frac{\lambda_a}{2\sigma_{eq}} \left[ 3c \frac{\partial J_2}{\partial \underline{\sigma}} + 2fI_1 \frac{\partial I_1}{\partial \underline{\sigma}} \right] \quad \text{I-36}$$

soit :

$$\frac{\partial J_2}{\partial \underline{\sigma}} = \underline{\mathcal{S}} \quad \text{I-37}$$

$$\frac{\partial I_1}{\partial \underline{\sigma}} = \underline{\mathbb{I}} \quad \text{I-38}$$

L'expression de  $\underline{\dot{\varepsilon}}$  devient alors :

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = \frac{\lambda_a}{\sigma_{eq}} \left[ \frac{3c}{2} \underline{\mathcal{S}} + fI_1 \underline{\mathbb{I}} \right] \quad \text{I-39}$$

avec les parties sphériques et déviatrices de  $\underline{\dot{\varepsilon}}$  suivantes :

$$\dot{\varepsilon}_{sph} = \frac{3\lambda_a f}{\sigma_{eq}} I_1 \underline{\mathbb{I}} \quad \text{I-40}$$

$$\dot{\varepsilon}_{dev} = \frac{3\lambda_a c}{2\sigma_{eq}} \underline{\mathcal{S}} \quad \text{I-41}$$

En écrivant la puissance équivalente on obtient :

$$\dot{\varepsilon}_{eq} \sigma_{eq} = \underline{\dot{\varepsilon}} : \underline{\sigma} \quad \text{I-42}$$

soit :

$$\underline{\dot{\varepsilon}} : \underline{\sigma} = \frac{\partial \Omega}{\partial \sigma_{eq}} \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \underline{\sigma}} : \underline{\sigma} = \lambda_a \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \underline{\sigma}} : \underline{\sigma} \quad \text{I-43}$$

En remarquant que:

$$\frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \underline{\sigma}} : \underline{\sigma} = \sigma_{eq} \quad \text{I-44}$$

Il vient:



$$\lambda_a = \frac{\partial \Omega}{\partial \sigma_{eq}} = \dot{\epsilon}_{eq} \quad \text{I-45}$$

L'expression finale de la loi de comportement locale implémentée dans le modèle numérique à la forme générale ci-dessous, où l'on retrouve les coefficients de Green  $c$  et  $f$  qui dépendent de la porosité et le terme  $\frac{\dot{\epsilon}_{eq}}{\sigma_{eq}}$  qui dépend de la loi de fluage du matériau considéré dense.

$$\underline{\dot{\epsilon}} = \frac{\dot{\epsilon}_{eq}}{\sigma_{eq}} \left( \frac{3c}{2} \underline{s} + f I_1 \mathbb{1} \right) \quad \text{I-46}$$

Abouaf exprime les fonctions  $f$  et  $c$  fonctions de la densité relative  $\rho$  avec la forme suivante :

$$f = k_a \frac{(1-\rho)}{(\rho-\rho_{cr})} \quad \text{I-47}$$

$$c = 1 + a \frac{(1-\rho)}{(\rho-\rho_{cr})} \quad \text{I-48}$$

Avec,  $k_a$ ,  $a$  des constantes et  $\rho_{cr}$  la densité relative critique.

La forme générale de l'expression du taux de densification s'écrit sous la forme suivante en utilisant la loi de fluage de Norton.

$$\underline{\dot{\epsilon}} = A \sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c \underline{s} + f I_1 \mathbb{1} \right) \quad \text{I-49}$$

Cette loi peut être exprimée dans un repère matériau  $(x,y,z)$  sous forme de matrices :

$$\begin{pmatrix} \dot{\epsilon}_x & \dot{\epsilon}_{xy} & \dot{\epsilon}_{xz} \\ - & \dot{\epsilon}_y & \dot{\epsilon}_{yz} \\ - & - & \dot{\epsilon}_z \end{pmatrix} = A \sigma_{eq}^{n-1} c \frac{3}{2} \begin{pmatrix} s_x & s_{xy} & s_{xz} \\ - & s_y & s_{yz} \\ - & - & s_z \end{pmatrix} + A \sigma_{eq}^{n-1} f I_1 \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{I-50}$$

La matrice des taux de déformations viscoplastiques est la matrice avec laquelle est implémentée la loi de Norton-Green dans le code de modélisation par éléments finis COMSOL Multiphysics. Les différentes composantes sont exprimées ci-dessous.

$$\dot{\epsilon}_x = A\sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c s_x + f I_1 \right) \quad \text{I-51}$$

$$\dot{\epsilon}_{xy} = A\sigma_{eq}^{n-1} \frac{3}{2} c s_{xy} \quad \text{I-52}$$

$$\dot{\epsilon}_{xz} = A\sigma_{eq}^{n-1} \frac{3}{2} c s_{xz} \quad \text{I-53}$$

$$\dot{\epsilon}_y = A\sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c s_y + f I_1 \right) \quad \text{I-54}$$

$$\dot{\epsilon}_{yz} = A\sigma_{eq}^{n-1} \frac{3}{2} c s_{yz} \quad \text{I-55}$$

$$\dot{\epsilon}_z = A\sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c s_z + f I_1 \right) \quad \text{I-56}$$

Nous avons vu dans ce qui précède qu'un problème élastique peut être défini grâce à l'équation d'équilibre des forces locales et la loi de comportement local. Dans les modèles de compaction de poudre, il faut rajouter l'équation locale de conservation de la masse (I-57), qui permet d'attribuer une évolution de la densité relative d'un point donné en fonction de son taux de changement de volume  $tr(\dot{\epsilon})$ .

$$\frac{\dot{\rho}}{\rho} = -tr(\dot{\epsilon}) = -\frac{3\dot{\epsilon}_{eq} f I_1}{\sigma_{eq}} \quad \text{I-57}$$

En déterminant les paramètres de fluage et les fonctions de compaction  $c$  et  $f$ , il est possible de simuler la compaction d'une poudre pour la plupart des procédés de frittage sous charge. Ce modèle à la base construit à partir de lois de fluage classiques peut facilement être adapté à divers phénomènes de frittage (effet du courant, effet des séquences de pulses etc) à condition que l'on puisse effectuer des essais mécaniques dans les mêmes conditions.

### 1.5.2.3 Modèle d'Olevsky

#### 1.5.2.3.1 État de l'art

Le modèle de frittage présenté par Olevsky et Froyen (Olevsky et Froyen, 2006) pour l'aluminium est parmi les plus complets étant apparus dans la littérature, car il prend en compte beaucoup de phénomènes impliqués dans le procédé SPS dont le phénomène d'électromigration. Dans ce modèle, le tenseur des taux de déformations est défini comme la somme des effets de la contrainte mécanique, de l'électromigration et des tensions de surfaces des particules en contact (frittage naturel). Le modèle théorique obtenu est en bon accord avec la courbe de retrait en régime thermique anisotherme.

Dans une étude similaire publiée en 2009 (Olevsky et Froyen, 2009) sur l'alumine, ces mêmes auteurs ont étudié l'effet de la thermodiffusion de lacunes engendré par des gradients thermiques locaux. Ce phénomène de thermodiffusion également appelé effet Ludwig-Soret est introduit dans cette étude pour expliquer entre autres, l'accélération significative de la densification suite à une augmentation des cinétiques de montée en température. Comme pour la précédente étude de 2006, le modèle théorique introduit définit le taux de déformation en trois composantes. Le taux de déformation correspondant à l'application extérieure de pression (la loi de fluage), le taux de déformation correspondant aux tensions de surfaces dues à la courbure des grains (le frittage naturel) et enfin la composante correspondant à la thermodiffusion de lacunes causées par les gradients locaux (l'effet Ludwig-Soret). La décorrélation de ces trois effets montre que la déformation par fluage est l'effet dominant à basse température. Les effets de tensions de surfaces et de thermodiffusion sont assez proches et rejoignent en importance le phénomène de fluage vers 1350°C.

Le modèle décrit dans ce qui suit, est basé sur le phénomène de fluage et est très proche du modèle d'Abouaf présenté précédemment. Cette version du modèle d'Olevsky est la plus répandue dans la littérature et est détaillée dans une revue publiée en 1998 dans *Materials science engineering R* (Olevsky, 1998).

#### *1.5.2.3.2 Description du modèle*

La loi de comportement de fluage utilisée par Olevsky est une loi de Norton (I-58) mais présentée différemment de la forme abordée précédemment:

$$\sigma_{eq} = K \dot{\epsilon}_{eq}^m \quad \text{I-58}$$

Le terme  $m$  est l'inverse de l'exposant de contraintes ( $n$ ) et  $K$  est (comme  $A$ ) un coefficient dépendant de la température qui caractérise la consistance du matériau. La correspondance entre les deux écritures (entre  $K$  et  $A$ ) se fait par la formule suivante:

$$K = \frac{1}{A^{\frac{1}{n}}} = \frac{1}{A_0^m} T^m \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right) \quad \text{I-59}$$

La loi de comportement locale (I-60) du modèle d'Olevsky détaille l'expression du tenseur des contraintes :

$$\underline{\sigma} = \frac{\sigma_{eq}}{\dot{\epsilon}_{eq}} \left( \varphi \dot{\underline{\epsilon}} + \left( \psi - \frac{1}{3} \varphi \right) tr(\dot{\underline{\epsilon}}) \mathbb{1} \right) + P_l \mathbb{1} \quad I-60$$

avec:  $\varphi$  et  $\psi$  des fonctions de la porosité représentant les modules correspondant respectivement au cisaillement et à une sollicitation isostatique,  $P_l$  représente la contrainte effective engendrée par les énergies de surfaces des grains en contact (I-63).

Le terme  $P_l$  permet de prendre en compte le phénomène de frittage naturel qui peut agir conjointement au fluage engendré par la pression extérieure appliqué à l'échantillon. Ce terme peut cependant être négligé pour des cycles utilisant de fortes pressions et avec des cycles thermiques courts.

$$\varphi = (1 - \theta)^2 \quad I-61$$

$$\psi = \frac{2(1-\theta)^3}{3\theta} \quad I-62$$

$$P_l = \frac{3\alpha}{r_0} (1 - \theta)^2 \quad I-63$$

Avec:  $\theta$  la porosité,  $r_0$  le rayon moyen des particules,  $\alpha$  l'énergie de surface.

Le taux de déformation équivalent  $\dot{\epsilon}_{eq}$  d'Olevsky (I-19) pour un matériau poreux est défini en fonction des invariants ( $\dot{\epsilon}$ ,  $\dot{\gamma}$ ) du tenseur taux de déformation.

L'équation de conservation de la masse (I-64) est définie avec la porosité:

$$\frac{\dot{\theta}}{1-\theta} = \dot{\epsilon}_x + \dot{\epsilon}_y + \dot{\epsilon}_z \quad I-64$$

#### 1.5.2.4 La croissance granulaire

La croissance granulaire est un processus permettant l'augmentation de la taille moyenne des grains d'un polycristal. La diminution d'énergie libre associée aux joints de grain en est la principale force motrice. Ce processus a potentiellement un fort impact sur le frittage, car comme nous l'avons vu dans le chapitre consacré aux mécanismes de fluage, la croissance de grain diminue les vitesses de fluage et par conséquent les cinétiques de frittage. Dans les premières modélisations de ce phénomène (Brook, 1976; Burke et Turnbull, 1952) un modèle à un grain est employé pour relier le déplacement des joints de grains à la vitesse de migration des atomes. Il en ressort un premier modèle (I-65) de la croissance granulaire, comme suit:

$$G^2 - G_0^2 = k_g t \quad \text{I-65}$$

Le facteur de croissance  $k_g$  est défini en fonction de la température (I-66) avec une dépendance type Arrhenius:

$$k_g = k_i \exp\left(-\frac{Q_g}{RT}\right) \quad \text{I-66}$$

Avec  $G_0$  la taille de gains initiale,  $t$  le temps.

Ce type de modèle répond à une croissance granulaire normale qui se caractérise par une distribution de taille de grains relativement étroite et qui est observée à haute température (la moitié de la température de fusion) sur de nombreux matériaux. Certains auteurs ont développé à ce propos des modèles sur la répartition de la taille de grains (Hillert, 1965; Louat, 1974).

La croissance de grain peut être freinée par de nombreux phénomènes dont les principaux, sont, la porosité, la présence de précipités et d'impuretés (Ashby et Gentamore, 1968). La porosité peut faire office d'obstacle à la croissance granulaire en diminuant la mobilité des joints de grains. En effet, la porosité initialement présente aux joints de grains accompagne leurs migrations qui s'opèrent au fur et à mesure de la croissance granulaire. Mais les pores ayant une mobilité bien inférieure à celle des joints de grains (Brook, 1969; Hsueh et al., 1982) freinent ce processus de migration. Dans certains cas, la porosité passe à l'intérieur du grain ou son élimination est beaucoup plus difficile (Spears et Evans, 1982). Ainsi Zhao et Harmer (Zhao et Harmer, 1988a, 1988b) proposent un modèle de la croissance granulaire (I-67) dépendant de la densité relative  $\rho$  du matériau.

$$\dot{G} = \frac{A_g(T)N^{\frac{1}{3}}}{G^3(1-\rho)^{\frac{4}{3}}}\left(1 - \frac{G}{G_{max}}\right) \quad \text{I-67}$$

Avec  $G_{max}$  la taille de grain maximale,  $A_g$  le facteur de croissance qui est dépendant de la température et  $N$  le nombre de sommets occupés par la porosité.

En ce qui concerne l'interaction contrainte-croissance granulaire, nous avons vu dans ce qui précède que la croissance granulaire peut influencer les lois de fluage. Certains auteurs (Clark et Alden, 1973; Fridez, 1986; Tagai et Zisner, 1968; Venkatachari et Raj, 1986) montrent que réciproquement, l'effet de la contrainte (et en conséquence de la déformation) peut également avoir une influence sur la croissance granulaire.

Pour le cas de l'alumine dense sous contrainte, Fridez et al propose la relation suivante (I-68) dépendante de la contrainte  $\sigma$  et d'un volume d'activation  $V^*$ .

$$\dot{G} = \frac{A_{g0} \exp\left(\frac{V^* \sigma - Q_g}{k_b T}\right)}{G^3} \quad \text{I-68}$$

La forme la plus généralement répandue dans la littérature est celle prise par Besson (Besson, 1990; Besson et Abouaf, 1989), qui est une forme simplifiée (I-69) des équations précédentes ne prenant en compte que l'effet de la température :

$$\dot{G} = \frac{k_0 \exp\left(\frac{-Q_g}{RT}\right)}{G^{m_g}} \quad \text{I-69}$$

Avec pour l'alumine, le terme fixe du facteur de croissance  $k_0=3,15 \cdot 10^{-12} \text{ m}^4 \cdot \text{s}^{-1}$ , une énergie d'activation  $Q_g=564 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ , R la constante des gaz parfaits et l'exposant de la taille de grain  $m_g=3$ .

Olevsky utilise dans ces modèles (Olevsky, Bradbury, et al., 2012; Olevsky, Garcia-Cardona, et al., 2012) une loi similaire (I-70) avec une dépendance de la porosité:

$$\dot{G} = \frac{k_0}{3G^2} \left(\frac{\theta_c}{\theta_c + \theta}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-Q_g}{RT}\right) \quad \text{I-70}$$

Avec pour l'alumine,  $k_0=7 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $Q_g=570 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ ,  $\theta$  la porosité et  $\theta_c=0,05$  la porosité critique et  $m_g=2$ . Comme dans les formules classiques de fluage, la taille de grain apparait dans le sens d'une diminution de la vitesse de fluage (I-71).

Dans le modèle d'Olevsky la taille de grain affecte le terme de la consistance K de la façon suivante:

$$K = \left(\frac{G}{G_0}\right)^{m_g} \frac{1}{A_0^{\frac{1}{n}}} T^m \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right) \quad \text{I-71}$$

## I.6 Conclusion sur la modélisation du frittage

Les simulations par éléments finis du frittage sont construites sur des lois de comportement de fluage. Parmi les modèles les plus connus, nous utiliserons dans ces travaux de thèse les modèles d'Abouaf et d'Olevsky. Les lois de densification, c'est à dire, les lois permettant de faire le lien entre le fluage du matériau dense et le comportement réel du matériau poreux font l'objet de nombreuses études théoriques et expérimentales. Leur identification (abordée plus loin) constitue un des principaux défis dans l'extraction de paramètres de frittage d'une poudre, car ils peuvent être influencés par de nombreux paramètres tels que, la forme de la porosité, la taille de grain, la nature des joints de grains, etc. La comparaison entre les lois de densification théoriques et expérimentales montre de grands écarts suggérant une minimisation des lois de densification obtenues par la théorie. Le phénomène de croissance

granulaire apparait comme ayant un fort impact sur les lois de fluage et serait responsable d'un ralentissement des cinétiques de frittage. L'impact de la croissance granulaire est tout particulièrement important en fin de frittage, quand ce phénomène est maximal et empêche la disparition totale de la porosité.

---

---

## **Chapitre II. Simulation électrothermique du procédé SPS**

---

---





## II.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la modélisation électrothermique du chauffage par effet Joule intervenant dans le procédé SPS. Ce travail fait suite au travail de thèse d'Anthony PAVIA effectué au CIRIMAT (Pavia, 2012) et dont une partie a été réalisée en collaboration avec Lise DURAND (Maître de conférences au CEMES). Le modèle d'effet Joule présenté dans ce chapitre est basé sur le modèle proposé par Guy MOLENAT, Lise DURAND et al en 2010 (Molénat et al., 2010). Des modifications sont cependant apportées quant aux propriétés des matériaux, des conditions aux limites d'entrée (mesure du courant efficace par une instrumentation extérieure), ainsi que des résistances de contact aux interfaces internes de la colonne SPS. En effet nous avons vu dans la partie bibliographique que les résistances de contacts électriques (RCE) et thermiques (RCT) présentes aux interfaces ont potentiellement une grande influence sur la répartition interne de la température. Ce travail de thèse ainsi que d'autres travaux menés dans le cadre d'un projet ANR09 Mat&Pro (IMPULSE) ont mis en évidence la grande influence des RCE et RCT dont la détermination constitue une partie indispensable au travail de modélisation. Cette partie est donc principalement orientée vers la détermination des résistances de contacts ainsi que leur impact sur la répartition de température dans l'outillage ainsi que la colonne SPS.

Nous avons vu au Chapitre I (§ 3.2.) que les résistances de contact diminuent très fortement avec la pression et la température, il est très difficile d'obtenir dans la littérature des valeurs généralisables à toutes les conditions expérimentales. Pour répondre à ce besoin, une méthodologie d'étalonnage des résistances de contacts à partir de températures expérimentales est développée. Le principal avantage de la méthodologie présentée est qu'elle permet de déterminer l'ensemble des résistances de contacts sur toute la colonne SPS en un seul essai. En revanche ces données ne sont valables que dans les conditions expérimentales testées. Ainsi, dans le but de dégager un modèle plus généralisable, une étude paramétrique est par la suite employée et fait intervenir différents diamètres de piston dans des configurations (outillages) géométriques homothétiques. Le modèle de contact étendu ainsi identifié, est par la suite confronté à l'expérience au travers d'essais indépendants et présente un bon accord des températures testées. Pour mettre en œuvre cette méthode, nous avons utilisé une instrumentation développée par Anthony PAVIA dans le cadre de sa thèse et menés en collaboration avec Vincent BLEY (Maître de conférences au LAPLACE). Cette instrumentation permet de faire l'acquisition de manière synchrone de la température au niveau de plusieurs thermocouples (jusqu'à 16), de la mesure in situ du courant efficace traversant la colonne SPS grâce à une sonde de type Rogowsky et du potentiel aux bornes de la colonne SPS.

## II.2 Paramètres de simulation

L'ensemble des équations et des conditions aux limites employées dans le modèle Electro-Thermique dit "Effet Joule" présentées dans la partie bibliographique (Chapitre I, § 2.1.) ne sont pas répétées dans ce chapitre.

### II.2.1 Conditions aux limites

Les simulations ont été réalisées en considérant que la densité de courant entre dans la colonne SPS par la face extérieure de l'électrode supérieure en inconel. Le courant efficace mesuré expérimentalement par la sonde Rogowsky est introduit au niveau de cette condition de frontière. Le courant ressort au niveau de la face extérieure de l'électrode inférieure en inconel qui est par construction à la masse ce qui constitue la deuxième condition électrique de frontière. Le modèle utilise donc le courant efficace comme donnée d'entrée plutôt que la tension efficace. Le courant entrant et sortant se conservant les données d'entrée du modèle ne peuvent pas être biaisées par les résistances électriques de contacts pouvant éventuellement provoquer une surestimation de la tension efficace mesurée. De plus, il a été montré par Pavia et al. (Pavia et al., 2013) que les valeurs de la tension donnée par la machine SPS sont surestimées par rapport à celles mesurées aux bornes de la colonne. Les autres faces extérieures sont par défaut électriquement isolées.

Les conditions aux limites thermiques sont les suivantes. Un flux de chaleur au niveau des faces extérieures des électrodes en inconel a pour but de modéliser l'évacuation de chaleur au niveau du circuit d'eau de refroidissement se trouvant de part et d'autre des électrodes. Le coefficient conducto-convectif de ce flux de chaleur est donné dans la littérature (Vanmeensel et al., 2005) comme étant égal à  $880 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$ , nous allons voir un peu plus loin que les expériences d'étalonnages situent ce coefficient plutôt autour de  $200 \text{ W.m}^{-2}\text{K}^{-1}$ . Les pertes thermiques sur les faces latérales de la colonne SPS se font par rayonnement. Les émissivités prises pour le graphite et l'inconel sont respectivement 0.8 et 0.71 (Vanmeensel et al., 2005). Les échanges thermiques par convection sont négligés, car l'enceinte est sous vide.

Les résistances électriques et thermiques de contact peuvent se trouver au niveau de toutes les interfaces internes de la colonne SPS. Les emplacements des contacts pour une configuration géométrique avec des pistons de diamètre 20 mm sont reportés sur la Figure II-1.

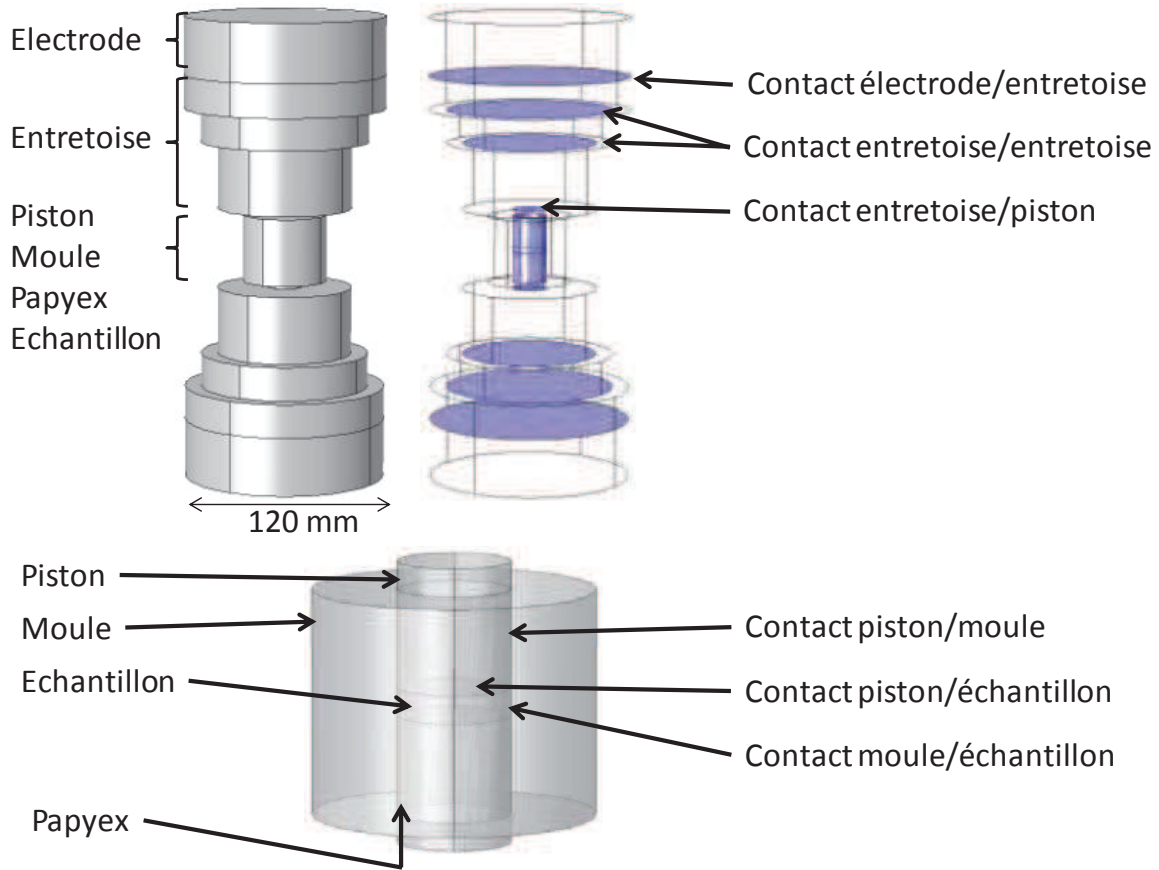


Figure II-1 Emplacement des contacts internes dans la colonne SPS.

### II.2.2 Propriétés des matériaux utilisés

Les matériaux utilisés sont soumis à de très fortes variations de température. Pour certains matériaux les propriétés électriques et thermiques varient fortement en fonction de la température, par exemple la résistivité électrique du graphite diminue de façon non linéaire avec la température. Les propriétés des matériaux doivent donc impérativement être définies en fonction de la température (Table II-1). Les propriétés du graphite sont très variables dans la littérature, il est possible d'en trouver de très différentes par rapport à celles mesurées par le constructeur. Les travaux de thèse d'Anthony PAVIA ont mis en évidence que les différences de propriétés données par la littérature peuvent engendrer des différences de températures calculées de l'ordre de 50K. Dans le but de déterminer quel est le bon jeu de propriétés pour le graphite, des mesures ont été effectuées sur le graphite utilisé dans la présente étude (nuance 2333 MERSEN) à l'occasion de la thèse d'Élodie BRISSON (BRISSON, 2014) encadrée par Philippe ROGEON au LIMATB dans le cadre de l'ANR IMPULSE. Ces mesures ont confirmé que les propriétés données par le constructeur (MERSEN) sont correctes, nous avons donc employé les propriétés du constructeur dans toutes nos simulations.

Table II-1 Propriétés dépendantes de la température des matériaux modélisés.

Matériaux	Capacité calorifique $C_p$ ( $J.kg^{-1}.K^{-1}$ )	Conductivité thermique $\lambda$ ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	Résistivité électrique $\rho_e$ ( $\Omega.m$ )	Density $\rho$ ( $kg.m^{-3}$ )
Inconel (Conrad al., 1990)	344 + 2.50.E-1 T	10.1 + 1.57.E-2 T	9.82.E-7 + 1.6E-10 T	8430
Graphite (Mersen, 2015)	34.27 + 2.72 T - 9.60.E-4 T <sup>2</sup>	123 - 6.99.E-2 T +1.55.E-5 T <sup>2</sup>	1.70.E-5 - 1.87.E-8 T + 1.26.E-11 T <sup>2</sup> - 2.44.E-15 T <sup>3</sup>	1904 - 0.01414 T
Alumine 99,99% (Matweb, 2015)	850	39 500 T <sup>-1.26</sup>	8.70.E19T <sup>-4.82</sup>	3899

Les propriétés de l'échantillon sont susceptibles d'évoluer avec la densification. Des formules permettant d'obtenir les propriétés approchées de matériaux à un certain taux de porosité en fonction des propriétés du matériau dense sont données dans la revue d'Orrù et al (Orrù et al., 2009).

$$\rho_{e_{poudre}} = \rho_{e_{solide}} \left(1 - \frac{3}{2}\theta\right)^{-1} \quad \text{II-1}$$

$$\lambda_{poudre} = \lambda_{solide} \left(1 - \frac{3}{2}\theta\right) \quad \text{II-2}$$

$$C_{p_{poudre}} = C_{p_{solide}} (1 - \theta) \quad \text{II-3}$$

avec  $\theta$  la porosité du matériau.

Les propriétés anisotropes du papyex sont étalonnées (§ II.4.) à partir des températures expérimentales alentour pour permettre de simuler l'ensemble de l'interface graphite/papyex/graphite (Propriétés de conduction anisotrope de la couche et résistances de contacts électriques et thermiques variant en fonction des conditions de pression et de température). Les autres résistances de contact sont étalonnées.

### II.3 Mesures des résistances électriques de contact graphite/papyex/graphite en fonction de la pression et de la température

Pour l'exécution d'une simulation MEF électrothermique prenant en compte les résistances électriques de contact (RCE), un plan d'expérience Doehlert a été effectué. La RCE varie en effet avec la pression et la température (Holm, 1967), il est donc intéressant d'avoir des

mesures décrivant l'évolution de celle-ci en fonction de ces deux paramètres. Pour mesurer les RCE, deux configurations différentes ont été employées, l'une avec deux contacts graphite/papyex/graphite et l'autre sans contact (Figure II-2).

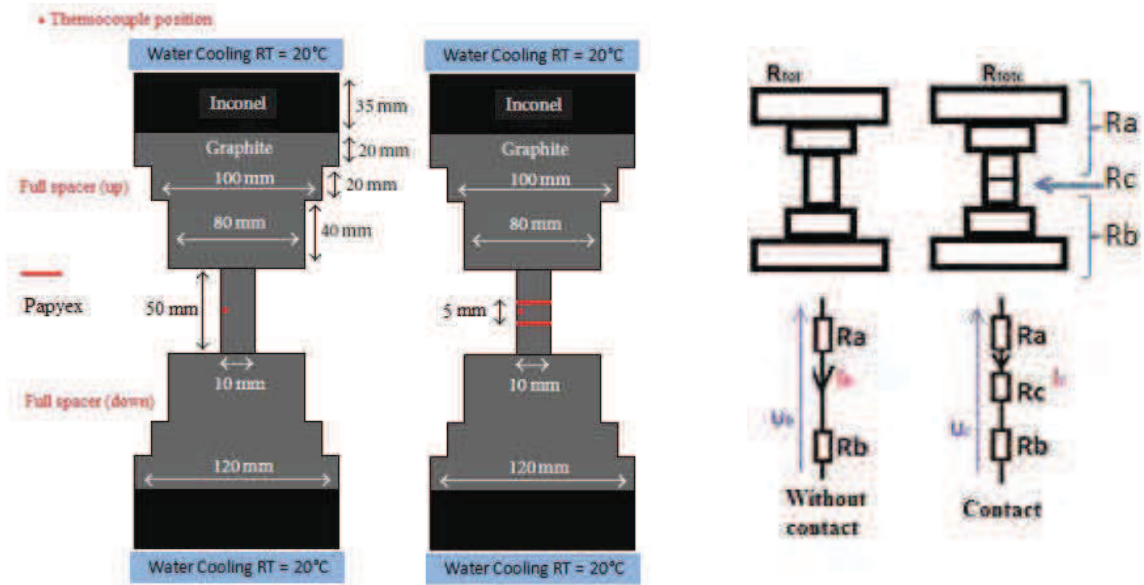


Figure II-2 Deux configurations de mesures des RCE.

La différence des résistances globales des deux configurations donne la valeur de résistance correspondant à la résistance des deux contacts graphite/papyex/graphite (Figure II-2).

$$R_c = R_{totc} - R_{tot} = \frac{U_c}{I_c} - \frac{U_b}{I_b}$$

II-4

Le domaine expérimental du plan d'expérience est choisi entre 10 et 50MPa pour la pression et 50 et 800°C pour la température. Au-delà de 50MPa et 800°C les RCE tendent vers le contact parfait selon Anselmi-Tamburini et al (Anselmi-Tamburini et al., 2005). Les expériences sont effectuées avec des pistons de diamètre 10mm comme reporté Figure II-2. Avec ce type de configuration, il est difficile d'avoir des pressions bien régulées en dessous de 10MPa du fait de l'expansion thermique du graphite imposant pour ce type de configuration une pression minimale de 5MPa, le minimum raisonnable du domaine d'étude est donc de 10MPa. Les limites du domaine d'étude étant établies, la disposition des essais est donc organisée suivant un plan d'expérience Doehlert, voir Figure II-3.

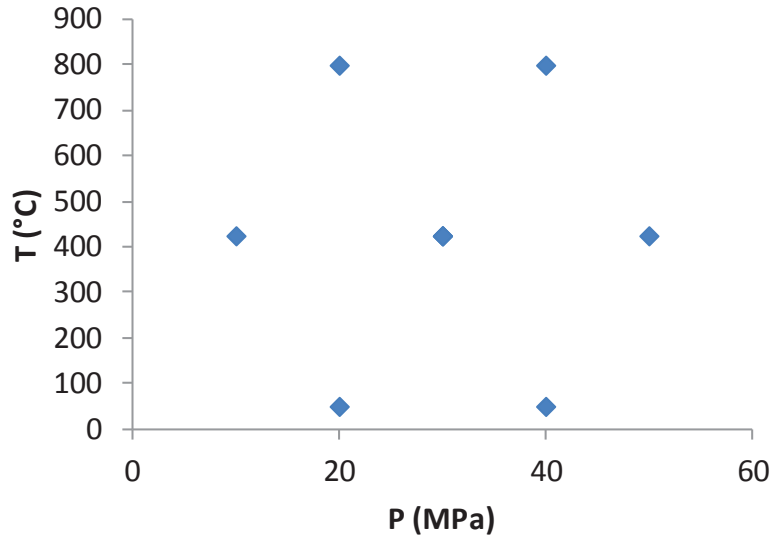


Figure II-3 Disposition des essais expérimentaux.

La fonction d'interpolation est classiquement une fonction du second degré de la forme :

$$y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_{12}x_1x_2 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 \quad \text{II-5}$$

avec, y la RCE ici en  $\Omega$ ,  $x_1$  et  $x_2$  respectivement la pression et la température et  $a_{ij}$  sont les coefficients du modèle traduisant l'effet: de la pression ( $a_1$ ), de la température ( $a_2$ ), de l'interaction pression température ( $a_{12}$ ) et les coefficients carrés ( $a_{11}$  et  $a_{22}$ ).

Les résultats expérimentaux, ainsi que les coefficients du modèle sont rassemblés dans le Table II-2. Le modèle expérimental obtenu a un coefficient de corrélation de 0.97, donc proche de 1 ce qui signifie que l'interpolation des valeurs expérimentales est correcte. Les coefficients  $a_{ij}$  sont reportés sur l'histogramme Figure II-4. Nous pouvons constater un très fort coefficient négatif de la température, l'augmentation de la température fait donc diminuer les RCE. L'effet de la pression est faible et possède un coefficient négatif. À cause du problème d'expansion thermique du graphite, les pressions de contact étudiées sont plutôt élevées, en conséquence, dans ce domaine, la variation des RCE due à la pression est assez faible. Le coefficient  $a_{12}$  de l'interaction pression/température indique une courbure positive dans la direction médiane de la pression et de la température; cette valeur positive traduit le ralentissement de la décroissance des RCE pour des valeurs proches de zéro. La résistance du contact électrique graphite/papyex/graphite modélisé est représentée en fonction de la pression et de la température Figure II-5.

Table II-2 a) Valeur expérimentale des RCE pour chaque essais b) Coefficients du modèle.

a)

Pression (MPa)	Température (°C)	ECR ( $\Omega$ )
30	425	1.07E-03
30	425	1.03E-03
50	425	8.99E-04
40	800	4.50E-04
20	800	4.04E-04
10	425	9.67E-04
20	50	3.51E-03
40	50	2.15E-03

b)

		Coefficients
	$a_0$	1.05E-03
P	( $a_1$ )	-2.41E-04
T	( $a_2$ )	-1.39E-03
PT	( $a_{12}$ )	8.11E-04
P <sup>2</sup>	( $a_{11}$ )	-1.19E-04
T <sup>2</sup>	( $a_{22}$ )	8.09E-04

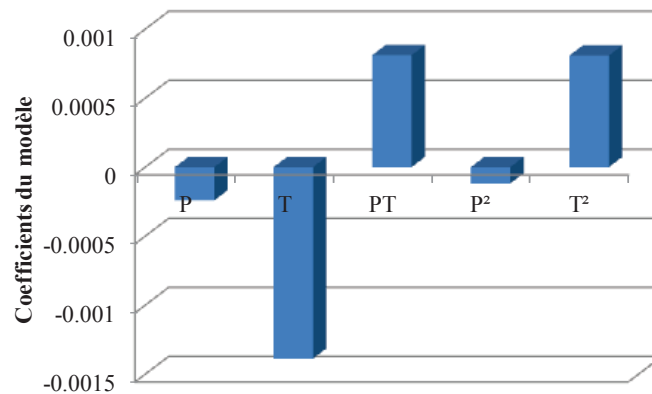


Figure II-4 Représentation des effets relatifs des différents paramètres testés.



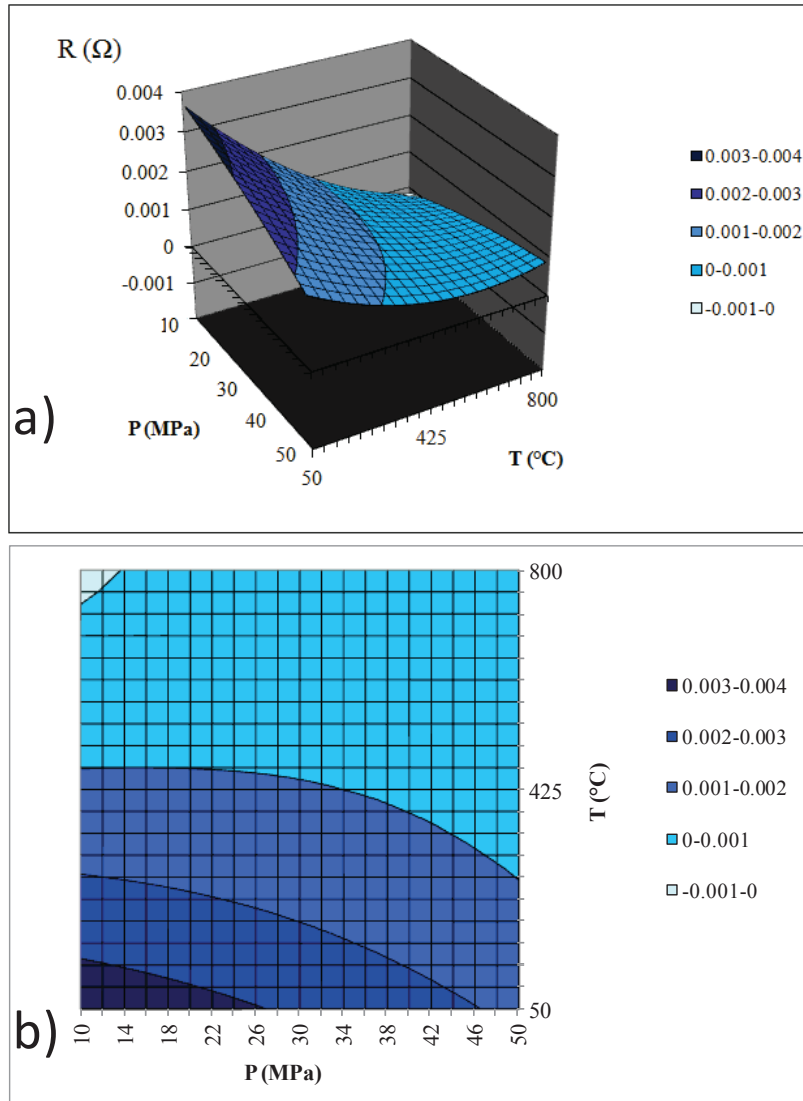


Figure II-5 Résistance électrique de contact en fonction de la pression et de la température, a) Représentation 3D b) Projection 2D.

Le plan d'expérience montre que les RCE tendent vers un contact parfait pour des valeurs élevées de pressions et de températures. Les RCE semblent avoir un effet pour de faibles pressions (<50MPa) et en dessous de 700°C. Ces conditions ne sont que rarement rencontrées dans les cycles SPS usuels où la pression est généralement supérieure à 50MPa. Pour ces cycles les RCE peuvent être négligées. Pour les cycles SPS effectués à pression inférieure à 50MPa les RCE pourront potentiellement avoir un effet pendant la montée en température. Mais les RCE deviendront négligeables au-delà de 700°C. Notons cependant que cela ne concerne que les contacts entourant l'échantillon soumis à de fortes pressions et températures. Les contacts entretoise/entretoise et entretoise/électrodes sont d'une autre nature et subissent des pressions et températures plus faibles. Ces contacts ne sont donc pas négligeables. L'interface présentant potentiellement la plus grande influence se situe dans la zone de contact latérale moule/piston qui n'est soumise qu'à la pression

engendrée par la thermo-dilatation du graphite. Un jeu de 0.2 mm est introduit à ce niveau pour permettre d'y insérer la feuille de papyex. La pression de contact est donc très faible au niveau de ce contact ce qui rend les RCE très importantes et non modélisables par notre plan d'expérience dont la pression minimale est 10MPa.

#### **II.4 Étalonnage des résistances électriques et thermiques de contact**

Une autre étude est nécessaire pour déterminer les RCE au niveau des contacts latéraux ainsi que pour tout autre contact graphite/graphite. Comme les mesures de résistances de contact à des pressions très faibles sont difficiles, une approche par analyse inverse est employée dans ce qui suit pour permettre l'étalonnage de toutes les résistances de contact présentes dans la colonne SPS. Le principe est de remonter aux valeurs de températures déterminées en divers endroits par ajustement des différentes résistances de contact.

Dans ce qui suit les effets thermiques des résistances de contacts sont d'abord mis en évidence. Dans un second temps un étalonnage simple est mené pour extraire les phénomènes principaux.

##### *II.4.1 Mise en évidence expérimentale des phénomènes de contact*

Les images thermiques effectuées en matrice ouverte par Anthony Pavia (Pavia, 2012) ont montré de forts effets thermiques au niveau des zones contenant la feuille de graphite (Figure II-6). Dans le cas d'un échantillon en alumine, la feuille de graphite (papyex) est soumise à une importante concentration de chaleur et un point chaud apparaît au niveau de l'échantillon dans la matrice. L'échantillon étant électriquement isolant tout le courant traverse l'interface piston/moule où se trouve le papyex et où les résistances de contact sont maximales en raison des faibles pressions au niveau de cette interface. Ce résultat suggère la présence d'une forte résistance de contact électrique au niveau de l'interface pistons/papyex/moule. Pour un échantillon en cuivre, le courant passe massivement à travers l'ensemble pistons/échantillon qui constitue la zone la plus chaude de tout l'ensemble. Un fort écart de température apparaît au niveau de l'interface piston/moule. Cet écart traduit la présence d'une forte résistance thermique de contact responsable d'une température plus basse observée au niveau du moule.

La comparaison de ces deux images en matrice ouverte (découpe du moule à environ 8 mm du centre) semble montrer que l'interface graphite/papyex/graphite est le siège de phénomènes très importants de contacts électriques et thermiques. Ce constat nous a poussé à utiliser ces phénomènes thermiques particuliers pour remonter par analyse inverse aux résistances de contacts présentes aux niveaux de ces interfaces. Nous avons étudié le

cas de l'alumine dans cette expérience, car cette configuration force le passage du courant au travers de l'interface piston/moule dont nous souhaitons déterminer les propriétés de contact. Pour cela nous avons fait un cycle SPS simple en matrice fermée. Le cycle thermique employé pour les deux expériences Figure II-7 est constitué d'une montée de 100K/min suivie d'un palier d'une minute. La pression appliquée est constante et égale à 100MPa. Les thermocouples placés sur le moule et sur le piston sont les thermocouples servant à la régulation de température type PID dont les constantes sont les suivantes P=16, I=16 et D=2 (partie bibliographique). Deux thermocouples sont positionnés, l'un à 3mm de la surface de matrice et un autre au niveau du papyex selon la configuration reportée sur la Figure II-7;a. Les températures expérimentales issues de ces deux thermocouples sont présentées sur la Figure II-8. Le papyex apparaît comme étant au maximum 120°C plus chaud que le moule, un constat en accord avec l'image thermique reportée sur la Figure II-6;a et qui montre le papyex (compte tenu du fait que c'est également du graphite et que son émissivité est donc semblable à celle du moule) comme l'élément le plus chaud.

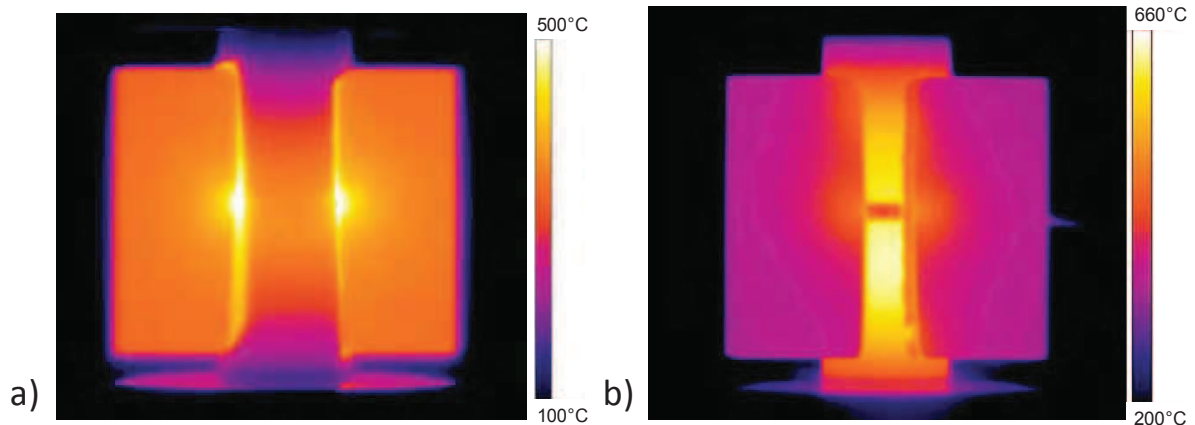


Figure II-6 Image thermique en matrice ouverte: a) Échantillon en alumine b) Échantillon en cuivre.

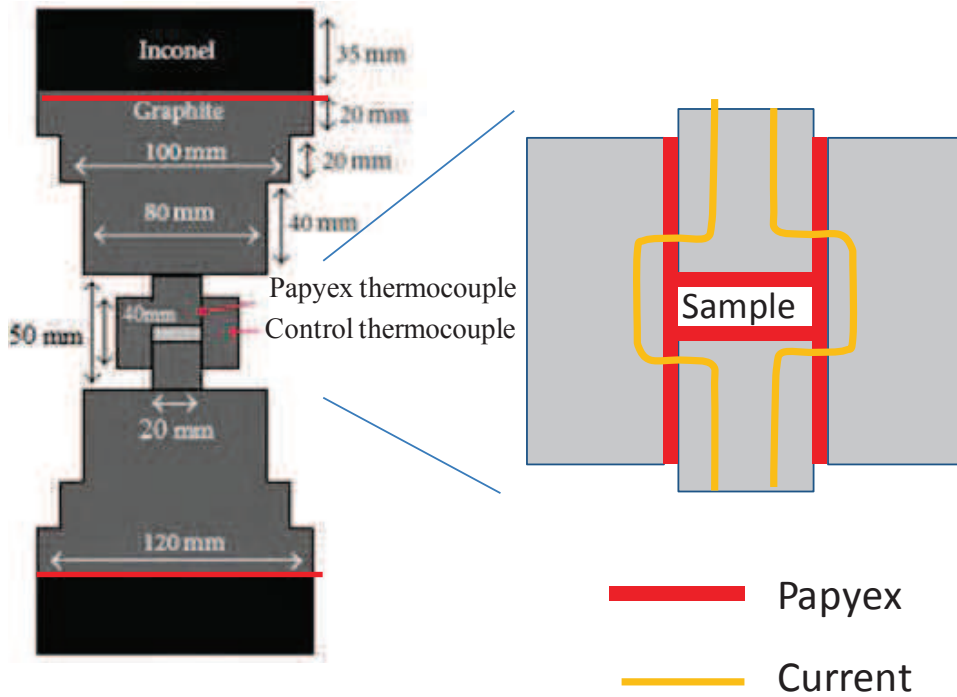


Figure II-7 Schéma de la colonne SPS avec les emplacements des différents thermocouples.

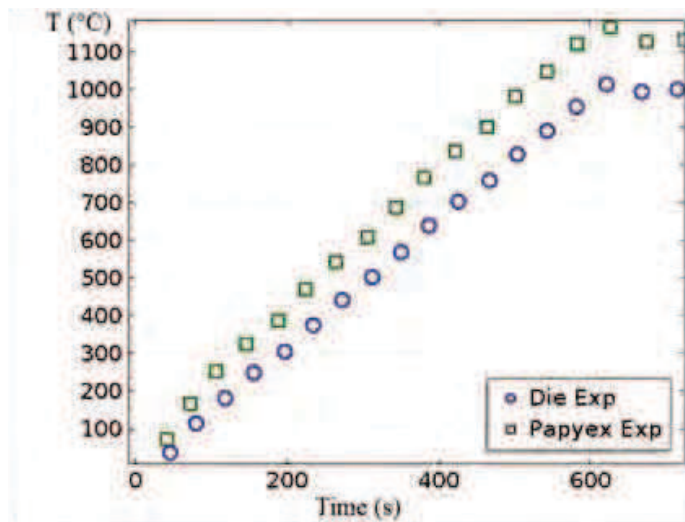


Figure II-8 Mesure de température au niveau des thermocouples de contrôle et sur le papyex en matrice fermée.

#### II.4.2 Etalonnage de la résistance thermique de contact électrode/entretoise

Une autre expérience préliminaire est nécessaire pour déterminer la résistance de contact au niveau de l'interface électrode/entretoise. Cette interface possède la plus grande section de toute la colonne SPS et deux feuilles de papyex y sont introduites. La pression est donc également très faible au niveau de cette interface ce qui engendre comme nous allons le voir plus loin une importante résistance thermique de contact. Une configuration utilisant un piston de 20 mm de diamètre et des entretoises en un bloc de part et d'autre est employée (Figure II-9). Deux thermocouples sont utilisés, l'un au niveau du piston et l'autre au niveau de

l'entretoise pour permettre d'étalonner la résistance thermique de contact électrode/entretoise grâce au flux thermique sortant du piston que ce deuxième thermocouple met en évidence.

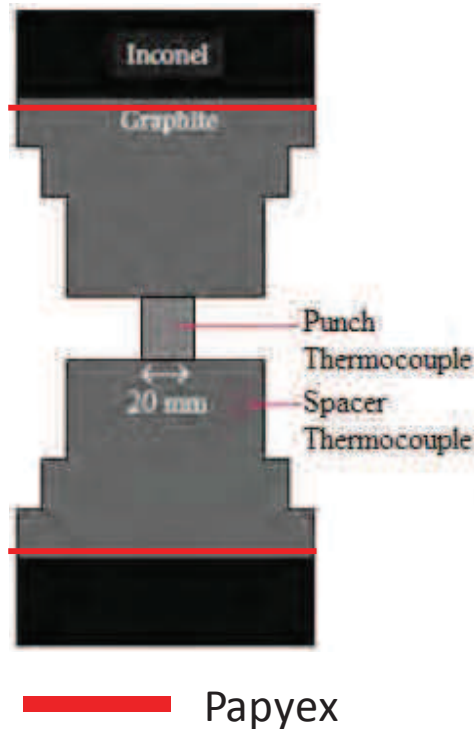


Figure II-9 Schéma de la colonne SPS à un piston.

L'étalonnage du modèle a consisté à faire varier la résistance thermique du contact simulé électrode/2Xpapyex/entretoise (2Xpapyex signifie la présence d'une double couche de papyex, dans la suite toute cette expression est notée EI/2XP/Ent) jusqu'à atteindre un accord parfait des courbes expérimentales et simulées (Figure II-10;a). Les températures mesurées au niveau des deux thermocouples Figure II-9 ainsi que les températures simulées après étalonnage sont reportées Figure II-10;a. Le contact piston/entretoise est négligé, car la pression à ce niveau est volontairement très forte (100MPa).

L'étalonnage de la conductance thermique de contact (EI/2XP/Ent) conduit à une valeur de  $400 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . Le champ de température simulé (Figure II-10;b) montre que la température est maximale au niveau du piston et décroît jusqu'aux électrodes. L'écart de température de  $200^\circ\text{C}$  au niveau de l'interface électrode/entretoise est la conséquence du contact thermique engendré par la double couche de papyex que nous venons d'étalonner. Cette double couche de papyex protège donc l'électrode en inconel (point de fusion est  $1260^\circ\text{C}$ ) des hautes températures potentielles atteintes par les éléments en graphites.

La résistance électrique de contact (RCE) de l'interface électrode/entretoise existe, mais comme l'aire de contact est très grande la densité de courant traversant cette interface est

beaucoup moins grande que celle qui traverse le piston de 20mm de diamètre. En conséquence la production de chaleur générée à ce niveau est très dispersée et n'a que peu d'influence. Pour ce premier test, cette RCE est négligée (elle sera prise en compte plus tard dans le modèle de contact généralisé).

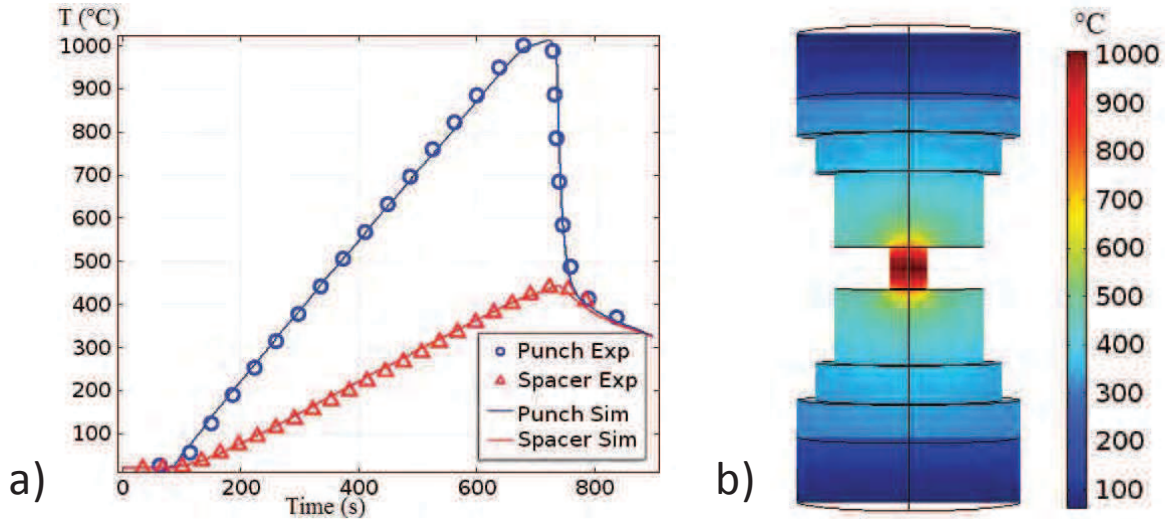


Figure II-10 a) Cycles thermiques expérimentaux/simulés au niveau de deux thermocouples après étalonnage. b) Coupe verticale de la température simulée en début de palier.

#### II.4.3 Prise en compte du contact vertical (graphite/papyex/graphite)

Dans ce qui suit, la méthode d'étalonnage du contact latéral graphite/papyex/graphite est détaillée chronologiquement avec l'ajout successif des différents phénomènes de contacts RCE, RCT et l'anisotropie du papyex.

##### II.4.3.1 Simulation sans prise en compte des résistances de contacts

L'analyse inverse débute par un modèle basique ne prenant pas en compte les résistances de contacts verticales (seul le contact EI/2XP/Ent précédemment déterminé est inclus). Comme la géométrie utilisée est axisymétrique, nous utilisons un modèle 2D axisymétrique. Ce type de modèle présente l'avantage de limiter la simulation à la surface de révolution de toute la colonne SPS ce qui permet de considérablement limiter le nombre de nœuds du maillage, donc de réduire le temps de calcul. Il est en effet très important d'avoir un modèle à faible temps de calcul, car la méthode de calage des températures que nous utilisons dans ce qui suit demande d'effectuer environ une dizaine de calculs pour le calage d'un seul paramètre. La géométrie employée prend en compte le papyex dans toute son épaisseur (0.2 mm), un maillage quadrangulaire est employé au niveau du papyex pour avoir plusieurs

nœuds suivant l'épaisseur de la couche simulée. Le reste de la géométrie utilise un maillage triangulaire. Le maillage, le champ de température calculé ainsi que la comparaison des courbes de températures expérimentales et simulées sont reportés sur la Figure II-11. Le champ de température simulé est très homogène et n'est pas semblable au champ de température expérimental observé sur l'image thermique Figure II-6;a. Le papyex n'apparaît pas comme étant l'élément le plus chaud de l'ensemble (b), la simulation ne rend pas compte de l'écart de température entre le moule et les pistons (c). De plus, les courbes de températures montrent que la température simulée de l'ensemble est environ 120°C en dessous des températures réelles. La simulation sans prise en compte des RCE et RCT liées à la présence du papyex donne donc un champ de température simulé trop homogène et trop bas comparé au champ de température réel.

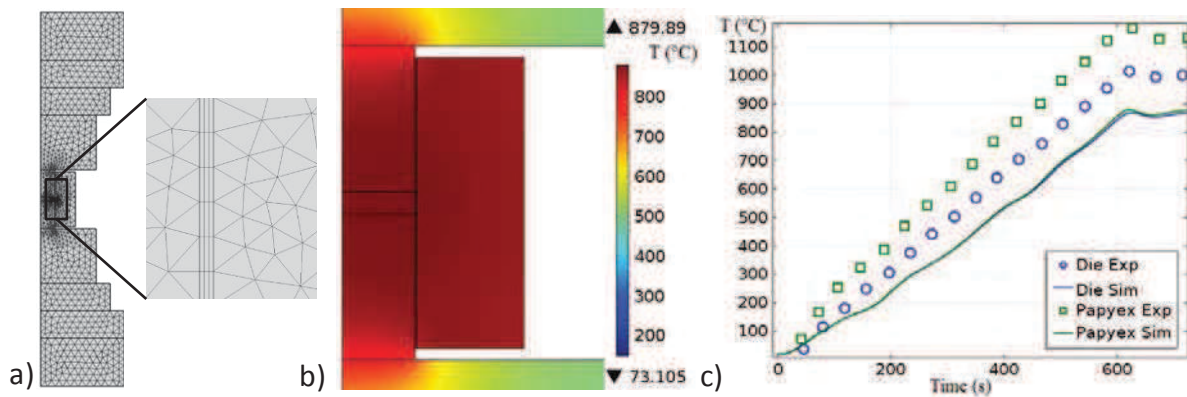


Figure II-11 Simulation sans prise en compte des effets de contact a) maillage b) champ de température c) températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (courbes continues) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert).

La prochaine étape consiste donc à ajouter une RCE au niveau du papyex pour augmenter les températures simulées de l'ensemble vers les températures réelles.

#### II.4.3.2 Simulation avec résistance électrique de contact

Une RCE est ajoutée au niveau du papyex en utilisant une approche de type couche mince. Ce type d'approche consiste à modéliser le phénomène de contact non pas par une condition de frontière mais par une couche de matériau de faible épaisseur et de propriétés différentes. Le papyex est donc modélisé avec son épaisseur réelle (0.2 mm), la RCE équivalente ayant la résistivité électrique de cette couche dans le sens de son épaisseur augmentée d'une valeur constante ( $\rho_0$ ). Dans cette approche la RCE n'évolue pas en fonction de la température car l'étalonnage s'effectue principalement sur la zone de haute température (nous prendrons en compte la dépendance en température des RC plus loin dans ce chapitre).

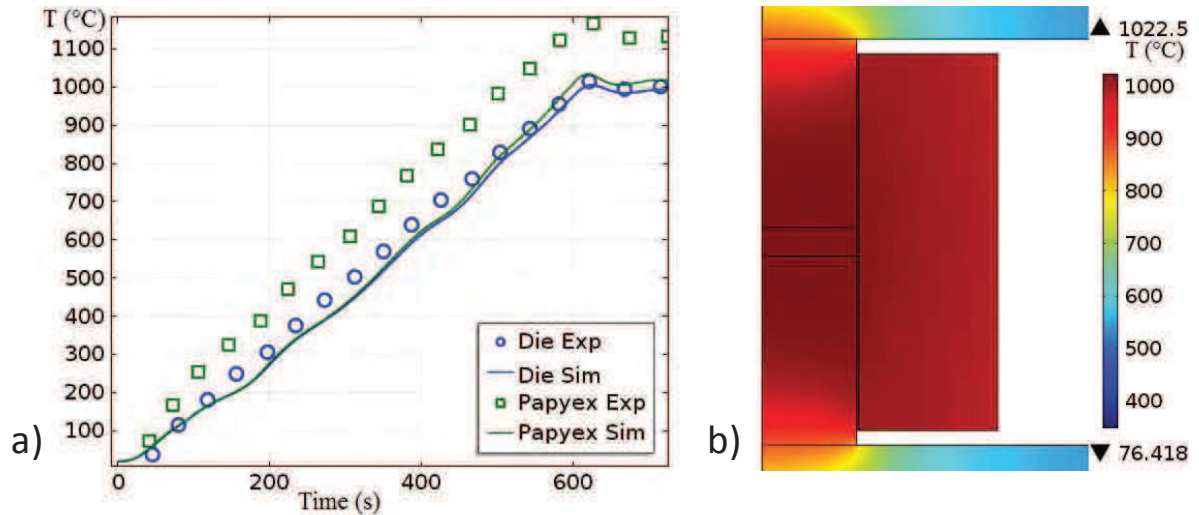


Figure II-12 Simulations après étalonnage de la résistance électrique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (trait plein) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé.

Les propriétés électriques du papyex deviennent donc anisotropes. Après étalonnage, une valeur  $\rho_0 = 2,83 \cdot 10^{-4} \Omega \cdot \text{m}$  est identifiée pour faire correspondre les températures expérimentales et simulées au niveau du thermocouple de contrôle. La conductance électrique de contact équivalente est de  $3,62 \cdot 10^6 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^2$  ce qui est du même ordre que la valeur de conductance de contact vertical identifié par Zavaliangos et al de  $7,5 \cdot 10^6 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^2$  (Zavaliangos et al., 2004). Une valeur également très proche des mesures de résistances électriques de contacts mesurées au au LIMATB (Carré et al., 2010) étant comprises entre  $1 \cdot 10^7 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^2$  et  $2 \cdot 10^6 \Omega^{-1} \cdot \text{m}^2$ . Le résultat des courbes et du champ de température calculé est reporté Figure II-12. La température globale du système est augmentée, mais la répartition de température est toujours trop homogène comparé à l'image thermique Figure II-6. La RCE n'explique toujours pas le chauffage local opérant au niveau du papyex. La chaleur générée par la RCE dans la couche de 0.2 mm est très vite dispersée, car il n'y a pas de résistance de contact thermique pour la maintenir dans la couche de papyex. La prochaine étape consiste donc à introduire les résistances thermiques de contact aux interfaces du papyex.

#### II.4.3.3 Simulation avec résistances électrique et thermique de contact

Les résistances thermiques de contact sont modélisées par une condition de frontière équivalente à une couche mince de graphite de 0.1 mm d'épaisseur est de conductivité thermique  $h_{cr}$ . Cette condition de frontière est placée de part et d'autre de la feuille de papyex. D'un point de vue thermique la RCE dissipe de la chaleur au niveau de la couche de papyex et les RCT de part et d'autre de cette couche agissent comme un obstacle à la dissipation de la chaleur générée. L'étalonnage de la RCT donne une valeur de conductivité



thermique de contact ( $h_{cr}$ ) de  $0.01 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Cette valeur exprimé en conductance thermique de contact est de  $1.E2 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  ce qui est inférieur mais assez proche de la valeur de conductance de contant verticale identifié par Zavaliangos et al de  $1,32.E3 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  (Zavaliangos et al., 2004), et assez différente des valeurs mesurées au LIMATB (Carré et al., 2014) étant comprises entre  $7.E3 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  et  $2.5E4 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . Le champ de température simulé ainsi que les courbes expérimentales et simulées prises au niveau des thermocouples sont reportées Figure II-13.

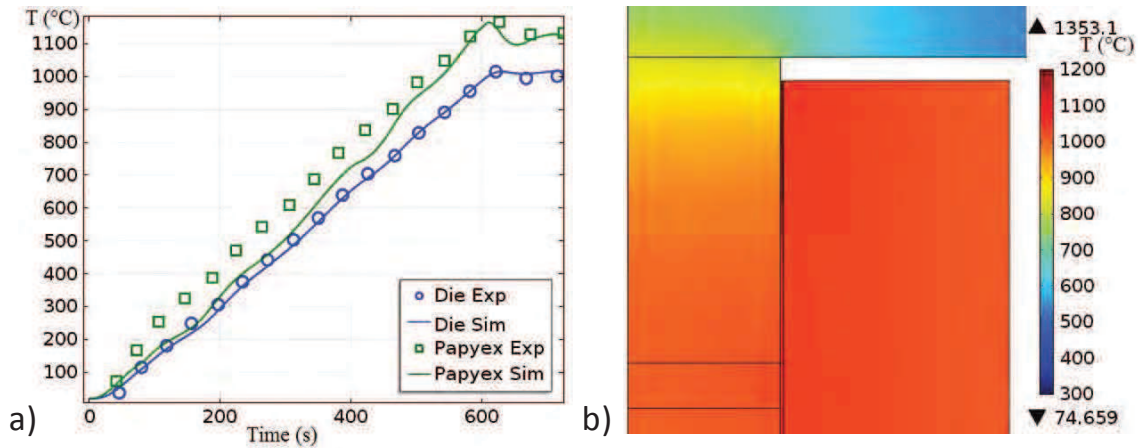


Figure II-13 Simulations après étalonnage de la résistance thermique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (trait plein) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé.

L'écart expérimental de 120K entre les deux thermocouples est facilement corrigé grâce à l'ajustement des RCT. Le champ de température de l'image thermique Figure II-6;a montre que la chaleur est contenue dans le papyex plus chaud que les pistons et le moule. En revanche un gradient thermique apparait dans la simulation le long de la couche de papyex, le point le plus chaud se situe au niveau de l'extrémité extérieure du papyex. En représentant les pertes résistives Figure II-14 on constate que la partie externe de la couche de papyex est la partie dissipant le plus de chaleur. Le gradient thermique est ainsi expliqué par le champ des pertes résistives, les RCT ne font que révéler cet effet en confinant la chaleur de la couche de papyex là où celle-ci est créée. Le problème qui se pose est que l'image thermique Figure II-6;a montre une température élevée, mais homogène tout le long de la couche de papyex avec un point chaud au niveau de l'échantillon n'existant pas dans la simulation.



Figure II-14 Pertes résistives du modèle de chauffage par effet Joule.

Un autre phénomène est donc responsable du point chaud observé au niveau de l'échantillon. Après avoir fait varier les propriétés électriques de la couche de papyex dans son épaisseur et selon sa longueur et après avoir également fait varier l'épaisseur d'écrasement du papyex au niveau de l'échantillon, la simulation n'est pas en mesure de rendre compte de ce point chaud observé dans l'image thermique. Le seul paramètre qui permet de faire apparaître ce phénomène est la conductivité thermique anisotrope du papyex dans le sens de sa longueur. En effet, une augmentation de celle-ci d'un facteur 10 de la partie constante de l'expression de la conductivité thermique du graphite permet de faire apparaître ce point chaud. Le papyex est un matériau obtenu par laminage et le fournisseur précise que ces propriétés thermiques dans le plan et dans son épaisseur sont très différentes. Le résultat du calage de ce dernier paramètre est présenté Figure II-15.

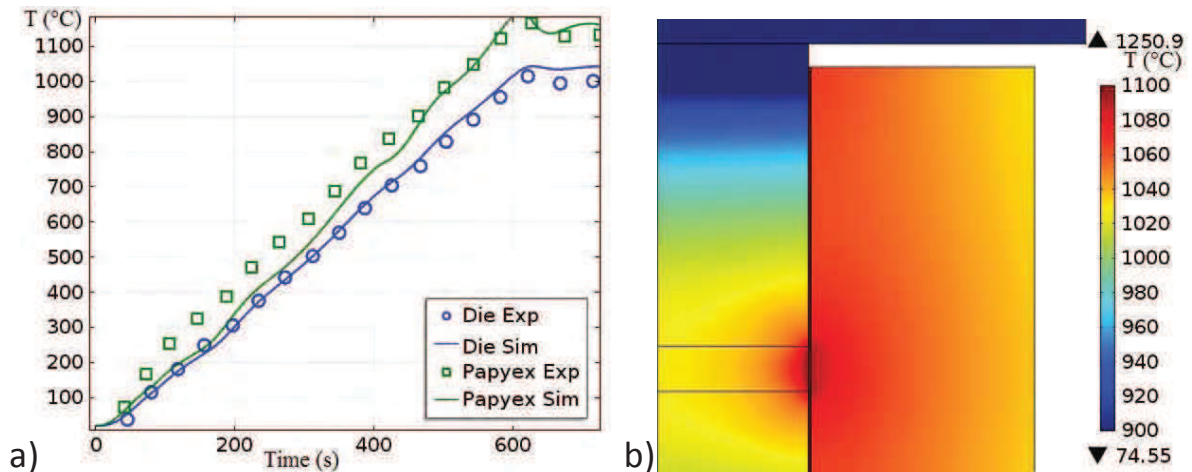


Figure II-15 Simulations après étalonnage de la résistance thermique de contact: a) Températures expérimentales (carrés et ronds) et simulées (courbes continues) au niveau du thermocouple de contrôle (bleu) et au niveau du papyex (vert). b) Champ de température simulé.

La répartition de température simulée apparaît désormais en accord avec celle observée dans l'image thermique Figure II-6a tout en conservant un bon accord avec les températures mesurées par les thermocouples.

#### II.4.3.4 Vérification

L'image thermique reportée Figure II-6a est prise sur matrice ouverte et à basse température. Pour comparer avec plus de fidélité le présent modèle de contacts avec l'image thermique, les données établies des résistances de contacts sont introduites dans un modèle 3D correspondant à l'essai expérimental effectué en matrice ouverte. Les dimensions des pièces ne changent pas (par rapport au 2D), la seule différence est que le moule est ouvert sur le devant. La géométrie n'est plus axisymétrique, par conséquent le modèle utilisé est un modèle 3D. Le champ de température simulé ainsi que l'image thermique expérimentale correspondante sont reportées Figure II-16.

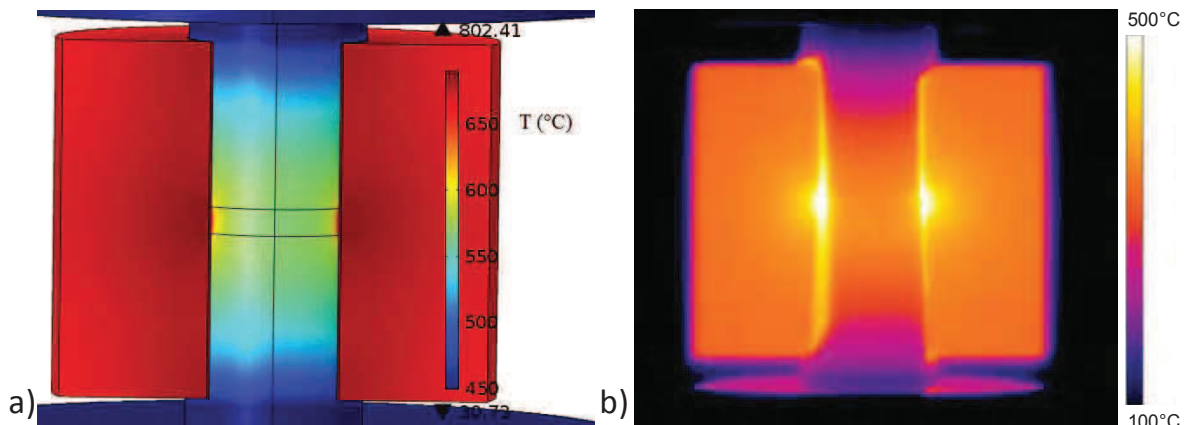


Figure II-16 a) Champ de température simulé b) Champ de température expérimental (remarquons que les légendes de couleurs de (a) et (b) sont différentes).

L'ensemble des phénomènes observés sur l'image thermique à savoir, les pistons plus froids que le moule, l'échauffement local du papyex et le point chaud apparaissant dans la simulation. L'approche inverse semble donc permettre de modéliser et d'expliquer les phénomènes thermiques complexes observés.

#### II.4.3.5 Synthèse de la méthodologie d'étalonnage

La simulation de phénomènes thermiques complexes tels qu'ils apparaissent dans les images thermiques expérimentales est rendue possible en intégrant les phénomènes d'interface suivants:

- Une résistance thermique à l'interface électrode/2Xpapyex/entretoise.

- Une résistivité électrique de contact équivalente ajoutée selon l'épaisseur du papyex à l'interface piston/papyex/moule.
- Une résistance thermique de contact de part et d'autre du papyex à l'interface piston/papyex/moule.
- Une augmentation anisotrope significative de la conductivité thermique dans le plan du papyex à l'interface piston/papyex/moule.

La méthodologie d'étalonnage des contacts est composée de deux étapes:

Dans une première étape la résistance de contact électrode/2Xpapyex/entretoise est déterminée par ajustement des températures à partir d'une expérience séparée utilisant un simple piston entre deux entretoises monobloc.

Une fois ce premier contact déterminé, l'étalonnage de la configuration avec moule, piston et poudre peut débuter. Cet étalonnage s'organise de la façon suivante:

- 1- L'étalonnage débute par un premier modèle sans résistance de contact.
- 2- En fonction des écarts de températures globaux (écarts simulation/expérience), une valeur de résistance électrique de contact au niveau de l'interface piston/moule est ajustée.
- 3- Les écarts de températures entre le papyex et le moule sont par la suite corrigés avec l'ajout d'une résistance de contact thermique de part et d'autre de la couche de papyex. Un réajustement de la résistance de contact électrique est nécessaire.
- 4- Un dernier paramètre reste à étalonner, il s'agit de la conductivité thermique anisotrope de la couche de papyex. Cette valeur de conductivité est ajustée jusqu'à modéliser l'effet thermique de point chaud présent dans le moule au contact de l'échantillon. Un réajustement final des résistances de contact électrique est thermique est alors nécessaire.

Cette première méthodologie d'étalonnage simple (ajustement des valeurs de RC constantes) permet de reproduire l'ensemble des phénomènes thermiques observés par les expériences en matrice ouverte. Les valeurs de conductances de contact sont du même ordre de grandeur mais inférieures à celles identifiées dans la littérature (Zavaliangos et al., 2004). La nature du contact peut évoluer d'une expérience à l'autre en fonction de la pression de contact (laminage du papyex, dimensions des pistons etc) et de la température ce qui peut expliquer ces différences.

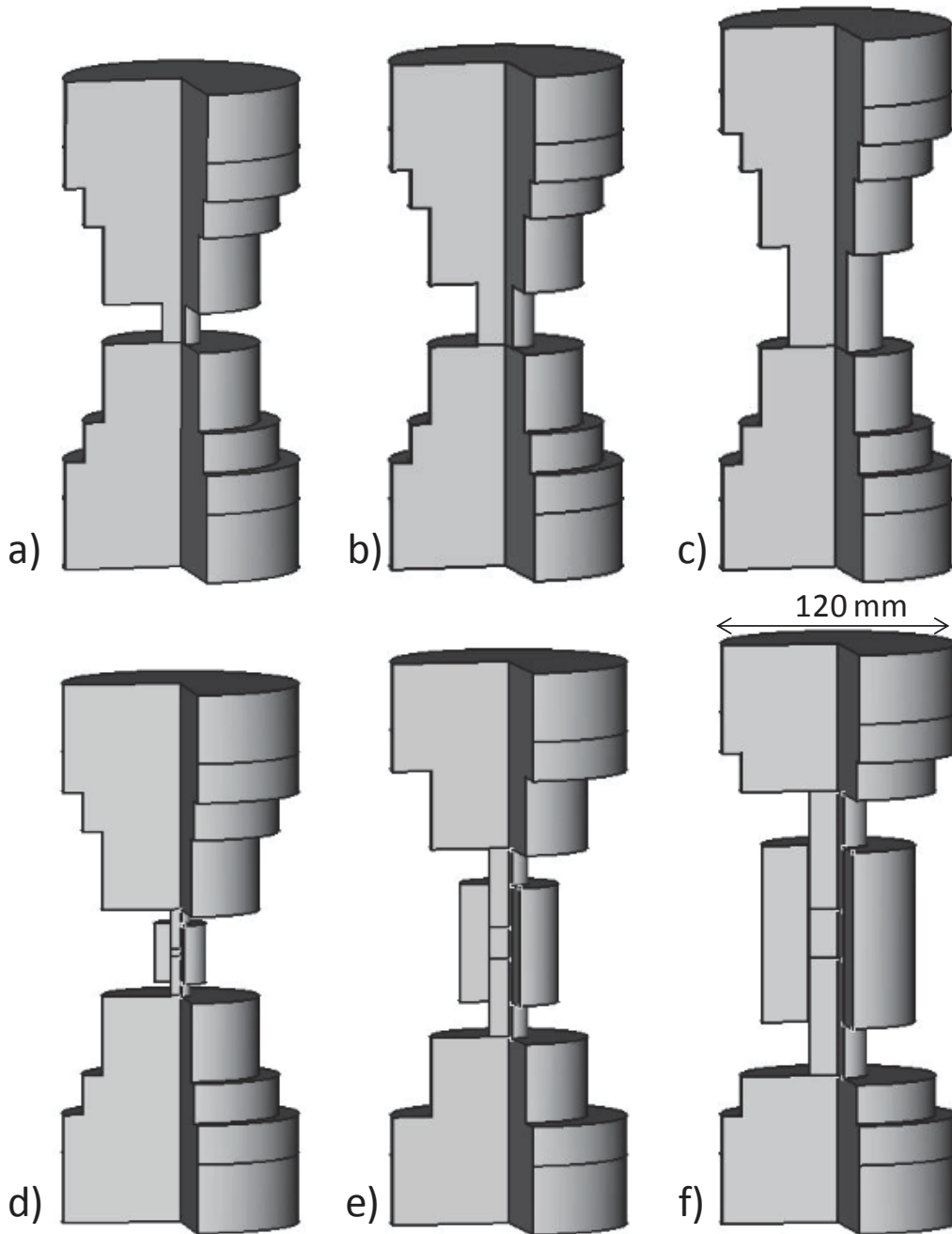
## II.5 Modèle étendu des résistances de contact

La forte sensibilité des RCE et RCT à la pression et à la température est un réel problème, car elle rend les modèles d'effet Joule très sensibles aux conditions expérimentales. L'étude précédente ouvre la voie à une méthode d'identification des phénomènes de contacts dans la zone proche de l'échantillon, mais cette méthode telle qu'elle, est encore trop imprécise car déterminée avec seulement deux thermocouples et limitée aux conditions d'expérimentation. Pour identifier un modèle d'effet Joule plus précis, cinq thermocouples sont placés en divers endroits stratégiques de manière à identifier l'ensemble des contacts de la colonne SPS et non juste l'effet du papyex. Les zones testées sont : l'échantillon, les pistons, le moule, le papyex, les entretoises et l'électrode en inconel. D'autre part, pour aller vers un modèle d'effet Joule généralisable à différentes tailles de configurations géométriques, une étude paramétrique faisant varier les diamètres internes des outillages (pistons + matrice) suivant des configurations géométriques homothétiques (pistons entre 10 et 30 mm et hauteur d'échantillon) est entreprise. L'objectif est d'obtenir un modèle phénoménologique prédictif permettant d'anticiper avec précision l'effet de "facteur d'échelle" entre les différentes tailles de géométries.

### II.5.1 Configurations et cycles utilisés

Six expériences d'étalonnage sont entreprises pour l'identification des RCE et RCT du modèle étendu. Trois d'entre elles sont consacrées à la détermination des résistances des contacts au niveau des entretoises et de l'électrode, les configurations géométriques employées utilisent de simples pistons de diamètre 20, 30 et 50 mm placés au centre entre les entretoises Figure II-17 a, b, et c. Trois autres expériences sont dédiées à l'identification des contacts de l'ensemble piston/moule/échantillon. Des diamètres de pistons 10, 20 et 30mm sont employés et l'échantillon est constitué d'une poudre d'alumine 99,99% "TM-DAR" Figure II-17d, e, et f. Les configurations géométriques des pistons moules et hauteur initiale d'échantillon conservent le même rapport d'une expérience à l'autre pour que l'étude ne se focalise que sur les effets de changement d'échelle. Une pression constante est appliquée pendant toute la durée du cycle (le refroidissement compris) pour permettre d'étalonner les résistances thermiques de contact lors du refroidissement où le problème d'effet Joule se simplifie en un problème purement thermique. Pour l'étalonnage des contacts inférieurs Figure II-17;abc une pression de 100MPa est appliquée de manière à minimiser au maximum la résistance de contact thermique au niveau du piston. En effet cette RCT peut amoindrir le flux de chaleur traversant les contacts entretoise/entretoise et inconel/entretoise ne permettant pas d'estimer par analyse inverse la valeur de RCE et RCT de ces derniers.

Le cycle thermique programmé est une montée à 100K/min jusqu'à 1000°C suivie d'un relâchement du courant en fin de montée.



**Figure II-17 Configurations géométriques utilisées pour l'identification du modèle de contacts étendu, avec (a b c) étalonnage des contacts au niveau des contacts des entretoises et électrodes, (d e f) étalonnage des contacts au niveau des pistons, moule , papyex et échantillon.**

Concernant l'étalonnage des contacts pour les configurations Figure II-17; def. une pression constante de 50MPa est appliquée sur tout le cycle. L'objectif étant de déterminer un modèle étendu dans un domaine utile, la pression de 50MPa est préférable à une pression de 100MPa pouvant causer des endommagements de matériel pour certaines géométries. Les cycles thermiques employés sont composés d'une montée à 100K/min jusqu'à 1100°C

(température de surface du moule) suivie d'un maintien d'une minute et d'un relâchement libre de cinq minutes. L'emplacement et le nom des différents contacts considérés dans les simulations est reporté Figure II-18.

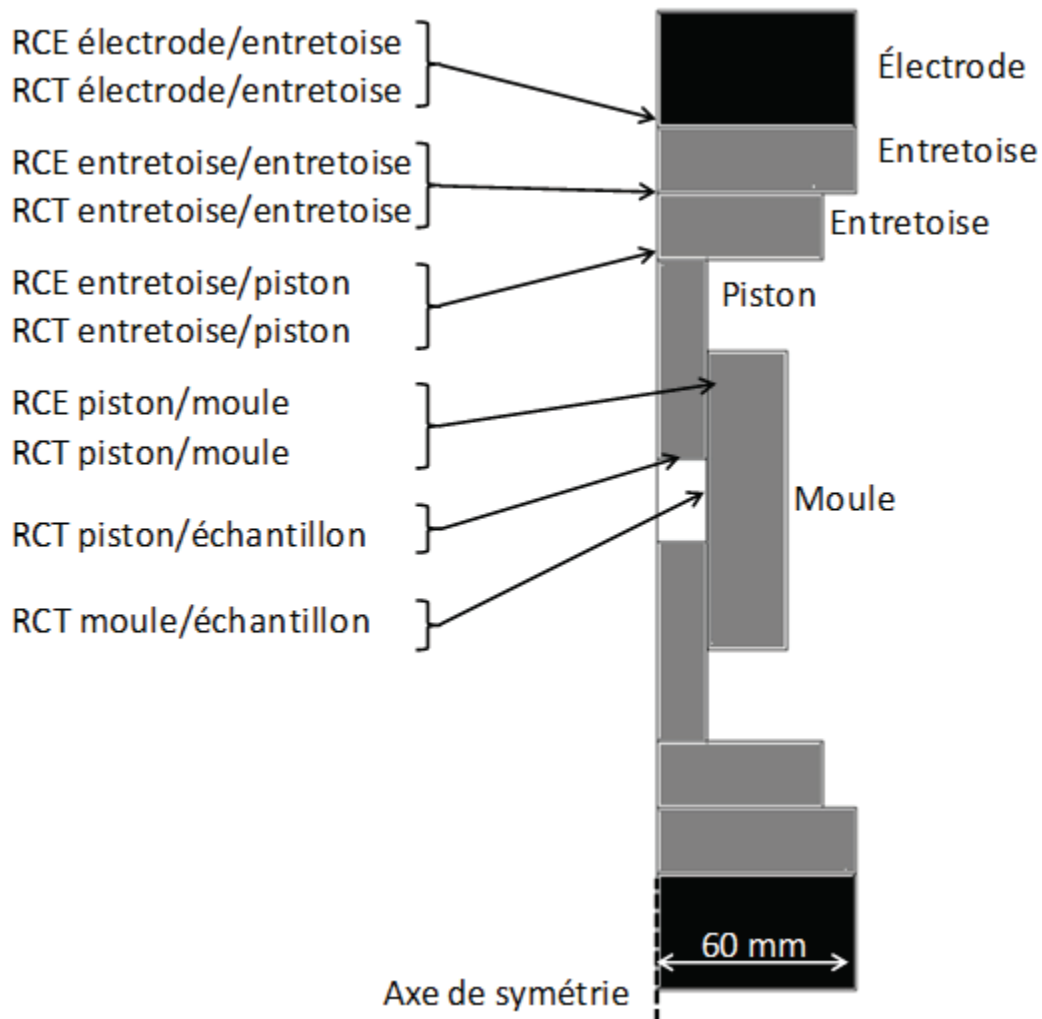


Figure II-18 Emplacement des différents contacts considérés dans les simulations.

### II.5.2 Prise en compte du déplacement dû au frittage

Dans la simulation MEF, le déplacement de l'ensemble piston, entretoise et échantillon causé par la densification de la poudre est pris en compte grâce à une méthode de maillage mobile proposée par COMSOL Multiphysics appelée méthode ALE (Arbitraire Lagrangienne Eulérienne). Avec cette méthode, il est possible d'imposer au maillage un déplacement correspondant à la compaction de l'échantillon sans faire intervenir les équations de la mécanique alourdissant considérablement le modèle. En effet l'étalonnage des résistances de contact demande beaucoup de calculs successifs, limiter le temps de résolution du calcul est donc primordial pour ce type d'étude. La durée de calcul du modèle d'effet Joule avec déplacement du maillage imposé par la méthode ALE est d'environ deux minutes.

Les courbes de déplacement utilisées dans les modèles sont issues d'un calcul analytique de compaction de l'alumine utilisant comme donnée d'entrée, la contrainte appliquée et la température de l'échantillon. Les courbes de déplacement alors calculées sont reportées Figure II-19. Le calcul analytique du frittage de l'alumine est détaillé dans le chapitre suivant consacrée à la modélisation du frittage.

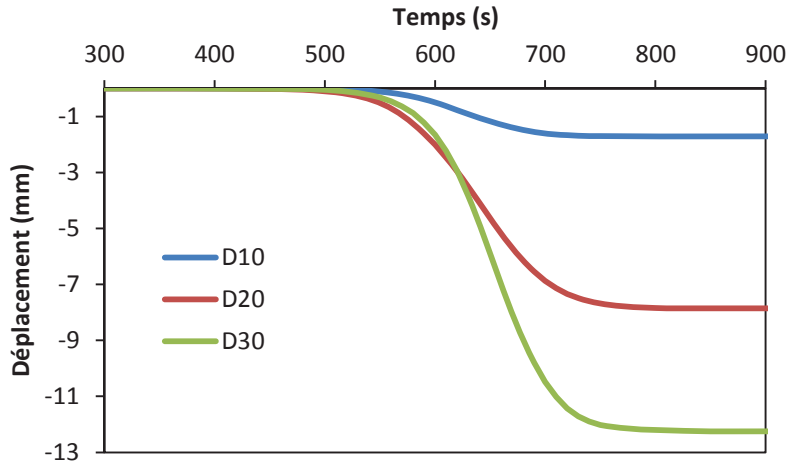


Figure II-19 Courbes de déplacement calculées pour les essais de diamètre 10, 20 et 30 mm.

### II.5.3 Résultats des étalonnages

La méthodologie d'étalonnage est similaire à celle utilisée précédemment (II.4.2) à la différence qu'il y a beaucoup plus de thermocouples et de résistances de contacts prises en compte. Dans un premier temps les résistances de contact électriques sont identifiées pour ajuster la température globale du système. Les contacts électriques sont ajustés en partant du centre (piston, moule) vers les électrodes car l'effet des contacts électriques sont majoritaires dans les zones centrales possédant de faibles sections. Les résistances de contact thermiques sont quant 'à elles ajustées en partant de celles proches des électrodes grâce au flux de chaleur sortant, puis progressivement vers le centre grâce aux différences de températures des thermocouples entre eux.

#### II.5.3.1 Etalonnages des contacts électrode/entretoises

Le modèle de contact étalonné obtenu est reporté Figure II-20. Les résistances/conductances thermiques et électriques surfaciques du contact piston/entretoise donnent respectivement  $1.E-5 \text{ m}^2\text{K/W}$  et  $1.E-9 \text{ }\Omega\text{m}^2$  pour une pression constante de 100MPa et pour une température allant jusqu'à 850°C. Ces valeurs sont très basses et pourraient être négligées, car elles ne corrigent que de quelques Kelvins la température du piston dans le modèle étalonné.



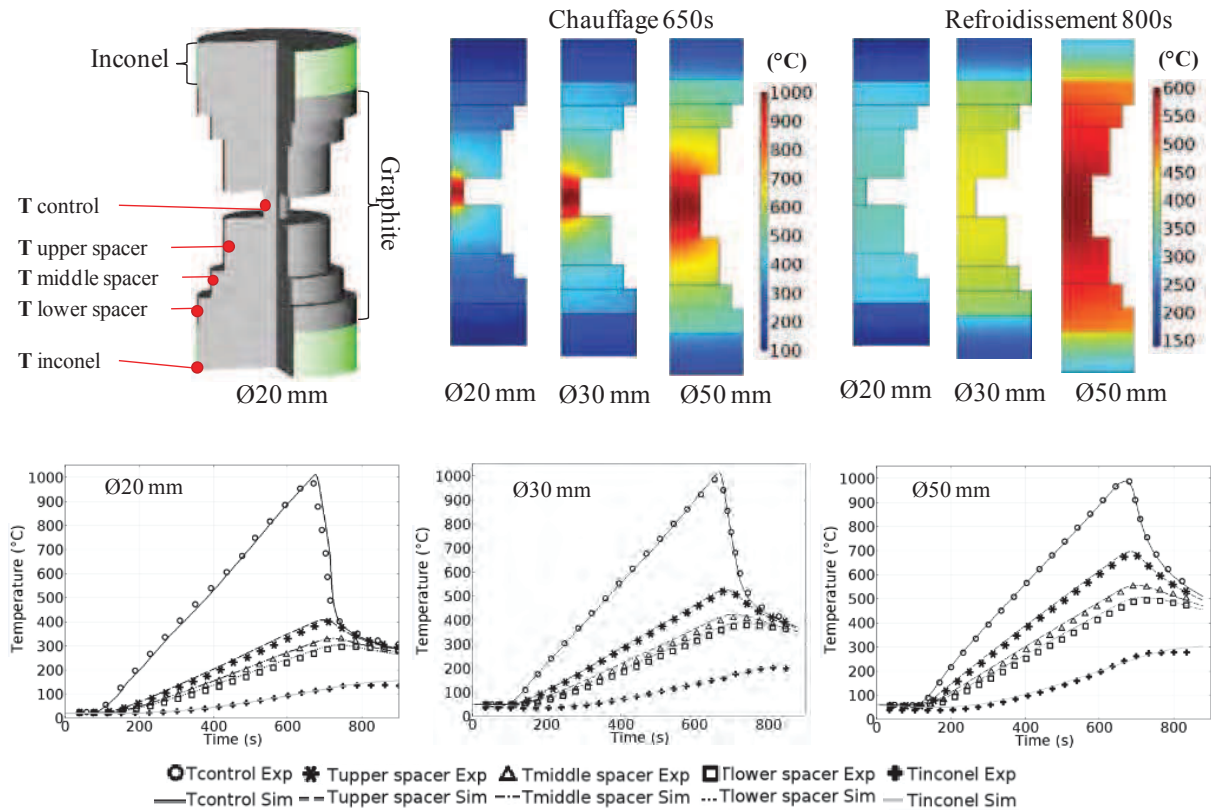


Figure II-20 Résultat de l'étalonnage du modèle de contact à un piston : en haut) coupe verticale de la température durant la montée et le refroidissement, en bas) les courbes expérimentales et simulées prises au niveau des thermocouples.

Les résistances électriques et thermiques des contacts entretoise/entretoise (graphite/graphite) et électrode/entretoise (inconel/2Xpapyex/graphite) reportées en fonction des pressions de contacts Figure II-21 ont une influence plus marquée, tout particulièrement le contact électrode/entretoise qui engendre un écart de température pouvant aller jusqu'à 100°C (Figure II-20).

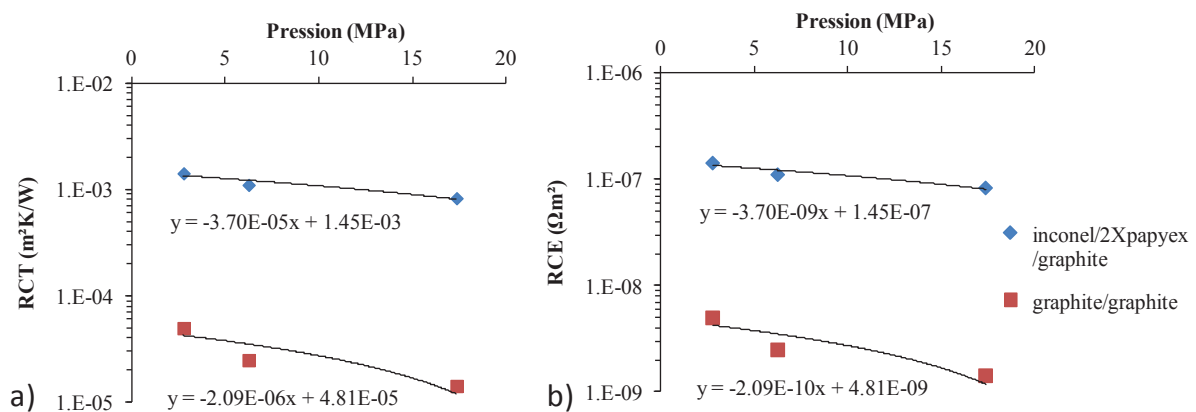
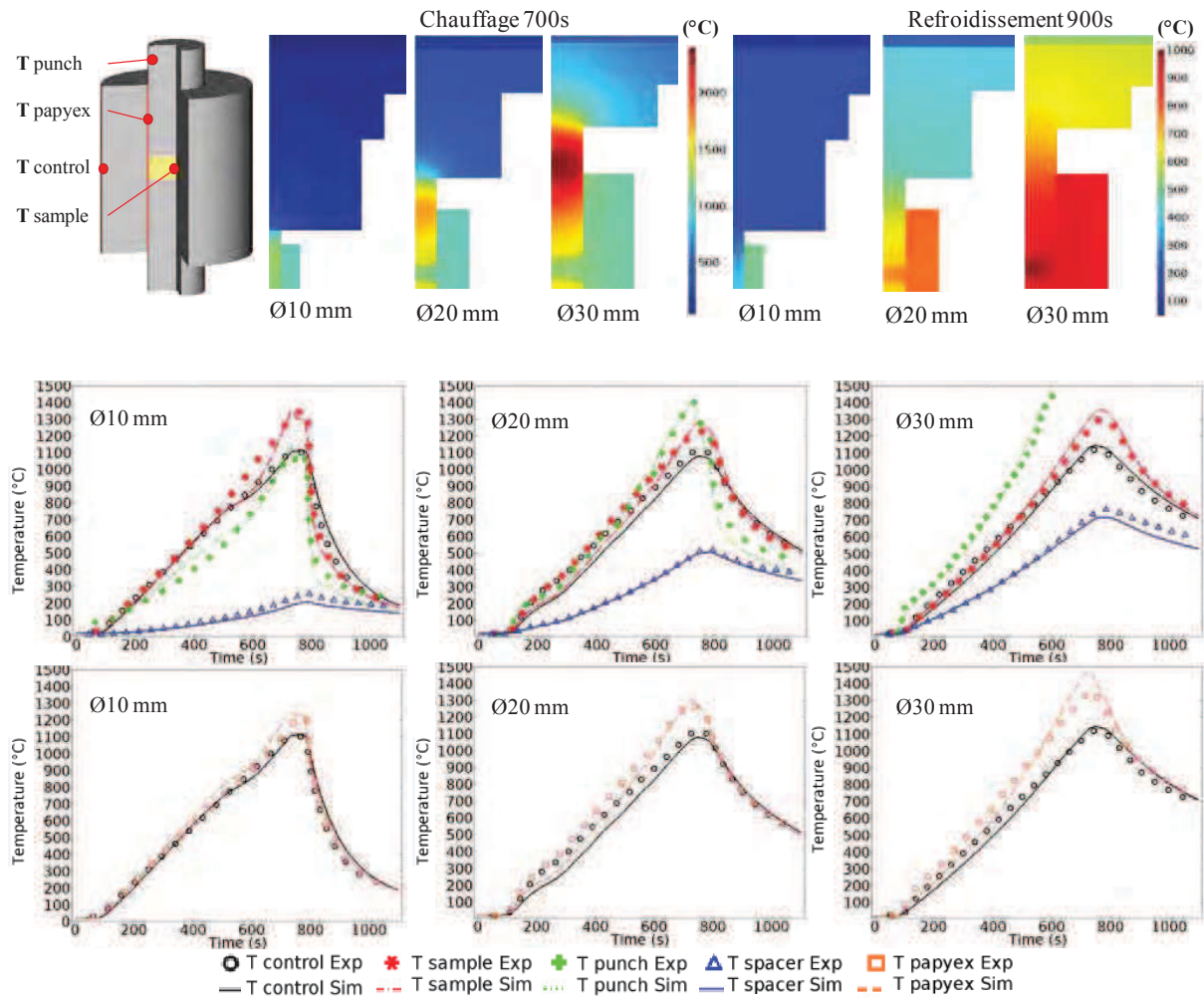


Figure II-21 Résistances thermiques (a) et électriques (b) de contact sur les parties électrodes et entretoises.

Les ordres de grandeurs des RCE et RCT donnent respectivement  $1.E-7 \Omega m^2$  et  $1.E-3 m^2 K/W$  pour le contact inconel/2Xpapyex/graphite et  $1.E-9 \Omega m^2$  et  $1.E-5 m^2 K/W$  pour le contact graphite/graphite. Le contact électrode/entretoise possède des résistances de contact bien supérieures à celles des contacts entretoise/entretoise. L'effet protecteur de la double couche de papyex évoqué lors de l'étude précédente est également observé dans ces expériences. Cette double couche empêche une élévation trop importante de la température des électrodes en inconel.

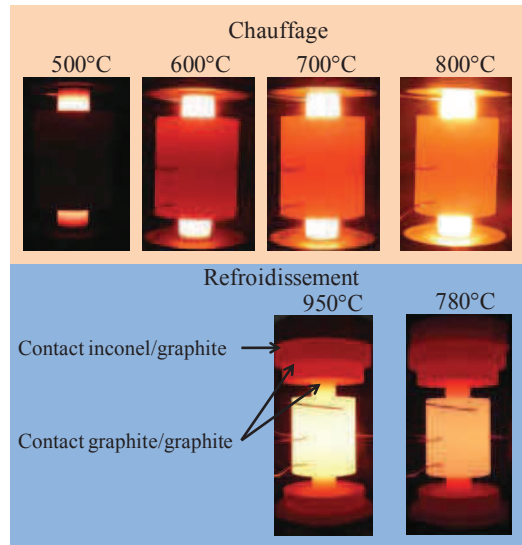
#### *II.5.3.2 Etalonnages des contacts piston/échantillon, échantillon/moule, piston/moule*

Les expériences Figure II-17,def se concentrent sur l'étalonnage de la partie centrale moule pistons et échantillon, des thermocouples sont donc placés aux endroits indiqués Figure II-22. Un autre thermocouple appelé "Tspacer" est placé au niveau de l'entretoise la plus proche de l'électrode. Le modèle de contact étalonné est reporté Figure II-22. Pendant l'étape de montée, la température apparaît comme étant plus élevée au niveau des pistons que dans le moule. Cet effet semble de plus en plus grand à mesure que l'on augmente le diamètre des pistons et semble provoqué par les différences d'épaisseurs des entretoises séparant les pistons de l'électrode. En effet pour compenser l'augmentation de hauteur des moules, l'épaisseur des entretoises a été diminuée pour que la hauteur de la colonne ne dépasse pas la limite maximale de la machine qui est de 250 mm. La RCT du contact inconel/2Xpapyex/entretoise se rapproche donc de plus en plus des pistons à mesure que le diamètre de ces derniers augmente. Comme cette RCT est très élevée en raison de la double couche de papyex et de la faible pression du contact, la quantité croissante de chaleur évacuée par les pistons est de moins en moins dissipée par le volume des entretoises dont la température (des entretoises) passe de  $600^\circ C$  pour l'essai de diamètre 10 mm à plus de  $1000^\circ C$  pour l'essai de diamètre 30 mm. Un point chaud de  $2400^\circ C$  apparaît donc dans la simulation de diamètre 30 mm, la mesure de température à ce niveau Figure II-22 est donc très vite interrompue par la destruction du thermocouple (Tpunch).



**Figure II-22 Etalonnage du modèle de contact en configuration homothétique : en haut) coupe verticale de la température durant la montée et le refroidissement, en bas) les courbes expérimentales et simulées prises au niveau des thermocouples après étalonnage.**

Au refroidissement le moule et l'échantillon sont les éléments les plus chauds et l'évacuation de chaleur semble se faire principalement par les pistons (plus froids). En montée tout comme au refroidissement la RCT présente à l'interface piston/moule cause un écart de température très important allant jusqu'à 500K (pour Ø30). Un très fort écart de température est effectivement visible dans les photographies prises au cours de l'essai de diamètre 30 mm (Figure II-23). En montée le piston apparaît comme étant très lumineux alors que le moule lui est à peine rouge. Au refroidissement, les photographies confirment que le moule est l'élément le plus chaud.



**Figure II-23 Photographies du champ de températures au cours de l'essai de diamètre 30mm pour différentes températures prises au niveau du moule.**

La prise en compte de la RCT verticale causée par le papyex apparait donc comme l'élément de modélisation le plus important pour la simulation du procédé. L'échantillon d'alumine possède une conductivité thermique bien inférieure à celle du graphite, le flux de chaleur entre le moule et les pistons est faible, en conséquence des différences de température assez importantes sont obtenues dans la simulation au niveau du bord de l'échantillon. Les images thermiques simulées en chauffage montrent que la température de la partie en contact avec les pistons est environ 200K plus élevée que celle du centre. Au refroidissement, le centre de l'échantillon possède la température la plus élevée.

Les valeurs identifiées des contacts électrode/entretoise et entretoise/entretoise sont rassemblées dans le Table II-3. Les résistances électriques et thermiques de contact entretoise/piston subissent une pression constante de 50MPa mais leur température varie beaucoup. Dans la simulation, les résistances de contact sont définies en fonction du temps, la dépendance en température est déterminée après l'étalonnage avec l'information de la température de contact. Les valeurs identifiées pour les trois diamètres sont reportés Figure II-24. Les contacts électriques échantillon/piston et échantillon/moule sont négligés, car l'échantillon en alumine est électriquement isolant, seuls les contacts thermiques sont considérés, les valeurs sont reportées Figure II-25. Les résistances de contact verticales (graphite/papyex/graphite) subissent la pression occasionnée par l'expansion thermique des pistons, plus la température des pistons est élevée, plus les résistances de contact seront faibles. Comme dans la première étude le contact vertical faisant intervenir une feuille de papyex est modélisé en prenant en compte la couche de papyex dans toute son épaisseur de 0.2 mm. Le contact électrique à ce niveau est modélisé par l'ajout d'une valeur  $R_0$  à la résistivité électrique de la couche dans le sens de son épaisseur. La forme prise pour la

dépendance en température de l'ajustement mathématique de  $R_0$  aux vues des courbes rectilignes obtenus est:

$$R_0 = (aT + b) * Fe \quad \text{II-6}$$

avec a et b des constantes, T la température en Kelvin et Fe un facteur dépendant de la configuration géométrique utilisé dans les expérimentations.

Le contact thermique est modélisé par une condition de contact thermique simulant une couche de contact équivalente d'épaisseur 0.1 mm et de résistivité thermique  $RT_p$  placée de part et d'autre de la couche de papyex. La dépendance en température de  $RT_p$  est approximée par l'ajustement mathématique suivant:

$$RT_p = \left( c + d \left( \frac{g-T}{T-h} \right) \right) * F_T \quad \text{II-7}$$

avec c, d, g et h des constantes, T la température en Kelvin et  $F_T$  un facteur dépendant de la configuration géométrique utilisée dans les expérimentations.

Comme dans l'étude précédente, la conductivité thermique du papyex est anisotrope, dans le plan du papyex, le terme constant de la conductivité thermique du graphite est multiplié par un facteur 10. Les résultats obtenus pour  $R_0$  et  $RT_p$  sont reportés Figure II-26.

Table II-3 Résistances électriques et thermiques des contacts électrode/entretoise et entretoise/entretoise.

	Diamètre 10 mm	Diamètre 20 mm	Diamètre 30 mm
RCE électrode/entretoise ( $\Omega.m^2$ )	3.33E-7	2.50E-7	8.33E-8
RCT électrode/entretoise ( $m^2.K/W$ )	3.33E-3	2.50E-3	8.33E-4
RCE entretoise/entretoise ( $\Omega.m^2$ )	Entretoises monobloc	5.00E-9	2.00E-9
RCT entretoise/entretoise ( $m^2.K/W$ )	Entretoises monobloc	5.00E-5	2.00E-5

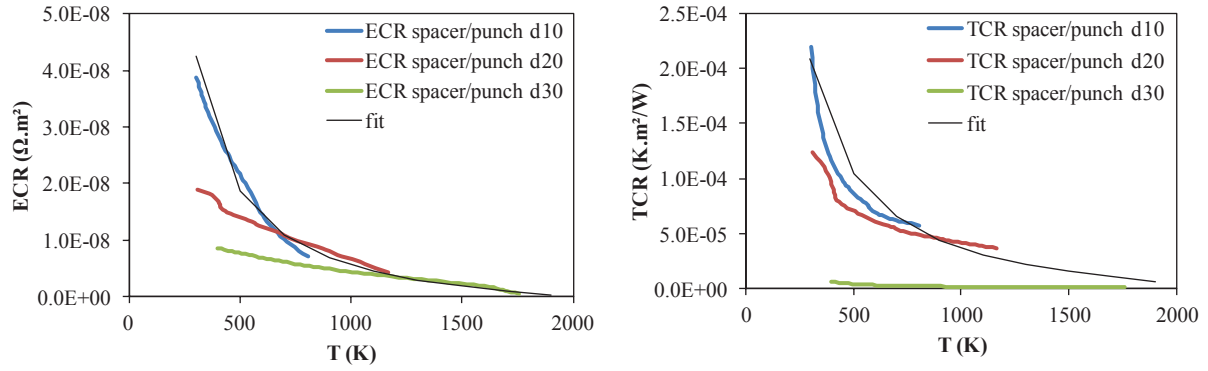


Figure II-24 Valeurs des résistances de contacts piston/entretoise: (à gauche) valeurs de RCE (à droite) valeurs de RCT.

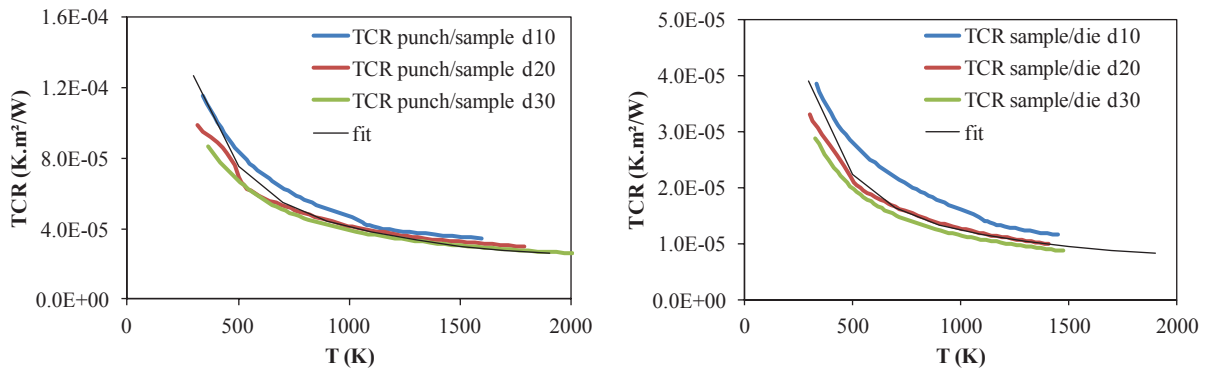


Figure II-25 Valeurs des résistances de contacts thermiques : (à gauche) piston/échantillon (à droite) échantillon/moule.

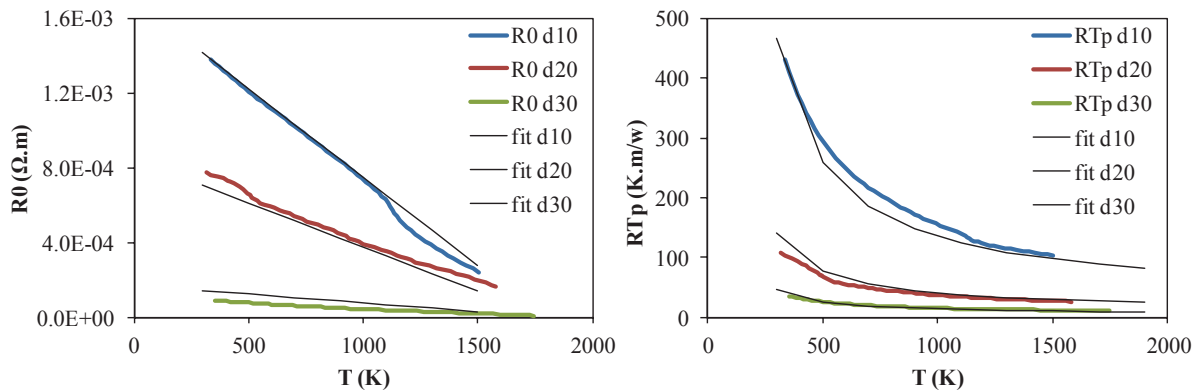


Figure II-26 Valeurs des résistances de contacts graphite/papyex/graphite: (à gauche) valeurs de R0 (à droite) valeurs de RTp.

Les résistances de contacts au niveau du papyex dépendent essentiellement de la pression engendrée par l'expansion thermique des pistons. Or, la pression de contact à l'interface piston/papyex/moule est très difficile à déterminer car le papyex se compacte avec la pression et la température de façon inconnue. Les facteurs correctifs  $F_e$  et  $F_T$  découlent de la pression à l'interface et sont liés à la différence de température entre les pistons et le moule, cette différence de température dépendant elle-même du diamètre respectif des

pistons. Aussi, dans une approche phénoménologique, nous proposons deux fonctions de dépendance des facteurs  $F_e$  et  $F_T$ , l'une étant la différence de température maximale entre les pistons et le moule  $\Delta T_{max}$  et l'autre étant tout simplement la valeur du diamètre des pistons (Figure II-27). Les résultats des approximations des différentes résistances de contact sont rassemblés dans le Table II-4.

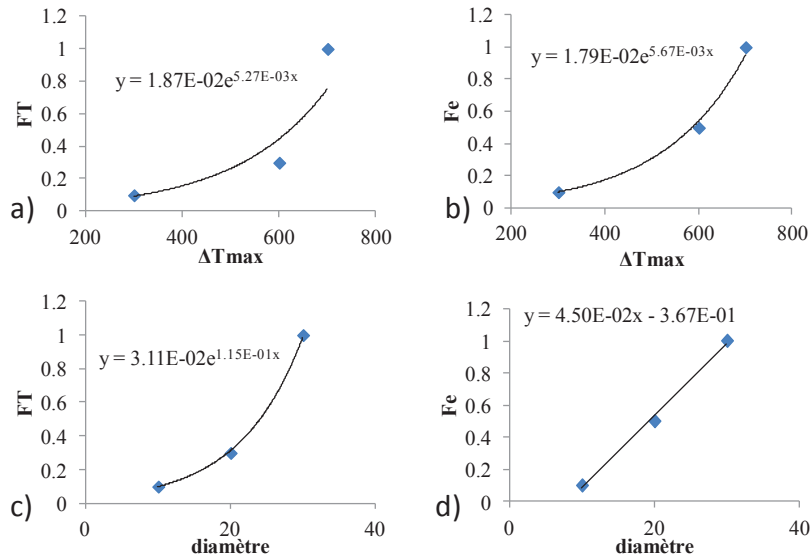


Figure II-27 Dépendance des facteurs  $F_e$  et  $F_T$  en fonction du diamètre de piston ou de l'écart de température maximal entre les pistons et le moule.

Table II-4 Expressions ajustées des résistances de contacts au niveau de l'ensemble piston, entretoise, échantillon, moule.

RCE entretoise/ piston ( $\Omega.m^2$ )	$5 * 10^{-9} \frac{(2000 - T)}{(T - 100)}$
RCT entretoise/piston ( $m^2.K/W$ )	$5 * 10^{-6} + 3 * 10^{-5} \frac{(2000 - T)}{(T - 50)}$
RCT piston/échantillon ( $m^2.K/W$ )	$2.5 * 10^{-5} + 1.5 * 10^{-5} \frac{(2000 - T)}{(T - 50)}$
RCT échantillon/moule ( $m^2.K/W$ )	$8 * 10^{-6} + 4 * 10^{-6} \frac{(2000 - T)}{(T - 80)}$
$R_0$ (piston/moule) ( $\Omega.m$ )	$(1.7 * 10^{-3} + 9.5 * 10^{-7} * T) * F_e$
$RT_p$ (piston/moule) ( $m.K/W$ )	$\left(80 + 50 \frac{(2000 - T)}{(T - 80)}\right) * F_T$

II.5.4 Vérification

Le modèle étendu identifié précédemment est censé permettre la modélisation du champ de températures pour des configurations utilisant des pistons allant de 10 à 30 mm de diamètre avec une feuille de papyex pour les séparations des pistons, moule et échantillon et pour une pression appliquée de 50MPa.

Ce modèle est mis à l'épreuve sur une configuration de diamètre 15 mm. Une instrumentation similaire aux précédentes utilisant cinq thermocouples est utilisée afin de confronter le champ de température expérimental au champ de température simulé (Figure II-28). La géométrie employée ne conserve pas les mêmes rapports de longueurs (l'homothétie) comme c'est le cas dans les expériences d'étalonnage Figure II-17;def. En dehors de ce point les matériaux employés sont identiques, les séparations utilisent également une double couche de papyex pour le contact électrode/entretoise et une couche unique pour les contacts entre les éléments pistons-moule-échantillon, les autres contacts sont graphite/graphite (comme pour les essais d'étalonnage). La pression appliquée est également de 50MPa.

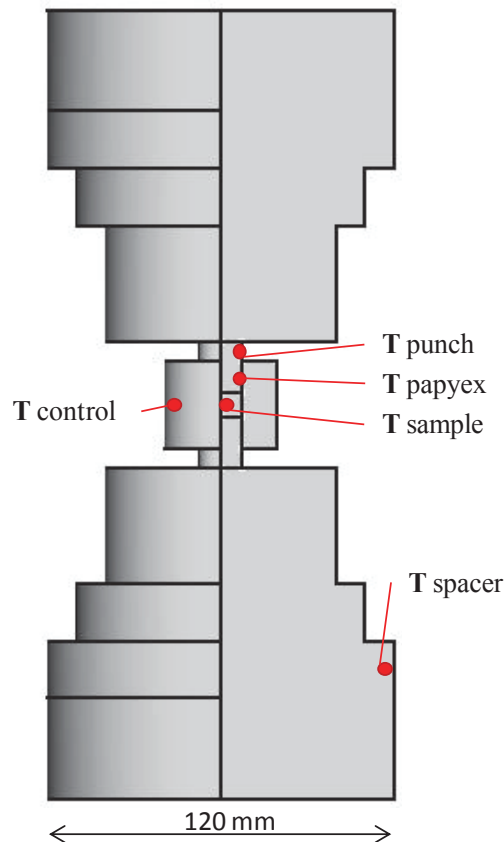


Figure II-28 Configuration géométrique utilisée pour l'expérience de vérification.



En introduisant les valeurs des RCT et RCE du modèle étendu (Tableaux II.3 et II.4) au niveau des différents contacts dans la nouvelle configuration, on obtient le champ de température simulé en fin de montée reporté Figure II-29;a avec la photo correspondant à l'expérience (Seules les différences de brillances permettent la comparaison) Figure II-29;b et le champ de température simulé au refroidissement Figure II-29;c. La répartition de température en montée est similaire à celle observée dans les expériences de calibration Figure II-22, la température est maximale dans les pistons et le papyex, la forte RCT verticale du papyex cause une séparation nette de champ de température. Au refroidissement le moule est l'élément le plus chaud et l'échantillon adopte un champ de température intermédiaire entre les pistons et le moule. La confrontation des températures mesurées et simulées avec et sans prise en compte des résistances de contact est reportée Figure II-30.

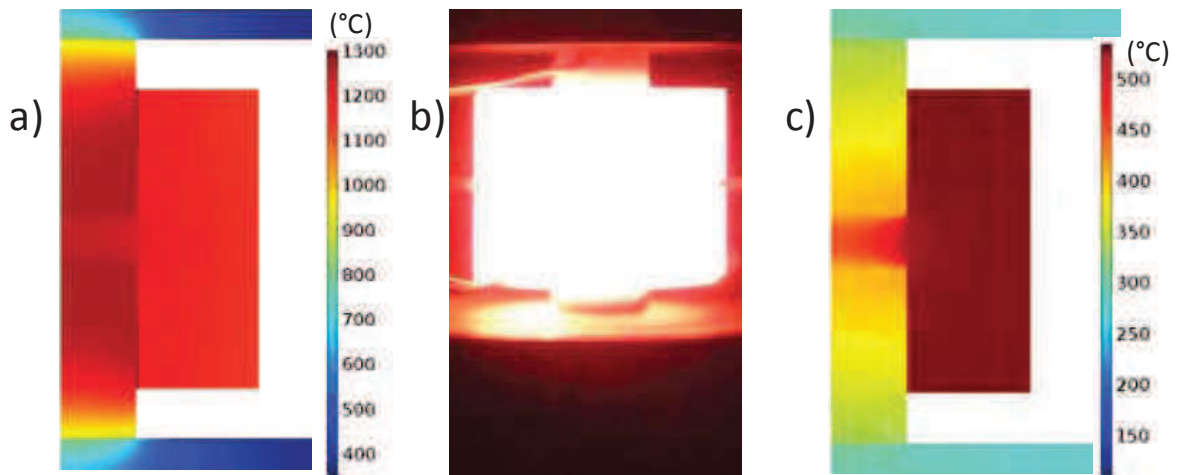


Figure II-29 a) Champ de température simulé à 700s b) photographie en montée c) champ de température simulé à 900s.

Avec résistances de contact

Sans résistances de contact

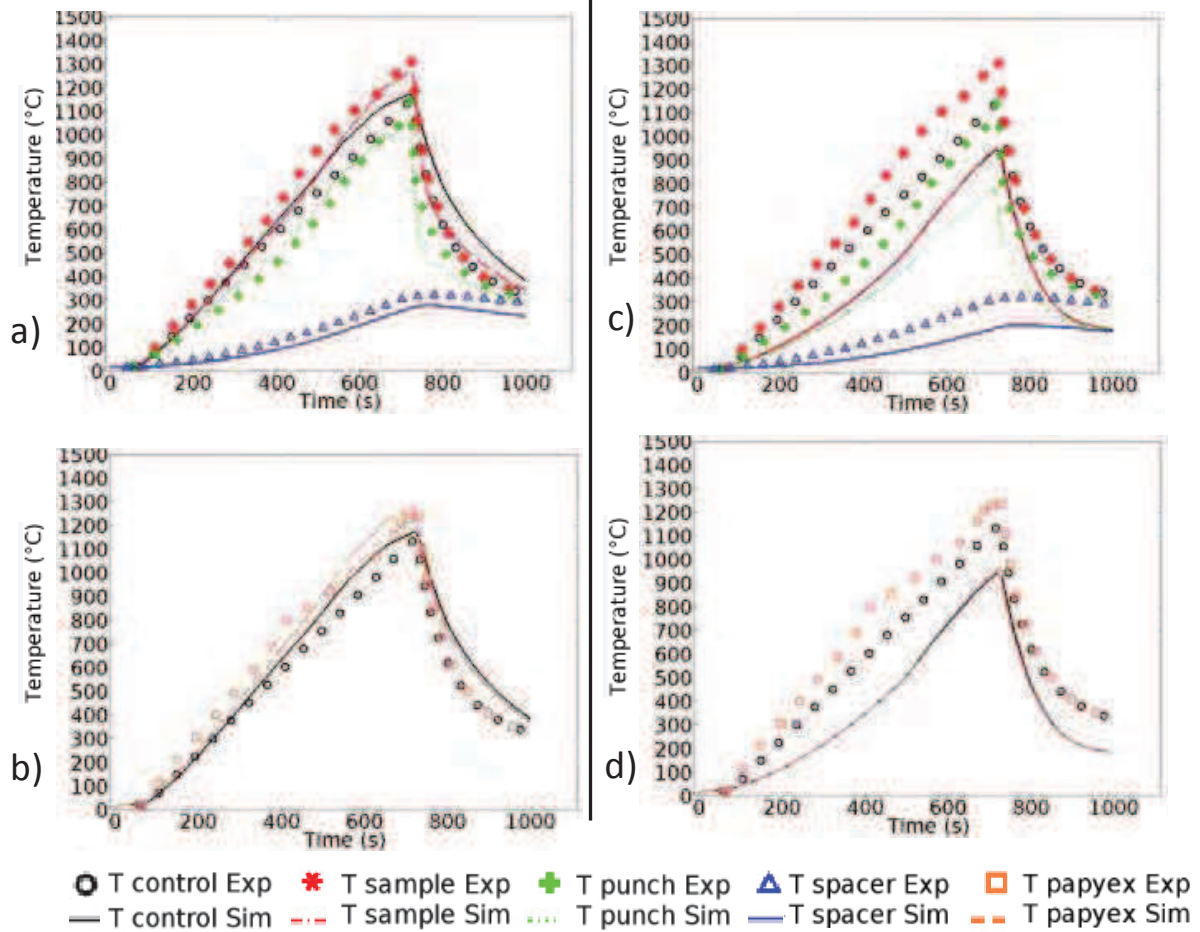


Figure II-30 Confrontation des températures expérimentales/simulées avec (a,b) et sans (c,d) résistances de contact.

La confrontation des températures montre des écarts de température un peu plus importants que lors des confrontations des modèles étalonnés (Figure II-20), cependant ils restent relativement modérés puisqu'ils sont d'environ 4% et n'excèdent pas 7%. Ce résultat est relativement bon compte tenu du fait que l'on utilise une configuration utilisant des rapports de longueurs très différents de ceux utilisés dans les expériences d'étalonnage. En revanche la confrontation des températures dans la simulation sans résistances de contact est très mauvaise, en fin de montée, les températures sont globalement plus basses d'environ 200-300°C pour des écarts de températures pouvant aller jusqu'à 30%. Cela montre à quel point les résistances de contact ont une grande influence sur le procédé SPS.

## II.6 Conclusion

L'une des principales conclusions de cette partie est que les résistances de contacts (RCE et RCT) constituent comme nous venons de le voir, le paramètre régissant la distribution de la température dans toute la colonne SPS. Des images thermiques révèlent en effet une répartition de températures mettant en évidence de forts phénomènes de contacts au niveau de la feuille de graphite (papyex) placée au niveau du contact vertical piston/moule. Un plan d'expérience a été employé pour déterminer les RCE graphite/papyex/graphite en fonction de la pression et de la température. Ce plan d'expérience a montré que la RCE diminue avec la pression et la température pour atteindre des valeurs négligeables au-delà de 50MPa et 700°C. Du fait de l'expansion thermique du graphite la pression minimale de la configuration utilisée est de 10MPa ce qui limite grandement le domaine de validité du plan d'expériences. Une approche par analyse inverse est alors employée pour identifier en un seul essai l'ensemble des résistances de contact de la colonne SPS à partir du champ de température expérimental. Deux zones à fortes résistances de contact sont donc déterminées ; il s'agit du contact électrode/entretoises possédant une RCT surfacique de l'ordre de  $1.E-3 \text{ m}^2\text{K/W}$  et du contact piston/moule utilisant une feuille de papyex de 0,2 mm dont les résistivités de contact électrique et thermique équivalentes sont de l'ordre de  $5.E-4 \Omega\text{m}$  et  $100 \text{ Km/W}$ . Trois phénomènes sont identifiés au niveau du contact vertical graphite/papyex/graphite, une RCE est responsable d'une élévation globale de température de l'ordre de 100K, une RCT de part et d'autre du papyex est responsable de l'échauffement localisé du papyex et enfin une forte anisotropie thermique est responsable de l'apparition d'un point chaud au niveau de l'échantillon lorsque celui-ci est de faible épaisseur. Les valeurs des résistances de contact identifiées peuvent varier en fonction des conditions expérimentales (pression, température) et également en fonction des dimensions de géométries employées. Un modèle de contact étendu permettant de prendre en compte l'effet d'échelle entre différentes configurations homothétiques de diamètre 10, 20 et 30 mm est déterminé. Le modèle obtenu pour une pression constante de 50MPa décrit l'évolution des résistances de contact graphite/papyex/graphite en fonction du diamètre de piston ou de l'écart de température maximum entre les deux surfaces en contacts. La confrontation du modèle étendu avec un essai indépendant de diamètre 15 mm avec une géométrie non homothétique montre un très bon accord. L'erreur de température de l'échantillon du modèle passe de 30% sans prise en compte des résistances de contact à 4% avec le modèle de contact étendu.

---

---

## **Chapitre III. Modélisation mécanique du frittage appliquée au procédé SPS**

---

---



### III.1 Introduction

Le fluage est généralement considéré comme un phénomène physique thermiquement activé. Pour en rendre compte à l'échelle des milieux continus la loi de Norton est généralement admise en tant qu'approche phénoménologique visant à modéliser différents mécanismes physiques sous-jacents.

Dans ce cadre nous proposons dans ce qui suit des méthodes d'identifications des paramètres de densification eux même construits en partie avec la loi de fluage de Norton (Figure III-1): Notre but étant ensuite d'alimenter nos simulations MEF du frittage.

La simulation MEF du frittage présente de nombreux avantages, car elle permet d'anticiper l'évolution du champ de densité relative de l'objet étudié en fonction de conditions expérimentales telles que la pression, la température, les effets de forme, la friction, etc...

L'extraction des paramètres des lois de frittage constitue une des premières difficultés rencontrées pour ce type de simulation. Les paramètres de frittage sont, les paramètres de fluage en température  $A_0$ ,  $Q$  et  $n$  évoqués dans la partie bibliographique (Figure III-1) ainsi que les paramètres des lois de compaction  $c$  et  $f$  pour le modèle d'Abouaf (Abouaf, 1985) et pour le modèle d'Olevsky  $\varphi$  et  $\psi$  (Olevsky, 1998) également détaillés dans la partie bibliographique (Figure III-1).

Loi de fluage de Norton:

$$\dot{\epsilon}_{eq} = A \sigma_{eq}^n$$

Dépendance en température:

$$A = A_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right)$$

**Modèle Mécanique: fluage poreux**

	Modèle d'Olevsky	ou	Modèle d'Abouaf
> Tenseur des contraintes:	$\bar{\sigma} = \frac{\sigma_{eq}}{\dot{\epsilon}_{eq}} \left( \varphi \dot{\underline{\epsilon}} + \left( \psi - \frac{1}{3} \varphi \right) \text{tr}(\dot{\underline{\epsilon}}) \underline{\underline{1}} \right) + P_I \underline{\underline{1}}$		$\bar{\sigma} = \frac{\sigma_{eq}}{\dot{\epsilon}_{eq}} \left( \frac{2}{3c} \dot{\underline{\epsilon}} + \left( \frac{1}{9f} - \frac{2}{9c} \right) \text{tr}(\dot{\underline{\epsilon}}) \underline{\underline{1}} \right)$
> Paramètres équivalents:	$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{1}{\sqrt{1-\theta}} \sqrt{\varphi \dot{\gamma}^2 + \psi \text{tr}(\dot{\underline{\epsilon}})^2}$		$\sigma_{eq} = \sqrt{3cJ_2 + fI_1^2}$
> Fonctions dépendantes de la porosité:	$\varphi = (1-\theta)^2$ $\psi = \frac{2(1-\theta)^3}{3\theta}$		$f = k \frac{(1-\rho)}{(\rho - \rho_{cr})}$ $c = 1 + \alpha \frac{(1-\rho)}{(\rho - \rho_{cr})}$

Loi de croissance granulaire:  $\dot{G} = \frac{k_0}{3G^2} \left( \frac{\theta_c}{\theta_c + \theta} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-Q_G}{RT}\right)$

Figure III-1 Rappel des principales équations intervenant dans les modèles de densification.

La détermination de ces paramètres par voie classique utilise des essais de fluage de matériaux denses à différentes températures pour extraire les paramètres  $A_0$ ,  $Q$  et  $n$  et des

essais de compaction isostatique et de fluage de matériaux poreux pour déterminer  $c$  et  $f$  ou  $\varphi$  et  $\psi$ . Les difficultés des voies de détermination classiques résident dans l'intervention d'essais très différents comme la compaction isostatique et le fluage, de plus les campagnes d'essais sont très longues (Nicolle, 1999).

Les lois de fluage sont classiquement déterminées par des essais de traction (Baladea et al., 2014; Surand, 2013) à différents paliers de pressions et de températures. Cependant, l'objectif étant de déterminer des lois de frittage sous contrainte, ces lois sont préférentiellement déterminées par des essais de compression (Abouaf, 1985; Geindreau et al., 1999b; Nicolle, 1999).

Nous proposons dans ce qui suit une méthode d'identification complète utilisant la machine SPS dans deux configurations différentes la compression libre et la compression en matrice. Nous étudions en premier lieu la détermination des lois de fluage ( $A(T)$ ,  $n$ ) par essais de fluage sur matériaux denses. Nous aborderons ensuite la détermination des fonctions  $c$  et  $f$  via des essais de fluage et des essais de compression en matrice, une méthode permettant de s'affranchir des essais de compression isostatique faisant intervenir de longues campagnes d'essais.

La première approche consiste donc à réaliser des essais de fluage par compression avec ou sans matrice utilisant des éprouvettes cylindriques denses et poreuses. La méthodologie utilisée consiste à déterminer en premier lieu les paramètres ( $A_0$ ,  $Q$  et  $n$ ) de la loi de fluage du matériau dense pour différentes températures, ensuite la détermination des lois de densifications ( $c$  et  $f$ ) est menée par deux types d'essais, des essais de fluage sur éprouvettes poreuses et des essais de compaction de poudre en matrice. Pour cela deux configurations (Figure III-2) ont été utilisées pour les essais de fluage :

a) l'une avec l'éprouvette placée entre deux pistons et sans matrice, le chauffage de l'éprouvette est alors direct,

et l'autre,

b) avec l'éprouvette placée entre deux pistons dans un moule ouvert sans contact avec les parois de celle-ci, de plus les faces des pistons en contact avec l'éprouvette sont isolées électriquement, le chauffage est alors indirect puisque le courant ne traverse pas l'éprouvette.

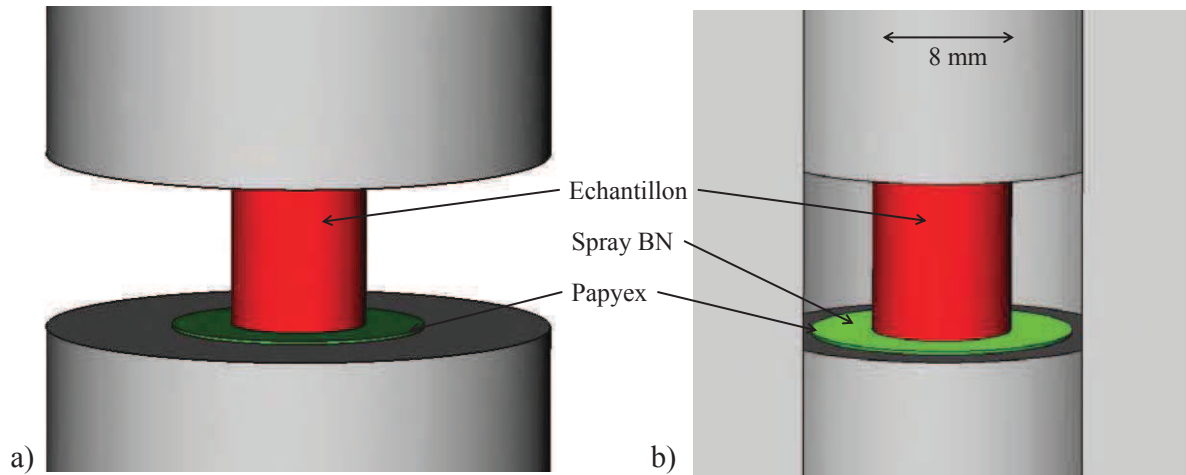


Figure III-2 Configurations pour essais de fluage avec chauffage a) direct (échantillon entre deux pistons) b) indirect (en matrice fendue et échantillon isolé électriquement par du spray BN).

Les essais avec chauffage direct utilisent des pistons de diamètres 30 mm et les essais avec chauffage indirect sont réalisés dans un moule ouvert utilisant des pistons de diamètre 20mm.

### III.2 Identification des paramètres de frittage

Nous allons détailler la procédure de détermination des paramètres de fluage et de compaction à partir d'essais de fluage de matériaux denses et poreux réalisés dans la machine SPS pour une poudre d'alliage de Ti-6Al-4V (Surand, 2013). Cette poudre se caractérise par des grains de taille moyenne de 88 $\mu$ m. Le choix de cette poudre est porté par le fait que les paramètres de fluage en traction ont été précédemment déterminés.

#### III.2.1 Méthode d'identification par essais de fluage

##### III.2.1.1 Essais de fluage sur matériau dense

Les essais de compression sont plus compliqués à réaliser que les essais de traction, car l'éprouvette de compression (généralement cylindrique) est sensible au frottement avec le support entraînant une déformation en tonneau pouvant potentiellement perturber les mesures.

Une méthode très répandue consiste à effectuer les essais de fluage de compression isotherme utilisant différentes marches de pressions successives (Abouaf, 1985; Nicolle, 1999). Cette méthodologie permet de simplifier grandement les campagnes d'essais. En effet, un seul essai permet de déterminer la loi de fluage pour la température étudiée. Des essais ont donc été réalisés avec les deux configurations précédemment décrites.



*III.2.1.1.1 Essais de fluage en configuration de chauffage direct*

Les échantillons de TA6V utilisés sont des cylindres de diamètre de 8mm et d'une hauteur de 10mm, ils sont obtenus par usinage dans un bloc massif de TA6V. La force appliquée est mesurée par le capteur de force de la machine. Le déplacement entre les pistons est mesuré par une caméra optique (Keyence CV-H500C 5M pixel avec contrôleur CV-X170) ayant une précision d'environ 50 $\mu$ m ce qui est suffisant étant donné que nos expériences sont en grande déformation. Le capteur de déplacement de la machine donne l'évolution du déplacement de toute la colonne. Les cycles thermiques sont composés d'une montée en température à une vitesse de 100K/min jusqu'à la température de fluage suivie d'un palier. Le contrôle de la pression est réalisé en manuel pour permettre de réaliser des marches de pression avec un temps de transit très court (quelques secondes) permettant d'ajuster la pression au fur et à mesure en fonction du déplacement observé. Quatre températures sont testées 750, 800, 850 et 900°C. Du fait de la faible amplitude des déplacements, l'essai à 750°C est répété deux fois. Pour vérifier que le comportement en fluage secondaire de chaque palier de pression est indépendant des éventuelles déformations antérieures, un essai comportant un cycle de pression inversé (diminution progressive de la valeur de pression des paliers successifs) est effectué.

Les taux de déformation obtenus (méthode de calcul détaillée un peu plus loin) à partir des données des deux extensomètres ainsi que la force appliquée pour chaque essai réalisé en configuration de chauffage direct sont reportés sur la Figure III-3. Nous pouvons constater que la courbe du taux de déformation provenant de l'extensomètre optique est plus bruitée que la courbe provenant du capteur de déplacement de la machine; la comparaison des deux courbes pendant le palier de température ne montre pas de grandes différences entre les deux capteurs. Les résultats reportés sur la Figure III-3 semblent indiquer qu'en régime isotherme les éléments de graphite sont maintenus au même niveau d'expansion thermique, la courbe de déplacement observée correspond alors à la courbe de frittage à une constante près. Le taux de déformation dépendant de la pente de cette courbe n'est donc pas impacté par l'expansion thermique. Par la suite nous utiliserons les données machines, pour la détermination du taux de déformation longitudinal.

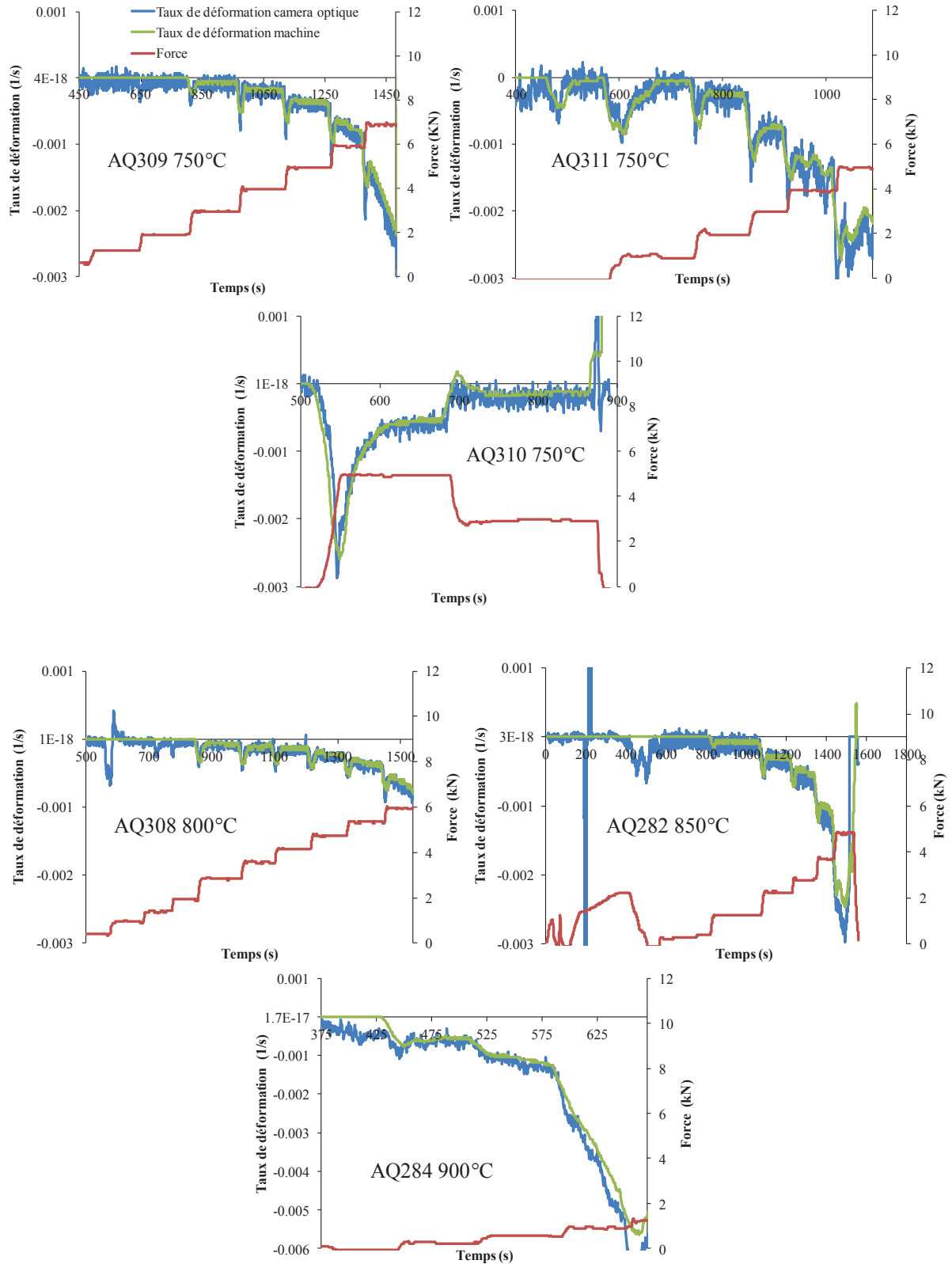


Figure III-3 Force appliquée et taux de déformation calculé à partir des données d'extensométrie (données machine en gris et issues d'une caméra optique dédiée en bleu) pour les essais de fluage avec chauffage direct.

L'équation du fluage de Norton d'une poudre avec dépendance de la température s'exprime classiquement (Abouaf, 1985) de la façon suivante:

$$\begin{cases} \dot{\epsilon}_{eq} = A\sigma_{eq}^n \\ A = A_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \end{cases} \quad \text{III-1}$$

En palier isotherme A est constant, la valeur de A et celle de n peuvent donc être déterminées par la relation de régression linéaire suivante:

$$\ln(\dot{\epsilon}_{eq}) = \ln(A) + n \ln(\sigma_{eq}) \quad \text{III-2}$$

Le taux de déformation  $\dot{\epsilon}$  est calculé de façon classique comme étant la dérivée de la déformation vraie (III-3), le calcul de contrainte  $\sigma$  prend en compte le diamètre moyen de l'éprouvette mesuré à partir des photos de la camera.

$$\dot{\epsilon} = \frac{d\left(\ln\left(1 + \frac{l-l_0}{l_0}\right)\right)}{dt} \quad \text{III-3}$$

avec, l la longueur de l'éprouvette et  $l_0$  sa longueur initiale.

Le tracé du logarithme du taux de déformation en fonction du logarithme de la contrainte de l'ensemble des points expérimentaux sont reportés Figure III-4.

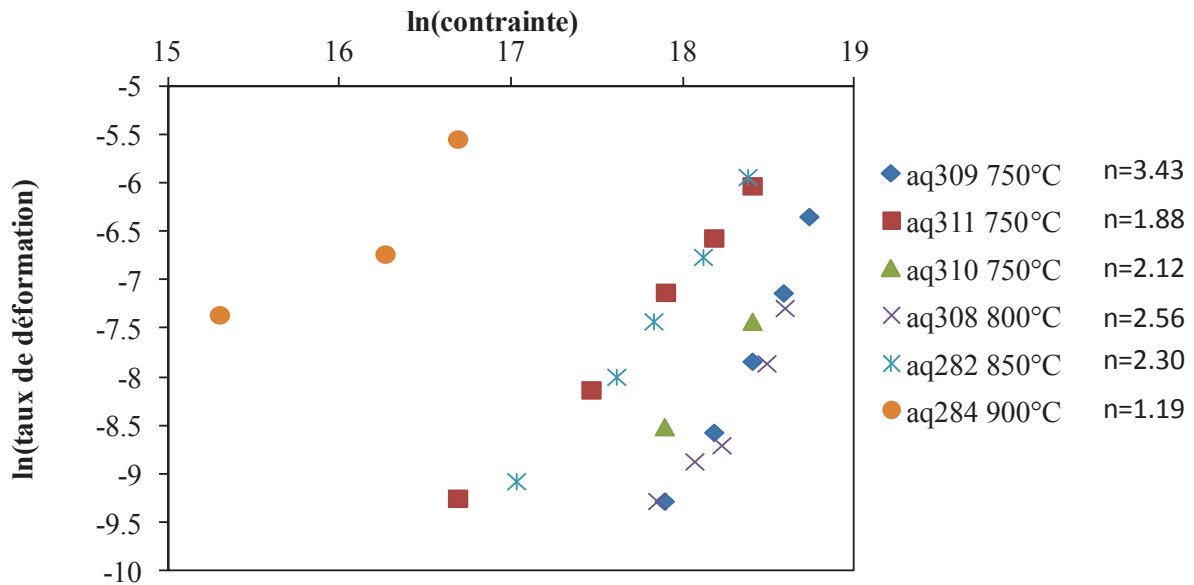


Figure III-4 Régression linéaire des points expérimentaux pour différentes températures (aq309, etc: nom des essais). De manière générale (pour une température donnée), les points s'alignent en une droite permettant de déterminer une valeur de n qui dans l'ensemble est comprise entre 1 et 3 pour une moyenne de 2,3 avec un écart type de 0,7. L'essai AQ310 présentant un cycle de pression inversé a ses deux points alignés avec les autres courbes pour une valeur de n égale à 2,1. Cela suggère que les valeurs identifiées pour chaque palier de pression sont indépendantes de l'ordre dans lequel les pressions sont appliquées. En revanche, les droites

correspondantes à chaque température ne sont pas espacées régulièrement comme le prévoit l'évolution du paramètre A du matériau en fonction de la température. Non seulement la reproductibilité des essais à 750°C est mauvaise, mais l'ordre et le placement des points avec les températures ne se font pas toujours dans le bon sens. Par exemple les points de l'essai à 800°C sont situés à des contraintes supérieures à celles des essais à 750°C, les points de l'essai à 850°C sont quant' à eux au même niveau que ceux de l'essai à 750°C. Il y a donc un réel problème de température, bien que celle-ci soit contrôlée au niveau du centre de l'éprouvette échantillon, ces résultats semblent indiquer un problème de gradients thermiques importants.

Les photos prises pour chaque essai révèlent la présence d'un gradient thermique important rendant le centre de l'éprouvette plus chaud que les bords (Figure III-5,a). Ce gradient est causé par l'évacuation de chaleur de l'éprouvette vers les pistons plus froids. Ce gradient est probablement responsable de l'effet tonneau observé en fin de cycle (Figure III-5) puisque les tonneaux présentent des parties cylindriques près des bases (pas de fluage dans les zones froides).

La feuille de graphite (papyex) introduite à l'interface éprouvette/échantillon diminue plus ou moins la quantité de chaleur évacuée à cette interface en fonction de la pression et de la température, ce qui introduit une instabilité thermique très importante. Ceci est responsable des résultats observés précédemment.

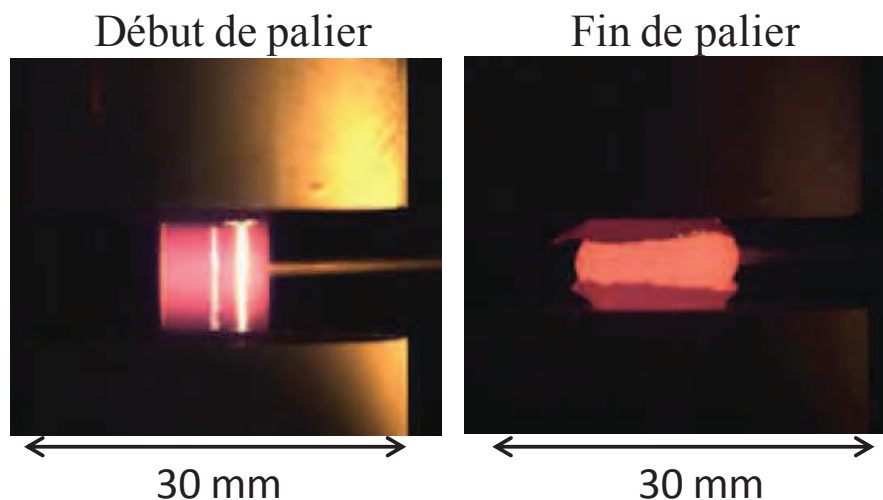


Figure III-5 Photographies de l'éprouvette en début et fin de palier thermique.

Pour évaluer l'intensité maximale que peuvent avoir les instabilités thermiques, une simulation MEF est réalisée (Figure III-6) et prend en compte le papyex comme une couche

équivalente de 0.1mm et de conductivité thermique CT de 4 W/(mK) (Mersen, 2015) (sans résistances de contact). La température de l'éprouvette est alors très inhomogène et des différences de températures de l'ordre de 200K apparaissent dans l'échantillon.

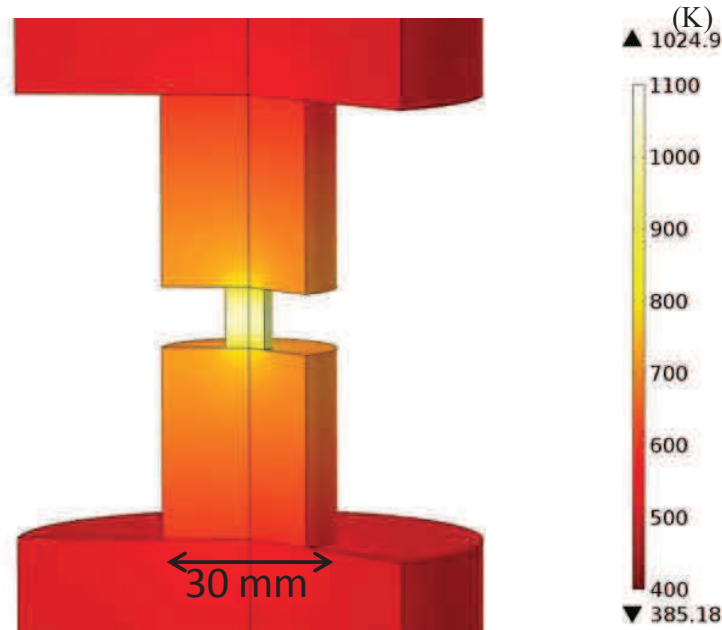


Figure III-6 Champ de température simulée pour la configuration de chauffage direct sans résistance thermique de contact (avec uniquement la valeur de conductivité thermique de papyex de 4 W/(mK)).

Les gradients thermiques causés par les résistances de contacts thermiques sont susceptibles d'évoluer très fortement d'un essai à l'autre sur une amplitude de température bien supérieure au 50°C d'écart programmés entre les essais. En effet, les résistances de contacts étant très sensibles à la pression, il est possible d'obtenir à température de contrôle égale des écarts thermiques très importants le long de l'éprouvette. C'est le cas des essais AQ309 et AQ311 tous deux réalisés à 750°C mais possédant des pressions très différentes. L'essai AQ311 est à une gamme de pression beaucoup plus faible que pour l'essai AQ309, en conséquence les résistances de contact thermiques sont plus fortes et l'évacuation de la chaleur est moins forte que pour l'essai AQ309. La température moyenne de cet essai (AQ311) est donc plus forte que celle de l'essai AQ309 et finalement les points expérimentaux des deux essais ne sont pas confondus.

Pour pallier ces phénomènes de gradients thermiques nous avons optés pour une configuration en chauffage indirect.

#### III.2.1.1.2 Essais de fluage en configuration de chauffage indirect

Dans cette nouvelle configuration le courant ne doit pas passer par l'échantillon, la chaleur doit être générée à l'extérieur puis être communiquée à l'éprouvette par conduction

thermique. Ce mode de chauffage indirect (Figure III-2,b) doit en principe donner un champ de température de l'éprouvette relativement homogène à l'équilibre thermique, car la zone de production de chaleur n'est plus l'éprouvette, mais les zones alentour (pistons, moule). La campagne d'essai et donc reconduite dans la nouvelle configuration avec des écarts de température de 75K au lieu des 50K de la précédente campagne pour mieux discerner l'effet propre à la température sur le fluage. Le nombre d'essais se réduit donc à trois températures 750, 825 et 900°C. Les essais réalisés sont beaucoup plus concluants que ceux réalisés en chauffage direct. L'effet tonneau disparaît quasi complètement comme en témoigne la photo de l'intégralité des échantillons obtenus par fluage en configuration de chauffage indirect (Figure III-7), aucune différence de brillance n'est observée au niveau de l'éprouvette, la température apparaît donc comme étant beaucoup plus homogène que pour la configuration précédente.

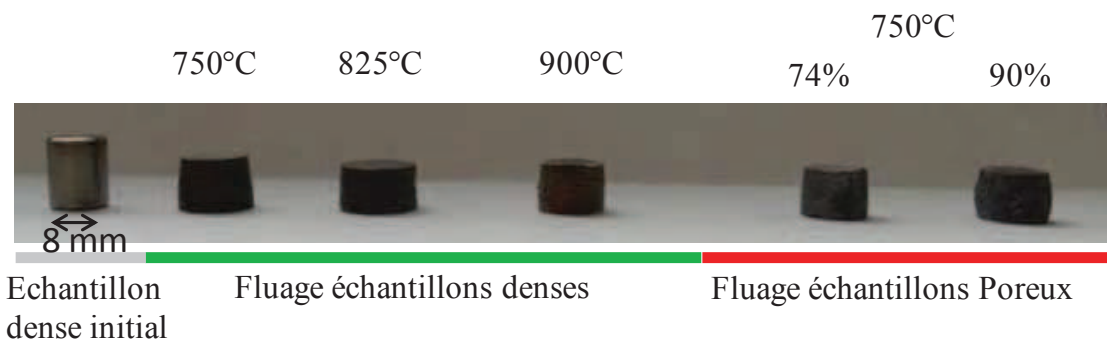


Figure III-7 État final des éprouvettes après les essais de fluage en configuration de chauffage indirect.

Les taux de déformation obtenus à partir du capteur de déplacement de la machine ainsi que la force appliquée pour chaque essai réalisé en configuration de chauffage indirect sont reportés sur la Figure III-8. L'éprouvette restant cylindrique, il est possible d'estimer à tout instant sa section  $S_t$  par la relation de conservation de son volume, on obtient:

$$S_t = S_i \frac{h_i}{h_t} \quad \text{III-4}$$

avec,  $S_i$  la section initiale,  $h_i$  la hauteur initiale et  $h_t$  la hauteur instantanée.

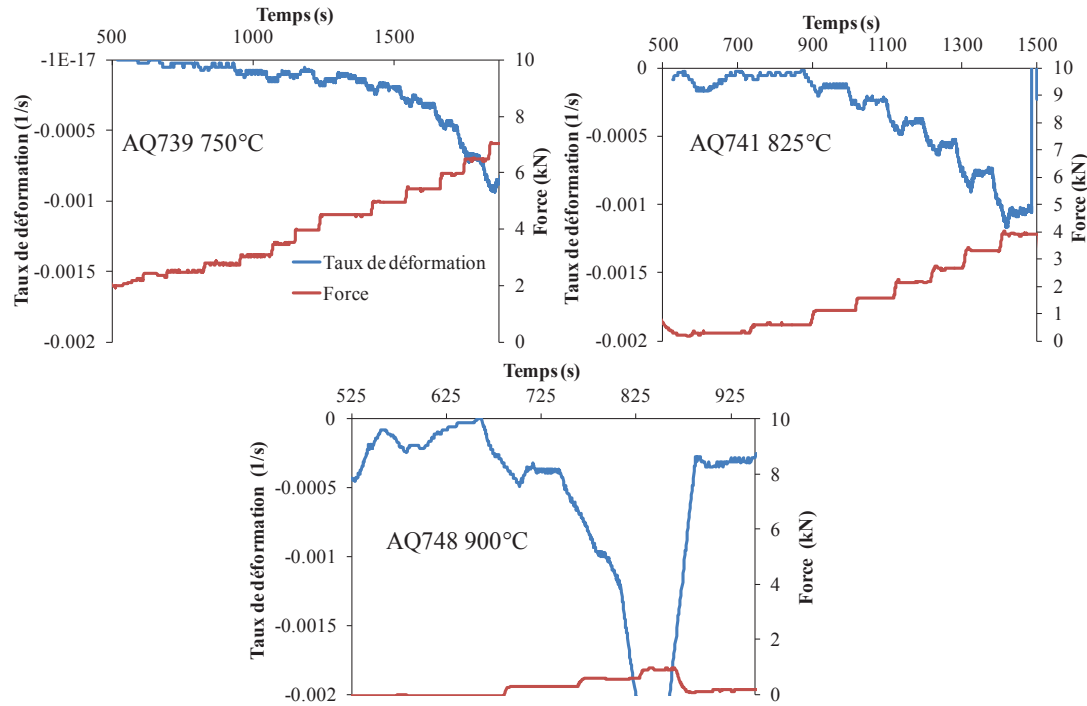


Figure III-8 Force appliquée et taux de déformation pour les essais de fluage en configuration de chauffage indirect.

Le logarithme du taux de déformation en fonction du logarithme de la contrainte des points expérimentaux est tracé sur la Figure III-9. Par régression linéaire le modèle de fluage de Norton est déterminé (Figure III-9) est donne les valeurs suivantes:  $A_0 = 30,6 \text{ s}^{-1}\text{Pa}^{-n}$  ;  $Q=416 \text{ kJ/mol}$  ;  $n=2$ .

$$\dot{\epsilon}_{eq} = 30,6 * \exp\left(\frac{-4,16*10^5}{RT}\right) \sigma_{eq}^2 \quad \text{III-5}$$

Comme suggéré par la précédente campagne d'essais, une valeur de n proche de 2 est identifiée. Les valeurs de n déterminées pour le TA6V dans les travaux de Martin Surand (Surand, 2013) et dans les travaux de Xue et al (Xue et al., 2011) montrent que les valeurs de n décroissent fortement pour des températures comprises entre 400 et 700°C et tendent vers des valeurs faibles entre 2 et 3 pour les hautes températures (Figure III-10). La principale hypothèse habituellement avancée pour expliquer ce phénomène est que pour les bases températures, les mécanismes de fluage sont principalement gouvernés par des mouvements de dislocations caractérisés par des valeurs de n élevées et à mesure que l'on monte en température les phénomènes de diffusion caractérisés par des valeurs de n proches de 1 prennent petit à petit l'ascendant, diminuant ainsi la valeur de n.

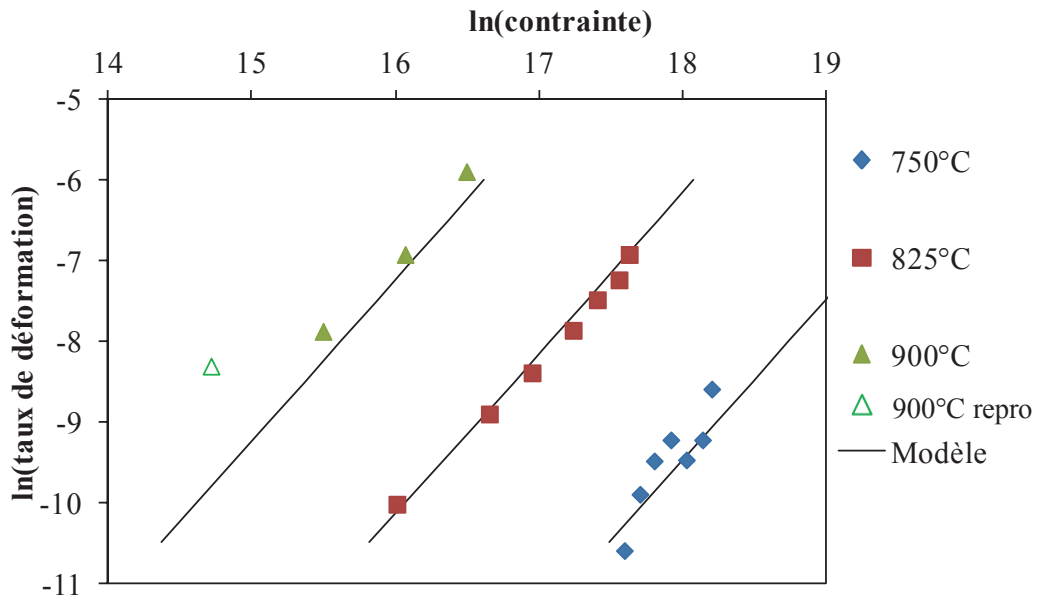


Figure III-9 Régression linéaire des points expérimentaux pour différentes températures en configuration de chauffage indirect.

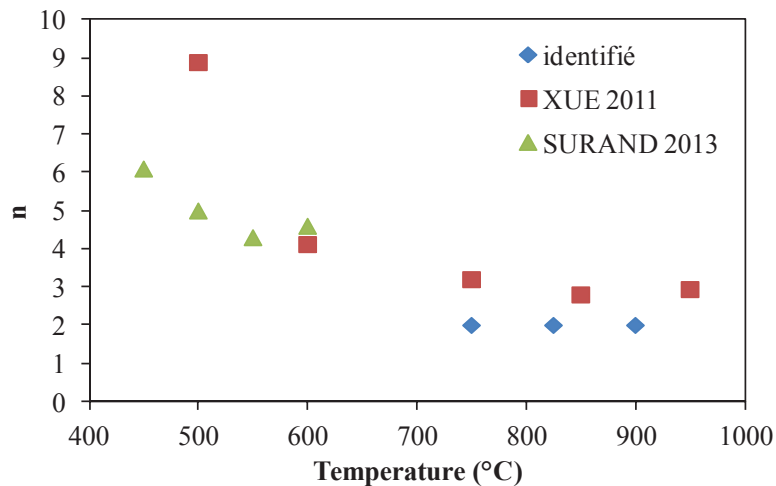


Figure III-10 Comparaison des valeurs de  $n$  identifiées par cette étude et issus de la littérature en fonction de la température (Surand, 2013; Xue et al., 2011).

Le comportement en fluage du TA6V dense étant identifié, une campagne d'essais sur échantillons poreux est ensuite menée. Ces essais ont principalement pour objectif de déterminer les lois de compaction de la poudre. Pour le modèle d'Abouaf il s'agit de la détermination des fonctions  $c$  et  $f$ .

### III.2.1.2 Essais sur échantillons poreux

Deux types d'essais sont effectués pour déterminer conjointement les valeurs des fonctions  $c$  et  $f$ . L'ensemble des essais (fluage et compression en matrice) sont réalisés avec la machine



SPS. Les essais de fluage sur échantillon poreux sont menés en utilisant la configuration de fluage par chauffage indirect utilisé pour les essais de fluage sur échantillon dense. Des échantillons poreux sont obtenus par frittage SPS interrompu utilisant des moules de diamètre interne 8mm, pour une quantité de poudre de 1,6g. Les essais de fluage sont constitués d'un unique palier isotherme (750°C) et isobare (Figure III-11ab) d'une durée assez courte. L'objectif est de déterminer les propriétés de densification pour deux valeurs de densités relatives, la densité relative initiale et la densité relative finale (deux valeurs que l'on peut mesurer). Les essais sont par la suite répétés de façon à obtenir le comportement pour une large gamme de densités relatives. Les essais de fluage poreux obéissent à la relation suivante (Abouaf, 1985) :

$$|\dot{\epsilon}_z| = A(f + c)^{\frac{n+1}{2}} |\sigma_z|^n \quad \text{III-6}$$

L'essai de compaction en matrices est réalisé dans des conditions similaires à celles utilisées pour l'obtention des échantillons poreux (moules de diamètre interne 8mm, 1,6g de poudre), l'expérience est réalisée à 820°C en utilisant des paliers de pressions successifs jusqu'à densification complète (Figure III-11c). Pour ce cas, la compaction obéit à la relation suivante (démonstration § III.2.2.6):

$$|\sigma_z| = A^{-\frac{1}{n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}} \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1-n}{n}} \left(\frac{4}{c} + \frac{1}{f}\right)^{\frac{n+1}{2n}} \frac{1}{9} \quad \text{III-7}$$

Ainsi, il est possible de déterminer les fonctions c et f du modèle d'Abouaf à partir des équations (III-6) et (III-7) en résolvant un système de deux équations à deux inconnues suivant (Abouaf, 1985):

$$\begin{cases} c + f = \text{Rés}_1(\rho) \\ \frac{4}{c} + \frac{1}{f} = \text{Rés}_2(\rho) \end{cases} \quad \text{III-8}$$

avec, Rés<sub>1</sub> et Rés<sub>2</sub> obtenus grâce aux équations (III-6) et (III-7).

Ces équations utilisent  $|\sigma_z|$ , A et  $|\dot{\epsilon}_z|$  issus des données expérimentales des essais de fluage poreux et de compaction en matrice reportés sur la Figure III-11. Les points de Rés<sub>1</sub> et Rés<sub>2</sub> obtenus ainsi que leurs courbes d'ajustement sont reportés sur la Figure III-12;a.

À partir des courbes ajustées des points expérimentaux (Figure III-12;a) la résolution du système (III-8) est effectuée point par point à partir des solutions suivantes:

$$c = \frac{(3+R\acute{e}s_1R\acute{e}s_2)+\sqrt{(-R\acute{e}s_1R\acute{e}s_2-3)^2-16R\acute{e}s_1R\acute{e}s_2}}{2R\acute{e}s_2} \quad \text{III-9}$$

$$f = R\acute{e}s_1 - c \quad \text{III-10}$$

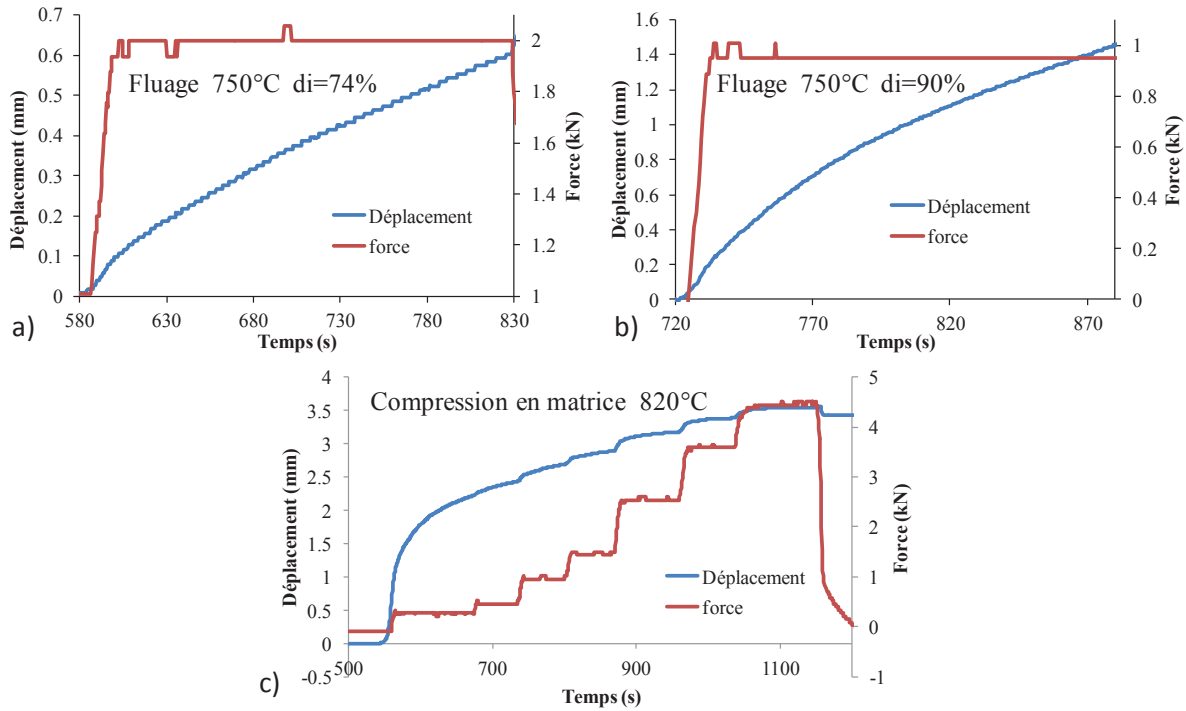


Figure III-11 Déplacement et force appliquée pour a, b) les essais de fluage poreux c) l'essai de compression en matrice.

A partir de (III-9) et (III-10) on obtient les expressions ajustées des courbes c et f fonctions de la densité relative  $\rho$  (Figure III-12;b;c) suivantes:

$$c = 1 + 2,9 * 10^3 * \left(\frac{1-\rho}{\rho-0.67}\right)^3 \quad \text{III-11}$$

$$f = 0.023 * \left(\frac{1-\rho}{\rho-0.67}\right)^{1.5} \quad \text{III-12}$$

À ce stade les paramètres du modèle de frittage pour cette poudre de TA6V sont intégralement identifiés, pour éprouver sa validité il est confronté à deux essais SPS indépendants. Ces essais sont de simples compactations dans un moule de diamètre 8mm. Une pression constante de 25MPa est employée. Les cycles thermiques pour ces deux essais sont composés d'une simple rampe de température respectivement à 50 et 100K/min, 1g de poudre de TA6V est employé. Les résultats de la confrontation des densités relatives expérimentales/modélisées sont reportés sur la Figure III-13. Les courbes ont un accord

relativement bon jusqu'à 95% de densité relative (erreurs comprises entre 3 et 10%), au-delà le modèle tend vers des densités relatives de 100% alors qu'expérimentalement les densités relatives semblent se stabiliser vers 97%. Comme nous allons le détailler dans les parties suivantes du chapitre, la croissance granulaire est la cause probable de ce phénomène.

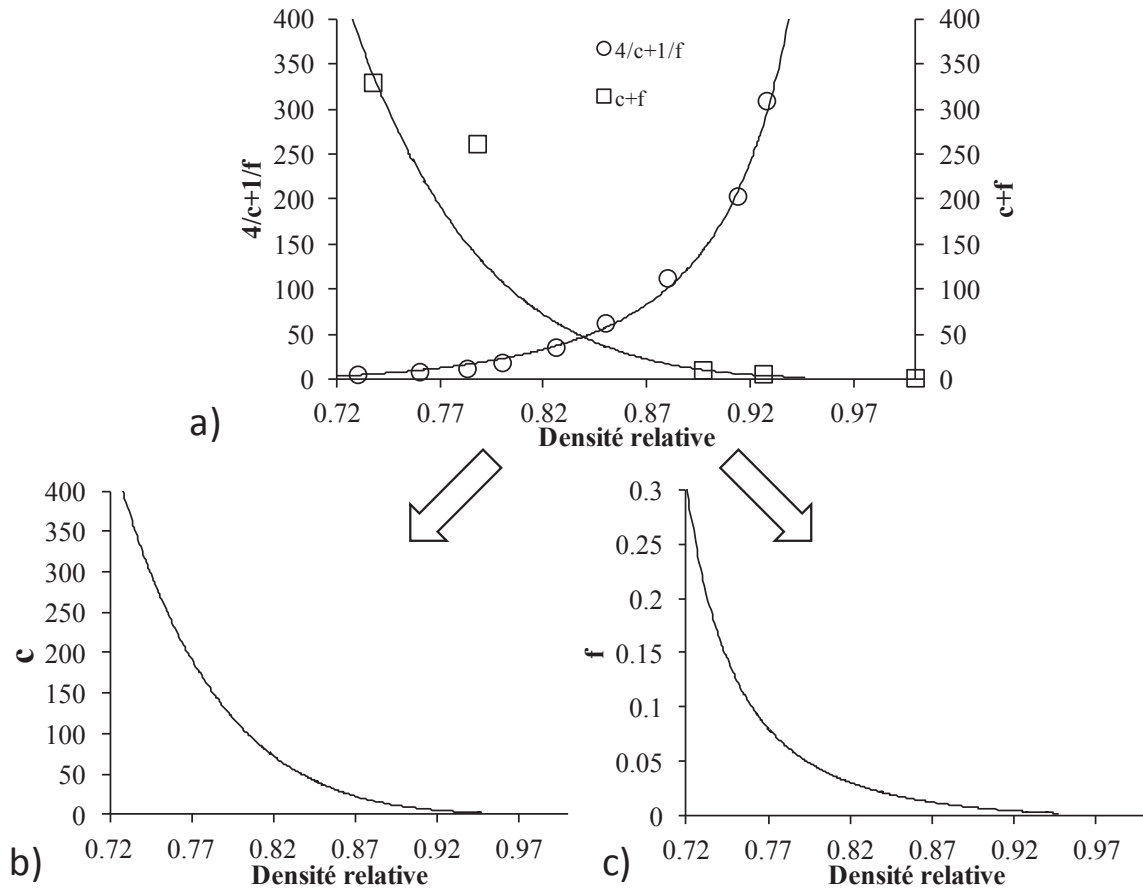


Figure III-12 Détermination des fonctions  $c$  et  $f$ : a) fonctions expérimentales  $c+f$  et  $4/(c+1/f)$  b) fonction  $c$  obtenue c) fonction  $f$  obtenue.

Comparée aux méthodologies classiques, cette méthode de détermination des paramètres de frittage est sensiblement plus simple à mettre en œuvre et présente l'avantage de pouvoir être menée intégralement dans une machine SPS. Le modèle établi à l'aide de cette méthodologie semble tout à fait satisfaisant. En outre, la méthodologie expérimentale mise en œuvre pour le fluage par chauffage indirect présente l'avantage de s'affranchir quasi complètement de l'effet tonneau qui constitue une des grandes difficultés des essais de compression. Cette méthodologie d'identification nécessite cependant une campagne d'essais relativement longue. En effet, il faut réaliser des essais préliminaires pour obtenir les éprouvettes, les essais de compactations doivent être répliqués pour obtenir l'information de la température exacte de la poudre. Dans les chapitres suivants, nous proposons une

méthodologie différente, réduisant considérablement la quantité d'essais nécessaires à l'identification des paramètres de frittage.

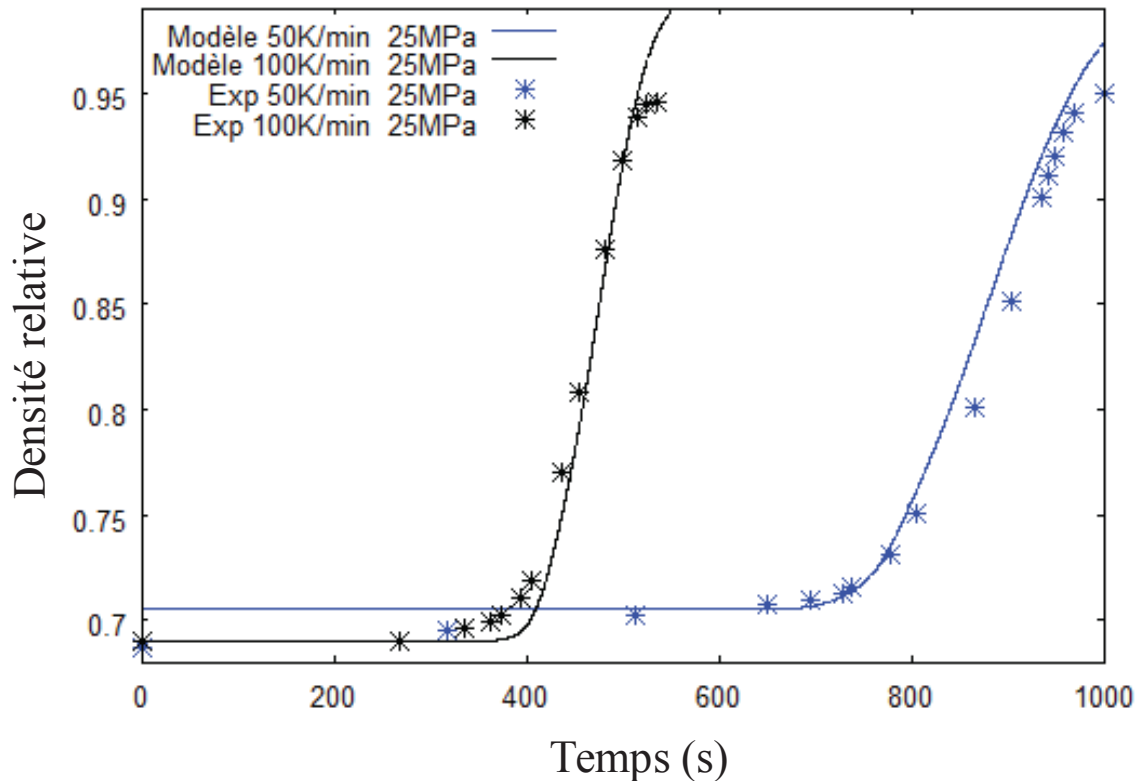


Figure III-13 Courbes de densification expérimentales/modélisées pour les essais à 50 et 100K/min.

### III.2.2 Méthode d'identification rapide par essais SPS

L'intérêt de cette méthodologie rapide est que l'intégralité des paramètres de frittage d'une poudre peuvent être déterminés en trois essais SPS. Nous allons voir ci-dessous comment poser analytiquement le cas du frittage SPS avec le modèle d'Olevsky et en extraire les paramètres de fluage par régression linéaire. Les équations de base du modèle d'Olevsky (Olevsky, 1998; Olevsky, Garcia-Cardona, et al., 2012) sont présentes dans la partie bibliographique.

#### III.2.2.1 Description théorique de la méthode appliquée au modèle d'Olevsky

Dans le cas de la compression en matrice rigide le déplacement ne s'effectue que dans la direction d'écrasement. Si dans un repère xyz on pose la direction d'écrasement selon z, le tenseur du taux de déformation prend la forme simplifiée suivante:

$$\underline{\dot{\varepsilon}} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \dot{\varepsilon}_z \end{pmatrix} \quad \text{III-13}$$

Les équations du tenseur des contraintes, des invariants du tenseur du taux de déformation et l'équation du taux de déformation équivalent du modèle d'Olevsky donnent alors :

$$\sigma_z = KW^{m-1} \left( \varphi \dot{\varepsilon}_z + \left( \psi - \frac{1}{3} \varphi \right) \dot{\varepsilon}_z \right) \quad \text{III-14}$$

$$\dot{\varepsilon} = \text{tr}(\underline{\dot{\varepsilon}}) = \dot{\varepsilon}_z \quad \text{III-15}$$

$$\dot{\gamma} = |\dot{\varepsilon}_z| \sqrt{\frac{2}{3}} \quad \text{III-16}$$

$$W = |\dot{\varepsilon}_z| \sqrt{\frac{\psi + \frac{2}{3} \varphi}{1-\theta}} \quad \text{III-17}$$

Avec ce qui précède, l'expression de taux de déformation longitudinal s'écrit de la façon suivante :

$$|\dot{\varepsilon}_z|^{\frac{1}{n}} = \frac{-A^{\frac{1}{n}} \sigma_z}{\left( \psi + \frac{2}{3} \varphi \right)^{1 + \frac{1-n}{2n}} (1-\theta)^{\frac{n-1}{2n}}} \quad \text{III-18}$$

Avec pour le cas de la compression  $\dot{\varepsilon}_z \leq 0$  donc  $\dot{\varepsilon}_z = -|\dot{\varepsilon}_z|$  ainsi que,  $\sigma_z \leq 0$  impliquant  $\sigma_z = -|\sigma_z|$ .

Les travaux de Skorohod et d'Olevsky (Olevsky, 1998; Skorohod, 1972) ont permis de déterminer des valeurs théoriques généralisables pour les lois de compaction de  $\varphi$  et  $\psi$ . Nous choisissons les lois théoriques (III-19) et (III-20) dans la méthode de détermination des paramètres de frittage pour limiter les valeurs à identifier expérimentalement aux valeurs de la loi de fluage (A, n).

$$\varphi = (1 - \theta)^2 \quad \text{III-19}$$

$$\psi = \frac{2(1-\theta)^3}{3 - \theta} \quad \text{III-20}$$

L'équation de conservation de la masse se simplifie de la façon suivante :

$$\frac{\dot{\theta}}{1-\theta} = \dot{\varepsilon}_z \quad \text{III-21}$$

Les équations du taux de déformation (III-18) et de la conservation de la masse (III-21) permettent ensemble de constituer un modèle analytique du frittage SPS. Ce modèle est implémenté sur le logiciel libre Octave-forge et permet d'effectuer le calcul de l'évolution de

la densité relative d'un échantillon cylindrique ayant une température et une pression imposée sur tout son volume. Le principal avantage de ce type de modèle est qu'il permet d'effectuer des calculs de cycles de densification en quelques secondes. Le principal désavantage de ce type de modèle est que la température est supposée constante sur tout l'échantillon. Ce modèle analytique n'est donc utilisé que pour des matériaux de petite taille comme pour les échantillons de diamètre 8 mm où le gradient de température interne de l'échantillon peut être négligé.

La méthode de détermination des paramètres de fluage que nous utilisons dans ce chapitre est basée sur le même principe que celle utilisée par Wang et al dans leurs travaux (Wang et Raj, 1990). Ces auteurs utilisent la méthode dite du « constant heating rate » consistant à employer à pression constante, une rampe de montée en température pour déterminer par régression linéaire, les coefficients de fluage de la poudre étudiée. Pour le frittage SPS une dépendance en température avec une forme de type Arrhenius est souvent employée et permet de modéliser les phénomènes observés en régime anisotherme. L'hypothèse prise sur la forme de la dépendance en température du paramètre A basée sur différents mécanismes en particulier de diffusion (Rahaman, 2008) est la suivante:

$$A = \frac{A_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right)}{T} \quad \text{III-22}$$

Avec T la température, R la constante des gaz parfaits, A<sub>0</sub> le facteur pré-exponentiel et Q une énergie d'activation.

En combinant les équations (III-18) et (III-22) on obtient l'expression de l'équation de régression linéaire permettant d'identifier les coefficients de fluage A<sub>0</sub> et Q pour une valeur de n donnée.

$$n \ln \left( \frac{|\sigma_z|}{\left(\psi + \frac{2}{3}\phi\right)^{1 + \frac{1-n}{2n}} (1-\theta)^{\frac{n-1}{2n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}}} \right) - \ln(T) = -\ln(A_0) + \frac{Q}{RT} \quad \text{III-23}$$

Le membre de droite que l'on va appeler Y peut être calculé à partir des données expérimentales et d'une valeur donnée de n. Le membre de gauche est composé de constantes et de la température qui varie. La régression (III-24) linéaire considère l'inverse de la température en Kelvin comme étant la variable x du membre de droite.

$$Y = a + bx \quad \text{III-24}$$

A<sub>0</sub> est obtenu avec:

$$A_0 = \exp(-a) \quad \text{III-25}$$

Q est obtenu avec:

$$Q = bR \quad \text{III-26}$$

Un jeu de paramètres  $A_0$  et Q peuvent donc être identifiés pour différentes valeurs de n. Pour obtenir un modèle de frittage complet, il faut également identifier l'exposant n. Différentes approches peuvent être employées, des essais de fluage dense isothermes, des essais de compactations spécifiques avec différentes pressions (Li et al., 2012) etc. Une autre solution a retenu notre attention. Nous avons remarqué dans les expériences que nous allons traiter un peu plus loin que toutes les courbes de densité relative correspondante à différentes valeurs de n ne sont pas toutes en bon accord avec les valeurs expérimentales. Nous allons voir que pour le cas de l'alumine, la comparaison des courbes de frittage semble indiquer un n égal à 1.

#### *III.2.2.2 Méthodologie expérimentale*

Le matériau d'étude est une poudre d'alumine alpha (TMDAR, Taimei Chemicals, Japan) d'une pureté de 99,99% est de taille de grain moyenne de 140 nm. Cette poudre fait office de matériau de référence car beaucoup de travaux ont été menés pour étudier ses propriétés (B.-N. Kim et al., 2009; Langer et al., 2009; Santanach et al., 2011).

Pour mener à bien l'identification des paramètres  $A_0$  et Q, un seul essai à pression constante et à une vitesse de montée donnée devrait en théorie suffire. En réalité il y a de fortes différences de température entre l'endroit de contrôle de température et l'échantillon. Un fort effet d'expansion thermique entre également en compte et peut causer des variations allant jusqu'à quelques millimètres sur les courbes de déplacement. Au final, trois essais sont donc effectués pour déterminer les données expérimentales:

- L'essai de frittage est réalisé dans un moule de diamètre 8mm avec 1g de poudre d'alumine.
- Pour obtenir la température de l'échantillon durant tout le cycle thermique sans fausser la courbe de frittage, un deuxième essai est réalisé dans les mêmes conditions que le précédent en plaçant un thermocouple supplémentaire au cœur de la poudre.
- Un troisième essai est réalisé toujours avec les mêmes conditions expérimentales que celle du premier essai, mais avec un échantillon dense d'alumine. L'objectif de cet essai est de déterminer la courbe d'expansion thermique des éléments en graphite sans le frittage. La courbe de déplacement de cet essai est appelée "blanc".

La courbe de déplacement due au frittage est obtenue en soustrayant le déplacement du "blanc" à la courbe de déplacement du premier essai de frittage. La courbe de densité relative et le cycle thermique subi par l'échantillon pour notre essai de démonstration sont reportés sur la Figure III-14. À partir de ces résultats, il est possible de déterminer tous les termes expérimentaux nécessaires à la régression linéaire (III-23)  $\sigma_z$ ,  $\dot{\epsilon}_z$ ,  $\theta$  et  $T$ .

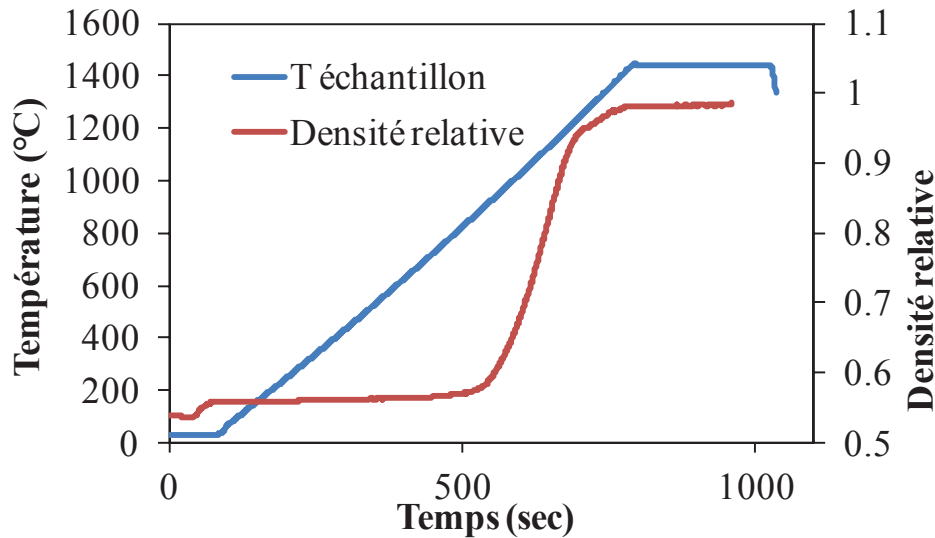


Figure III-14 Cycle de densité relative et de température de l'échantillon.

Un couple de valeurs de  $A_0$  et  $Q$  est identifié pour différentes valeurs de  $n$ . Nous avons fait varier  $n$  entre 1 et 3 car les valeurs de  $n$  connues pour l'alumine ne dépassent pas 3 dans la littérature (Coble, 1963; Langer et al., 2009). Les courbes de régressions linéaires obtenues sont reportées sur la Figure III-15. Les courbes obtenues sont des droites pour des valeurs de  $n$  proches de 1 mais à mesure que l'on s'éloigne vers des valeurs élevées de  $n$  les courbes sont de moins en moins droites. À ce stade la régression linéaire semble indiquer une valeur de  $n$  égale à 1. Cette valeur est cohérente avec les résultats de Langer et al (Langer et al., 2009) réalisés avec la même poudre d'alumine pour des procédés types SPS et HP. Les valeurs de  $A_0$  et  $Q$  sont rassemblées pour chaque valeur de  $n$  dans la Table III-1. Chaque couple de valeurs est introduit dans le modèle analytique. Les courbes de densités relatives calculées sont alors comparées à la courbe de densité relative expérimentale (Figure III-16). Nous avons la confirmation que la courbe de densification simulée correspondant à  $n=1$  permet d'obtenir le meilleur accord avec la courbe de densité relative expérimentale. Même si initialement cette méthode n'est pas prévue pour déterminer l'exposant  $n$ , il semble que la forte sensibilité du modèle de frittage à ce paramètre permette de différencier ce dernier. Le modèle obtenu pour  $n=1$  est en bon accord avec l'expérience jusqu'à une densité relative de 0,9, au-delà le modèle tend vers 1 alors



qu'expérimentalement la densité relative finale est 0,987. Il y a donc un autre effet responsable de la diminution de la vitesse de densification en fin de cycle. Nous allons voir un peu plus loin que cet effet est attribuable à la croissance granulaire.

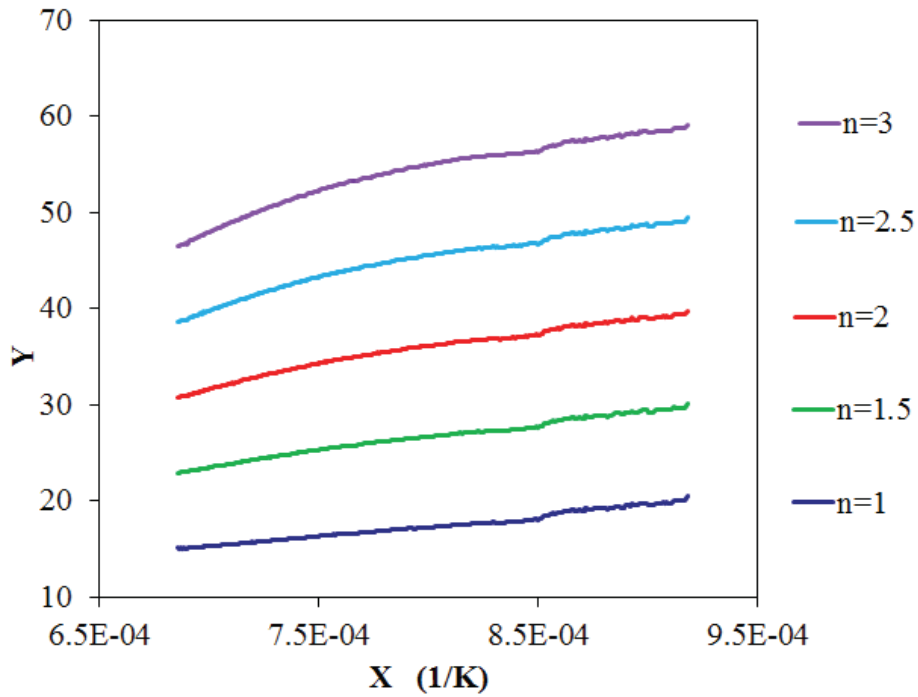


Figure III-15 Détermination de  $A_0$  et  $Q$  par régression linéaire pour différents  $n$ .

Table III-1 Valeurs de  $A_0$  et  $Q$  obtenus pour les différents  $n$  testés.

n	$A_0$ ( $s^{-1}Pa^{-n}$ )	$Q$ (J/mol)
1	8.73E-01	1.79E+05
1.5	3.05E-02	2.39E+05
2	1.07E-03	3.00E+05
2.5	3.73E-05	3.61E+05
3	1.30E-06	4.22E+05

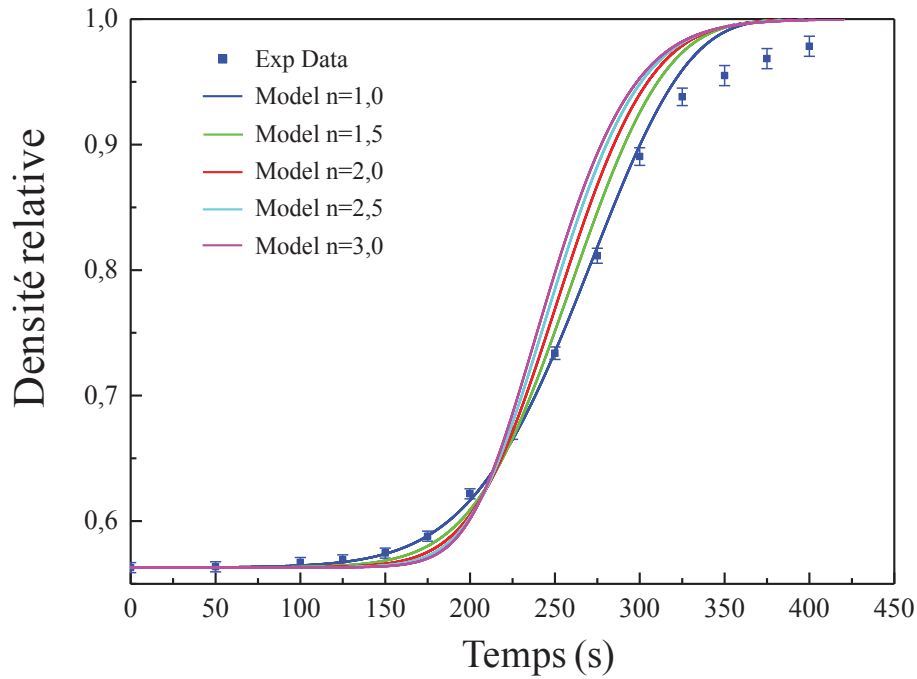


Figure III-16 Comparaison des courbes de densité relative expérimentale et simulées.

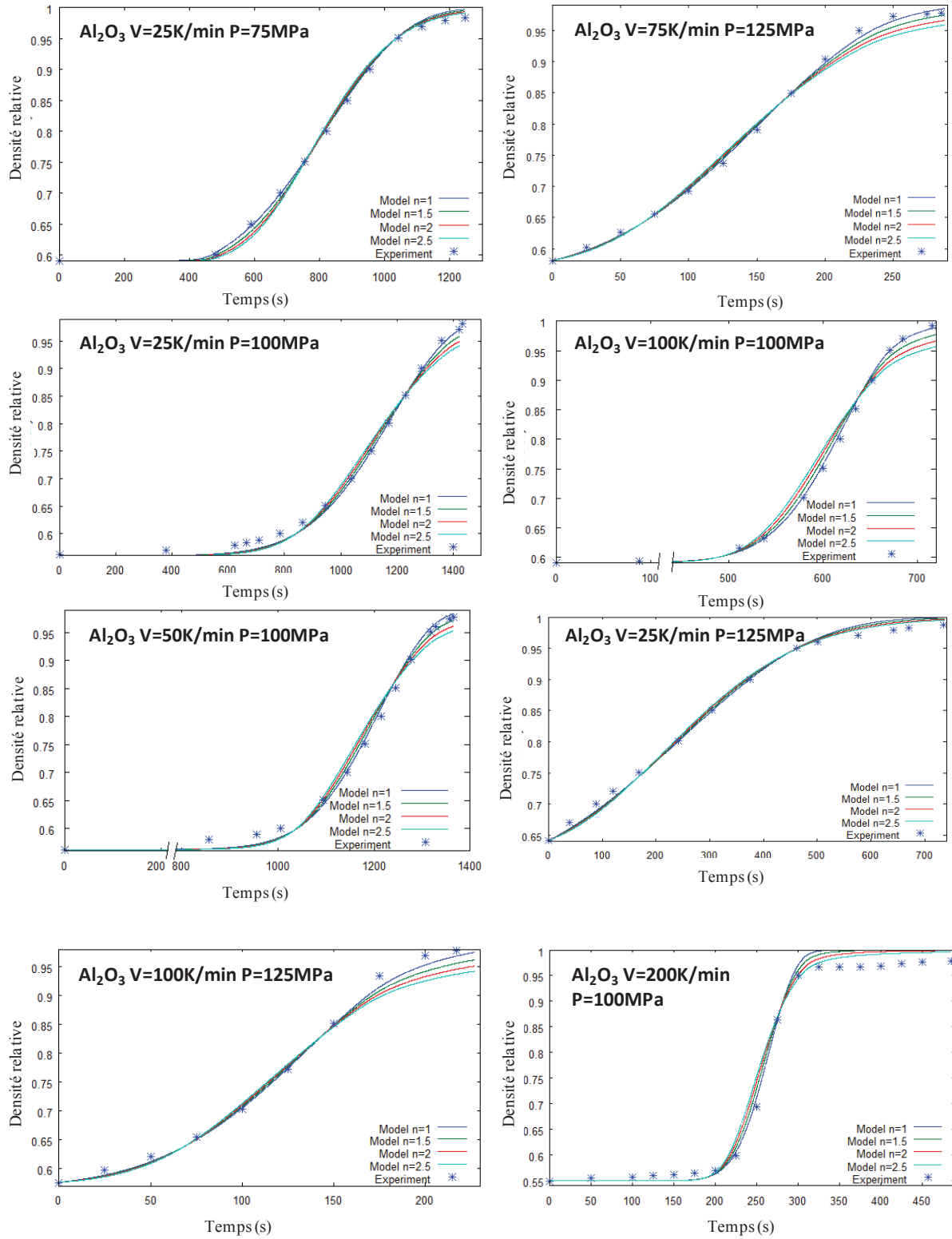
### III.2.2.3 Variation des paramètres en fonction de la vitesse de montée et de la pression

La loi de fluage précédente est obtenue pour une vitesse de montée en température et une pression constante. Or une loi de comportement n'est valable que dans les conditions exactes de son obtention, surtout dans ce type d'approche phénoménologique. Pour permettre de vérifier une éventuelle variation des paramètres de fluage et étendre le modèle de frittage le cas échéant, neuf expériences supplémentaires sont réalisées dans différentes conditions de pression (75-125MPa) et de vitesse de montée (25-200°C/min). Chaque essai a été réalisé avec la méthode de régression linéaire décrite précédemment. Les courbes de densification expérimentales et calculées sont reportées sur la Figure III-17. Tous les essais semblent confirmer un  $n$  égal à 1. Les paramètres  $A_0$  et  $Q$  sont rassemblés dans le Table III-2. Les paramètres de fluage bougent, mais gardent un ordre de grandeur similaire. Pour mieux comprendre leur évolution ils ont été tracés en fonction de la vitesse de montée en température (Figure III-18). Nous constatons que la constante  $A_0$  ainsi que l'énergie d'activation  $Q$  ont tendance à augmenter entre 25 et 100K/min. Dans une approche phénoménologique, nous proposons une expression de la loi de fluage dépendante de la vitesse de montée en température. Le domaine de validité du modèle est choisi pour des vitesses de chauffage comprises entre 25 et 100K/min; des fonctions d'interpolation des termes  $A_0$  et  $Q$  sont utilisées dans ce domaine pour décrire leurs dépendances en fonction

de la vitesse de montée en température. Le modèle n'est pas étendu aux vitesses de montées en température supérieures à 100K/min, car l'expérience à 200K/min (Figure III-18) semble indiquer un changement de régime pour les fortes vitesses de montées qui nécessiterait une autre étude. L'expression des lois de fluage avec prise en compte de l'évolution des paramètres  $A_0$  et  $Q$  en fonction de la vitesse de montée en température prend la forme suivante:

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\epsilon}_{eq} = \frac{1.81 \cdot 10^{-2} \exp\left(2.25 \cdot \frac{\partial T}{\partial t}\right)}{T} \exp\left(\frac{-\left(1.56 \cdot 10^5 + 1.53 \cdot 10^4 \frac{\partial T}{\partial t}\right)}{RT}\right) \sigma_{eq} \quad \text{Pour } P = 75 \text{ MPa} \\ \dot{\epsilon}_{eq} = \frac{-5.49 \cdot 10^{-2} + 5.73 \cdot 10^{-1} \frac{\partial T}{\partial t}}{T} \exp\left(\frac{-\left(1.90 \cdot 10^5 + 2.91 \cdot 10^3 \frac{\partial T}{\partial t}\right)}{RT}\right) \sigma_{eq} \quad \text{Pour } P = 100 \text{ MPa} \\ \dot{\epsilon}_{eq} = \frac{-4.98 \cdot 10^{-2} + 1.20 \cdot 10^{-1} \frac{\partial T}{\partial t}}{T} \exp\left(\frac{-\left(1.43 \cdot 10^5 + 1.92 \cdot 10^4 \frac{\partial T}{\partial t}\right)}{RT}\right) \sigma_{eq} \quad \text{Pour } P = 125 \text{ MPa} \end{array} \right. \quad \text{III-27}$$

avec  $\frac{\partial T}{\partial t}$  la vitesse de montée en température (K/s).



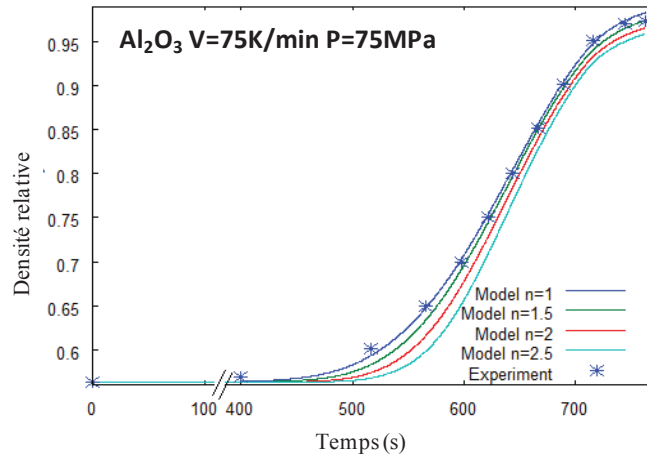


Figure III-17 Courbes de densification expérimentales et calculées pour différentes conditions expérimentales de pression et de vitesses de montées en température.

Table III-2 Valeurs des paramètres de fluage en fonction des différentes conditions expérimentales de pression et de vitesses de montées en température.

Temperature rate (K/min)	P (MPa)	$A_0$ ( $s^{-1}Pa^{-1}$ )	Q (kJ/mol)	n
25	100	2.28E-01	192	1
50	100	3.55E-01	190	1
100	100	9.20E-01	195	1
200	100	1.60E-01	156	1
100	75	8.73E-01	179	1
75	75	2.47E-01	178	1
25	75	4.93E-02	161	1
25	125	2.26E-02	154	1
75	125	3.33E-02	158	1
100	125	1.95E-01	181	1

Les courbes de densité relative calculées par le modèle de frittage avec prise en compte des cinétiques de montée en températures sont reportées sur la Figure III-19. Les erreurs par rapport aux densités relatives expérimentales sont relativement faibles et au maximum de l'ordre de 5% pour l'essai à une pression de 75MPa et une vitesse de montée de 75K/min.

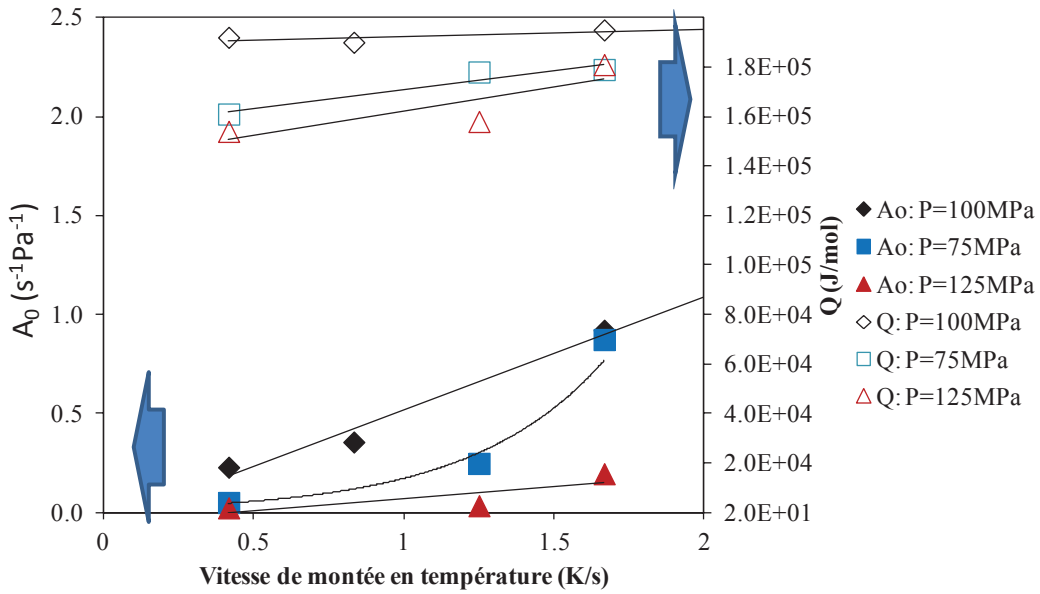


Figure III-18 Évolution des paramètres de fluage  $A_0$  et  $Q$  tracés en fonction de la vitesse de montée en température.

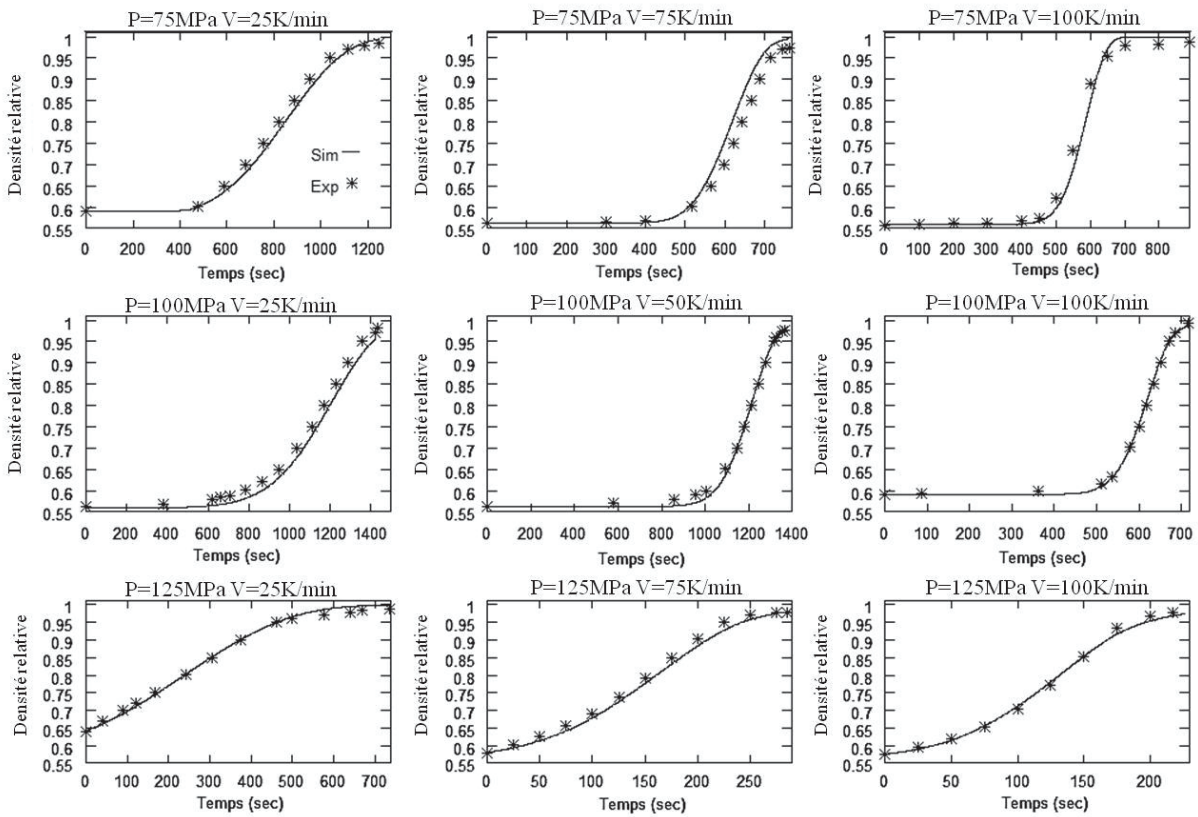


Figure III-19 Confrontation expérimentale du modèle de frittage avec prise en compte de la vitesse de densification.

La présente méthode d'identification des paramètres de fluage permet de modéliser le comportement en frittage des échantillons pour une grande partie de la courbe de densification. Cependant le modèle utilisé fait tendre les densités relatives finales vers une

densification totale alors qu'expérimentalement la densité relative des échantillons semble se stabiliser pour des valeurs proches de 98,7%. Dans la partie suivante de ce chapitre, nous allons étudier l'influence de la croissance granulaire sur la densification en fin de cycle.

#### III.2.2.4 Influence de la croissance granulaire sur le frittage

En première approche, les propriétés de croissance granulaire de l'alumine sont déterminées par étalonnage de la courbe de densité relative en fin de frittage. Le modèle de croissance granulaire proposé par Olevsky et al (Olevsky, Garcia-Cardona, et al., 2012) pour une poudre d'alumine de taille de grain supérieure est utilisé comme base de départ pour l'étalonnage.

Pour rappel cette loi prend la forme suivante:

$$\dot{G} = \frac{k_0}{3G^2} \left( \frac{\theta_c}{\theta_c + \theta} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-Q_G}{RT}\right) \quad \text{III-28}$$

Olevsky introduit la taille de grain G dans la loi de fluage en modifiant le terme de la consistance K de la façon suivante :

$$K = \left( \frac{G}{G_0} \right)^2 \frac{1}{A_0^m} \exp\left(\frac{mQ}{RT}\right) \quad \text{III-29}$$

avec  $G_0$  la taille de grain initiale

La loi de croissance granulaire dépend de la température et de la porosité  $\theta$ .

$$\dot{G} = \frac{0.0007}{3G^2} \left( \frac{0.05}{0.05 + \theta} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{-Q_G}{RT}\right) \quad \text{III-30}$$

avec  $Q_G$  l'énergie d'activation de la croissance granulaire

Seule l'énergie d'activation  $Q_G$  est modifiée pour l'étalonnage des densités relatives de fin de cycle. Le modèle analytique de frittage avec prise en compte de la croissance granulaire est reporté sur la Figure III-20 pour l'essai correspondant à une pression de 75MPa et une rampe de température de 100K/min. Les énergies d'activation sont comprises entre 500 et 540 kJ/mol, plus l'énergie d'activation est élevée, plus la valeur de densité relative finale modélisée tend vers 1. Inversement plus l'énergie d'activation de la taille de grain est faible plus le phénomène de croissance granulaire est élevé et plus bas est la valeur de densité relative finale modélisée. La valeur de  $Q_G$  permettant au modèle de prédire une densité relative finale avec un bon accord expérimental est de 520kJ/mol. Pour cette valeur de  $Q_G$  l'évolution de la taille de grain reporté sur la Figure III-20b prédit un diamètre de grain en fin

de cycle de 2,6  $\mu\text{m}$ . Afin de vérifier que le modèle de frittage corrigé n'est pas qu'un artifice mathématique, mais correspond réellement à un effet de la croissance granulaire sur le frittage, la distribution des tailles de grains en fin de cycle est déterminée pour la comparer à la valeur de 2.6 $\mu\text{m}$  calculée par le modèle étalonné. Le diamètre moyen des grains observés sur l'image MEB de fracture de l'échantillon obtenu en fin le cycle (Figure III-21) est de 2,7  $\mu\text{m}$  avec un écart type sur la distribution de la taille des grains de 1,5  $\mu\text{m}$ .

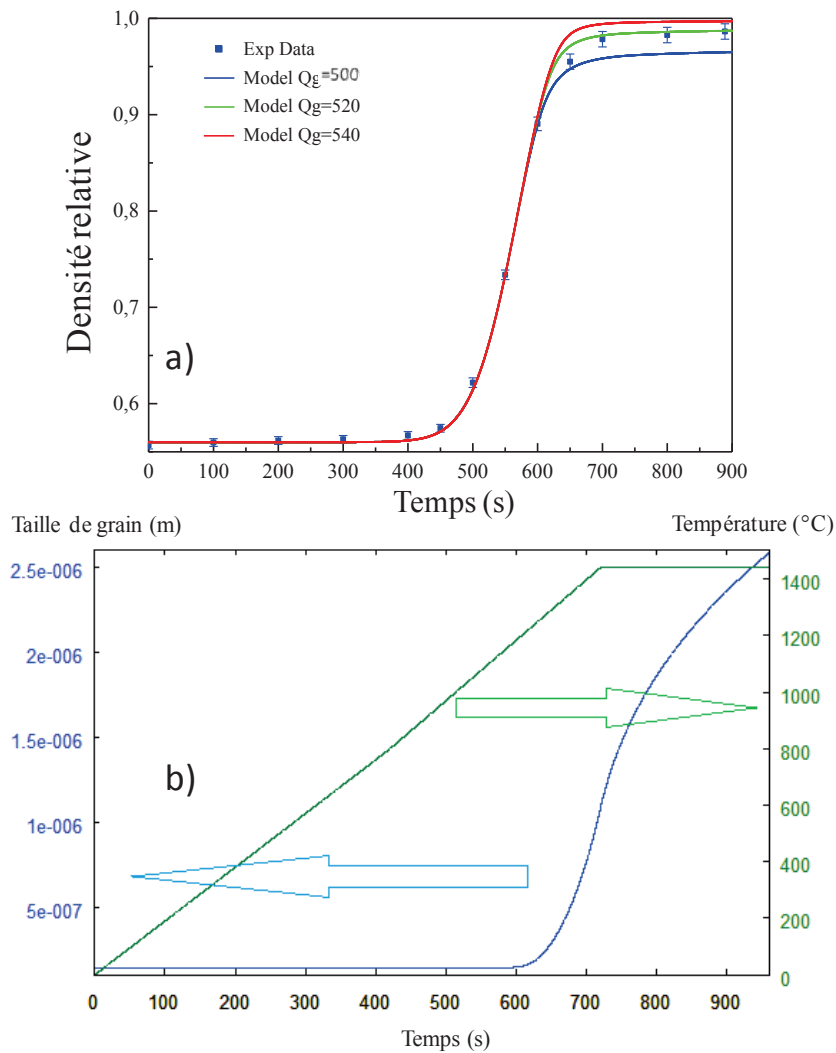


Figure III-20 a) Courbes de densification du modèle de frittage avec prise en compte de la croissance granulaire pour différentes énergies d'activation et expérimentale. b) Évolution du diamètre de grain modélisé pour une énergie d'activation de 520kJ/mol.



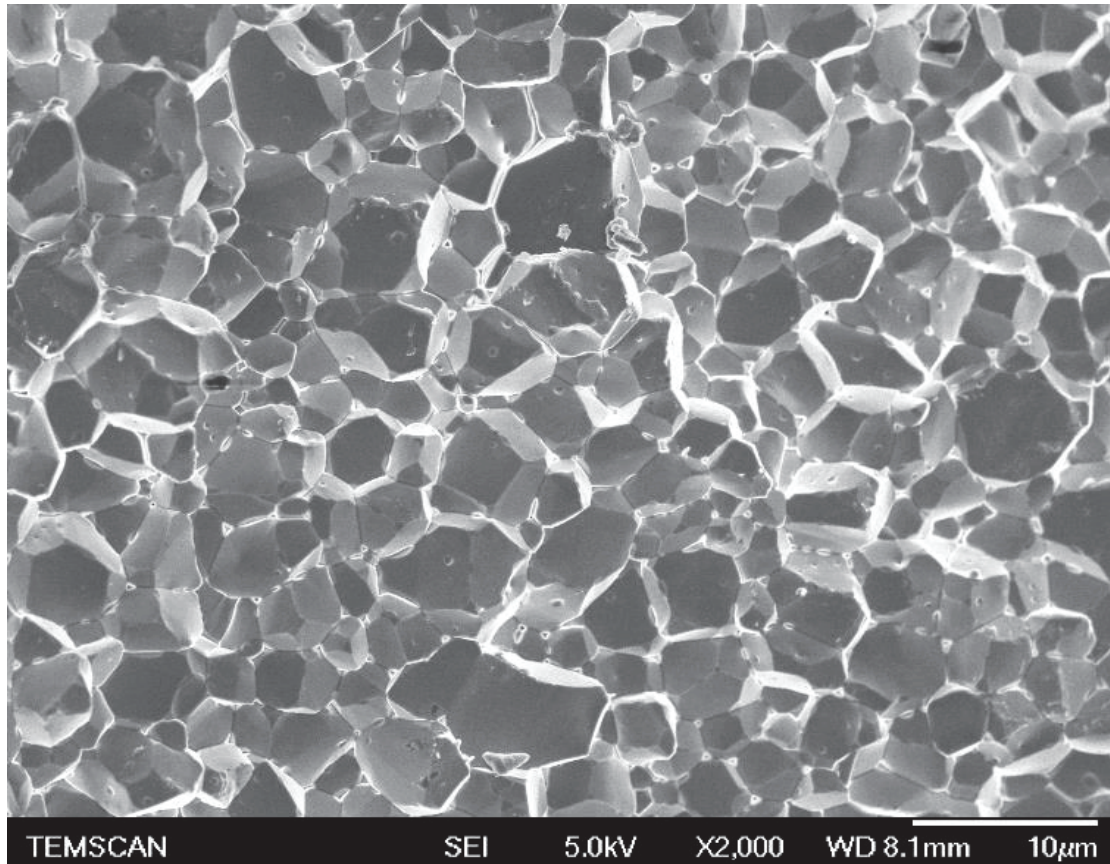


Figure III-21 Image MEB de fracture de l'échantillon obtenue dans l'expérience à 75MPa et 100K/min.

La valeur moyenne expérimentale de taille de grains est donc très proche de la valeur obtenue par le modèle de croissance granulaire étalonné avec la courbe de frittage. La croissance granulaire semble avoir un impact en fin de cycle suffisamment fort pour permettre d'identifier les paramètres de la loi de croissance granulaire avec pour seule information la valeur expérimentale de la densité relative finale.

Pour déterminer avec plus de précision tous les termes de la loi de croissance de grain, des essais isothermes interrompus ont été réalisés à différentes températures. La loi de croissance de grain employée (III-31) est la même que celle utilisée dans l'étude précédente mais le facteur de dépendance de la porosité est supprimé, car nos expériences dans notre domaine d'étude ne nécessitent pas d'inclure la porosité (Besson, 1990).

$$\dot{G} = \frac{k_0 \exp\left(\frac{-Q_g}{RT}\right)}{G^{m_G}} \quad \text{III-31}$$

Avec,  $m_G$  l'exposant de la taille de grain

Les essais expérimentaux sont réalisés dans des moules de diamètre interne de 8mm. Une pression de 100MPa est appliquée durant toute la durée des cycles thermiques. Ces cycles sont composés d'une rampe de température de 100K/min suivies d'un palier de 0, 1, 5 et 15 minutes. Les températures programmées sont 1100, 1200 et 1300°C, les températures des échantillons sont extrapolées à partir des différences des températures moule/échantillon mesurées à part jusqu'à 1200°C, les températures des échantillons sont alors 1305°C, 1439°C et 1575°C. Les images MEB de fracture des 12 échantillons obtenus sont reportées sur la Figure III-22, les tailles de grains moyennes et leurs écarts types sont rassemblés dans la Table III-3.

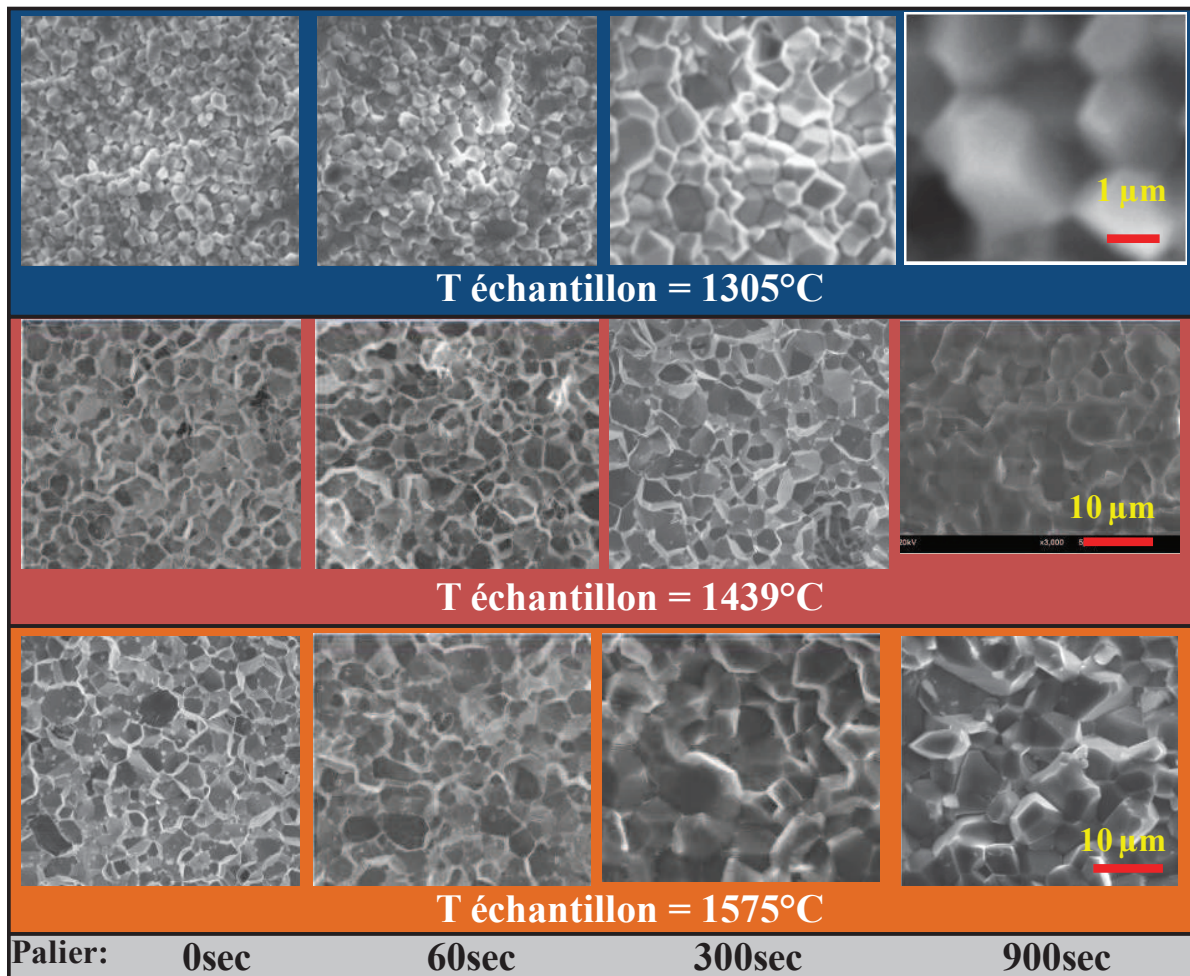


Figure III-22 Images MEB des fractures des échantillons obtenus avec les essais en paliers interrompus.

Les diamètres moyens des grains expérimentaux varient de 0,196 à 7,74 μm, les écarts types augmentent fortement pour les hautes températures, car la répartition des tailles de grains devient assez inhomogène. La méthode de détermination des coefficients  $k_0$  et  $m_G$  et  $Q_G$  utilise les équations de régression linéaire isothermes suivantes:

$$\ln(\dot{G}) = Cste - m_G * \ln(G) \quad \text{III-32}$$

$$\ln(Cste) = \ln(k_0) - \frac{Q_G}{R} * \frac{1}{T} \quad \text{III-33}$$

avec Cste une constante.

La première régression linéaire (Figure III-23a) utilisant l'équation (III-32) révèle des valeurs d'exposant de la taille de grain de 1.89, 2.12 et 2 donc des valeurs autour de 2. Les valeurs des ordonnées à l'origine des courbes pour une valeur imposée de m égale à 2 sont utilisées dans la seconde régression linéaire (Figure III-23b) permettant de révéler des valeurs de  $k_0$  et  $Q_G$  respectivement égales à  $1.11 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$  et  $525 \text{ kJ/mol}$ .

Table III-3 Diamètre moyen de grain pour les essais interrompus (l'écart type ne représente pas l'erreur de mesure mais la distribution de tailles de grains).

Température de palier (°C)	Temps de palier (s)	Diamètre moyen de grain (m)	Ecart type
1305	0	1.96E-07	5.13E-08
	60	2.92E-07	7.06E-08
	300	6.91E-07	1.84E-07
	900	1.24E-06	3.52E-07
1439	0	2.87E-06	9.59E-07
	60	3.18E-06	1.40E-06
	300	3.45E-06	1.43E-06
	900	3.78E-06	1.56E-06
1575	0	3.89E-06	9.52E-07
	60	4.64E-06	1.44E-06
	300	5.65E-06	1.86E-06
	900	7.74E-06	2.41E-06

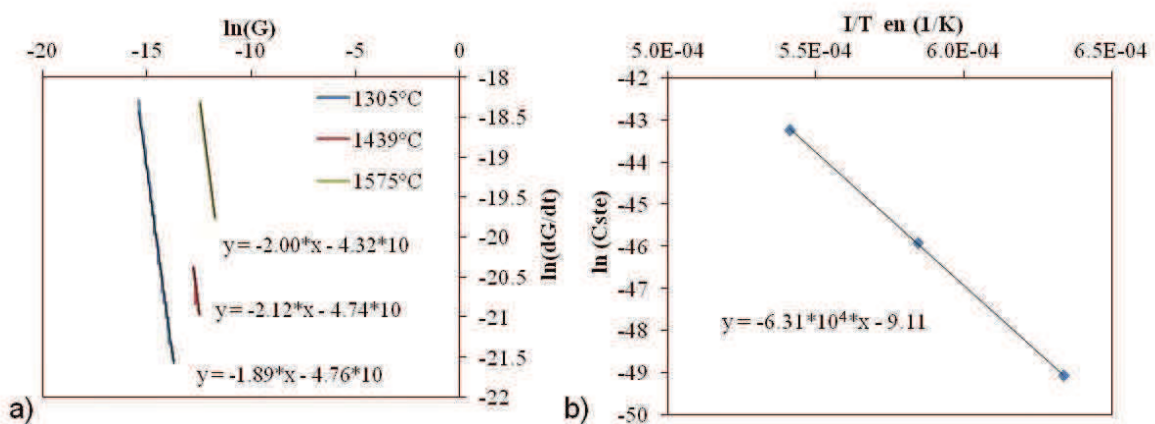


Figure III-23 Identification des paramètres de croissance granulaire a) Détermination de l'exposant  $m_G$  b) Détermination de la constante  $k_0$  et de l'énergie d'activation  $Q_G$ .

La confrontation du modèle de croissance granulaire avec les valeurs expérimentales est reportée sur la Figure III-24. Le premier modèle de croissance granulaire inspiré du modèle d'Olevsky utilisait un exposant  $m_G$  égal à 2 et la valeur étalonée de  $Q_G$  était de  $520 \text{ kJ/mol}$ .

Les valeurs identifiées dans cette étude sont très proches de celles utilisées dans le modèle étalonné avec les densités relatives de fin de cycle de frittage. D'après Bernache-Assollant (Bernache-Assollant et Bonnet, 2005) la valeur de  $m_G$  identifiée correspondant à un mécanisme de croissance granulaire contrôlé par les joints de grains pour le cas d'un matériau pur.

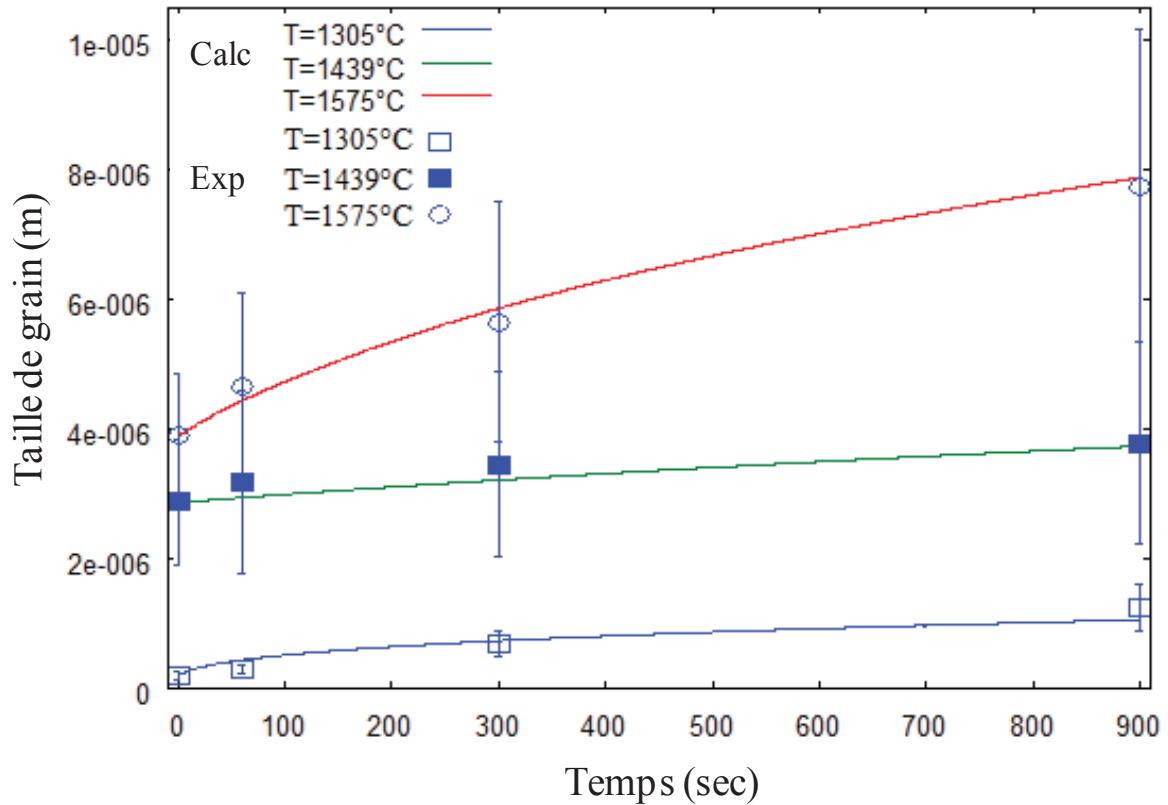


Figure III-24 Valeurs des tailles de grain expérimentales et calculées.

Le nouveau modèle de croissance granulaire est implémenté dans le modèle de frittage et comparé au modèle de frittage sans prise en compte de la croissance granulaire (Figure III-25). Le nouveau modèle de croissance granulaire déterminé à partir d'essais isothermes interrompus permet également de modéliser correctement les valeurs de densités relatives finales. L'effet de ralentissement du taux de densification pour les hautes températures semble donc être attribuable au phénomène de croissance granulaire, car déterminé indépendamment de la courbe de frittage, ce paramètre permet de modéliser avec un bon accord les densités relatives de fin de cycle.

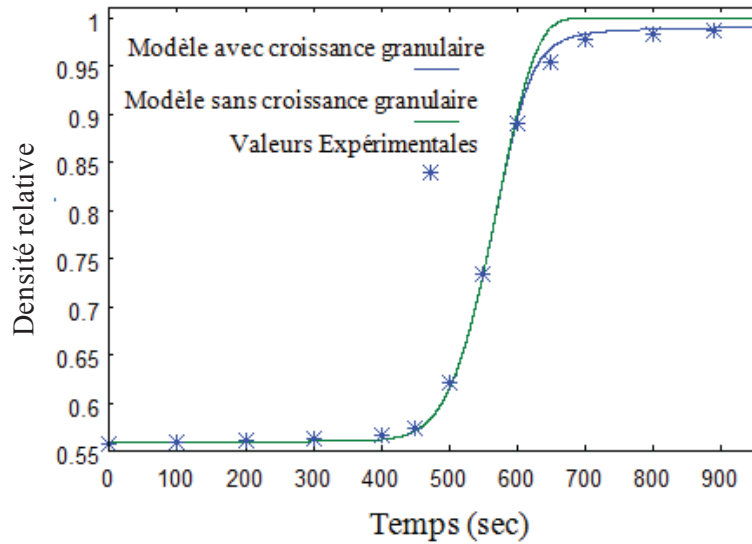


Figure III-25 Modèle de frittage avec et sans prise en compte de la croissance granulaire.

### III.2.2.5 Identification des lois de frittage pour les différentes classes de matériaux

La méthode rapide d'identification des paramètres de frittage semble donner des résultats satisfaisants pour l'alumine. Cette méthodologie est mise à l'épreuve dans ce qui suit pour différentes classes de matériaux dont, la zircone, l'aluminium, le fer, l'alliage de titane TA6V, le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et le polystyrène (PS). Dans une seconde partie une méthode de détermination de l'exposant des contraintes  $n$  basée sur un essai de compression isotherme avec différentes marches de pression, est employée pour compléter la méthode générale d'identification.

#### III.2.2.5.1 Détermination des lois de frittage

L'intégralité des essais sont réalisés en suivant la méthodologie expérimentale décrite précédemment. Les températures de fusion des différents matériaux testés sont très différentes. En conséquence, la pression appliquée, la vitesse de montée en température et la température maximale atteinte sont adaptées aux matériaux étudiés, ces conditions sont rassemblées dans la Table III-4. La méthode de régression linéaire pour l'identification de  $A_0$  et  $Q$  des différentes poudres est employée pour des valeurs de  $n$  variant entre 1 et 5. Les valeurs obtenues sont rassemblées dans la Table III-5. Les courbes de densités relatives modélisées pour chaque valeur de  $n$  ainsi que les valeurs de densités relatives expérimentales sont reportées sur la Figure III-26. Les courbes de densités relatives pour la zircone (TOSOH 4Y-ZrO<sub>2</sub>) suggèrent comme pour l'alumine un mécanisme de fluage par diffusion avec une valeur de  $n$  égale à 1. Pour les matériaux polymères le polyméthacrylate

de méthyle et le polystyrène une valeur de  $n$  égale à 1 semble également correspondre aux valeurs expérimentales. Ce résultat n'est guère surprenant, car les matériaux polymères ont principalement des mécanismes de fluage par écoulement visqueux caractérisés la plupart du temps par des lois linéaires ( $n=1$ ). Pour les matériaux métalliques testés, les courbes de densification montrent deux phénomènes. À froid une faible densification probablement engendrée par un phénomène de déformation plastique apparaît et ne semble pas être prise en compte par le modèle. À haute température le phénomène principal causant une densification importante de l'échantillon est pris en compte par le modèle et correspond à des valeurs de  $n$  supérieures à 1. Pour le fer une valeur de  $n$  proche de 2 semble appropriée, pour le TA6V les courbes indiquent des valeurs de  $n$  comprises entre 2 et 3, pour l'aluminium les courbes de densification indiquent des valeurs élevées de  $n$  proches de 5. Dans les travaux de Frost et Ashby (Frost et Ashby, 1982) sur les cartes de déformations, des valeurs de  $n$  de 4,5 pour le fer et 4,4 pour l'aluminium sont données. Pour l'alliage TA6V (Surand, 2013; Xue et al., 2011) on trouve dans la littérature des valeurs de  $n$  allant de 6 (à basse température 450°C) à 3 (à haute température 950°C). La valeur obtenue pour l'aluminium est élevée et conforme à celle identifiée dans la littérature. Comme nous l'avons vu précédemment pour le cas de l'alliage TA6V la valeur de  $n$  diminue fortement avec la température jusqu'à des valeurs de  $n$  proches de 3 ou 2 (avec nos essais de fluage). La valeur de  $n$  égale à 2 identifiée pour le fer est éloignée des 4,5 recensé dans (Frost et Ashby, 1982) mais ce constat est probablement dû au fait que l'essai d'identification est réalisé pour des fortes températures (922°C, voir plus loin, la comparaison des  $n$  obtenues avec la méthode de Li et al (Li et al., 2012)).

**Table III-4 Conditions expérimentales de pression, rampe de température programmée et température maximale atteinte par l'échantillon pour les divers matériaux testés.**

Poudres	Pression (MPa)	Vitesses de montée (K/min)	Température max (°C)
4Y-ZrO <sub>2</sub>	100	100	1206
Al	50	100	589
Fe	50	100	922
TA6V	25	50	1070
PMMA	25	50	110
PS	20	40	110

**Table III-5 Valeurs identifiées des paramètres  $A_0$  ( $s^{-1}Pa^{-n}$ ) et  $Q$  (kJ/mol) pour les différents matériaux testés.**

n		4Y-ZrO <sub>2</sub>	Al	Fe	TA6V	PMMA	PS
1	Q	221	23.2	49.0	198	52.7	62.5
	$A_0$	6.02E1	9.30E-6	5.66E-5	8.39E1	1.80E1	3.83E2
2	Q	288	33.8	67.5	228	76.6	75.7
	$A_0$	3.13E-4	3.61E-12	1.64E-11	1.00E-4	6.35E-3	3.24E-3
3	Q	356	44.3	86.0	259	101	88.9
	$A_0$	1.63E-9	1.40E-18	4.73E-18	1.20E-10	2.24E-6	2.74E-8
4	Q	423	54.9	104	289	124	102
	$A_0$	8.47E-15	5.45E-25	1.37E-24	1.44E-16	7.88E-10	2.32E-13
5	Q	491	65.5	123	319	148	115
	$A_0$	4.40E-20	2.12E-31	3.95E-31	1.72E-22	2.78E-13	1.97E-18

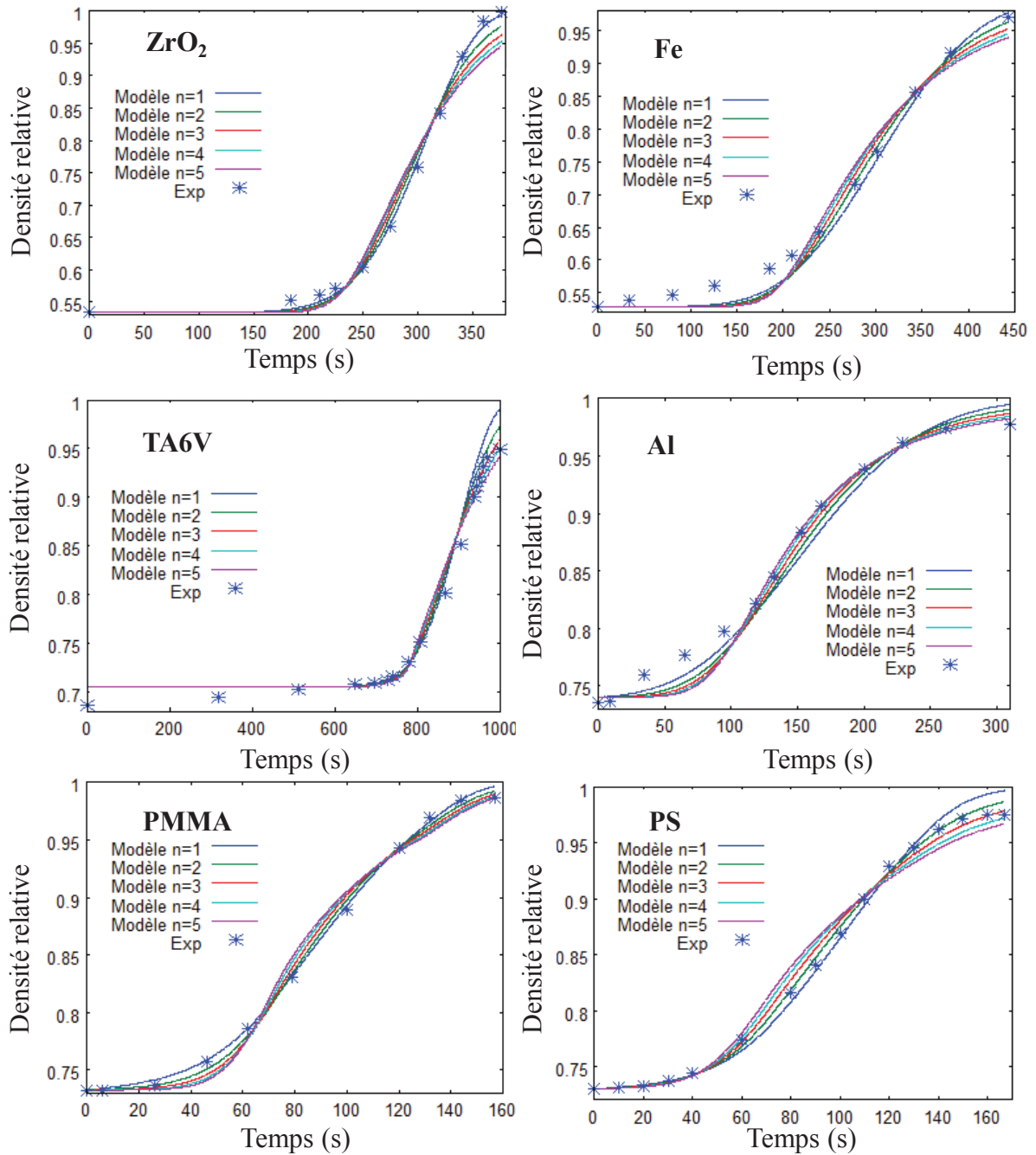


Figure III-26 Courbes de densité relative modélisées pour différentes valeurs de  $n$  et pour différents matériaux.

La méthode de détermination de  $n$  par comparaison des courbes de densités relatives semble permettre d'identifier des valeurs de  $n$  différentes en fonction des matériaux étudiés. Pour vérifier ces valeurs de  $n$ , nous employons dans ce qui suit une méthode proposée par Li , Olevsky et al (Li et al., 2012) permettant de déterminer indépendamment la valeur de  $n$  avec un seul essai SPS.



III.2.2.5.2 Détermination de l'exposant  $n$

La méthode publiée en 2012 par Li, Olevsky et al (Li et al., 2012) utilise un seul essai SPS isotherme avec plusieurs marches de pression. Pour chaque marche de pression  $\sigma_{zi}$ , la déformation et le taux de déformation longitudinal (dans le sens du déplacement)  $\varepsilon_{zi}$  et  $\dot{\varepsilon}_{zi}$  sont déterminés de part et d'autre de la transition de pression. Les indices  $i$  correspondent aux différents paliers de pression. La formule suivante permet de déterminer la valeur de  $n$  à partir des valeurs prises entre deux marches de pression:

$$n = \frac{\ln\left(\frac{\exp(-|\varepsilon_{z2}|)-(1-\theta_0)|\dot{\varepsilon}_{z1}|}{\exp(-|\varepsilon_{z1}|)-(1-\theta_0)|\dot{\varepsilon}_{z2}|}\right)}{\ln\left(\frac{\sigma_{z1}}{\sigma_{z2}} \exp(|\varepsilon_{z2}|-|\varepsilon_{z1}|) \sqrt{\frac{\exp(-|\varepsilon_{z2}|)-(1-\theta_0)}{\exp(-|\varepsilon_{z1}|)-(1-\theta_0)}}\right)} \quad \text{III-34}$$

avec  $\theta_0$  la porosité initiale de l'échantillon.

Les auteurs précisent que si le temps de transition d'une pression à une autre est suffisamment court, on peut considérer que la microstructure n'évolue pratiquement pas, la relation précédente se simplifie alors de la façon suivante :

$$n = \frac{\ln\left(\frac{|\dot{\varepsilon}_{z1}|}{|\dot{\varepsilon}_{z2}|}\right)}{\ln\left(\frac{\sigma_{z1}}{\sigma_{z2}}\right)} \quad \text{III-35}$$

La valeur du taux de déformation est prise à la fin du palier de pression précédant et au début du nouveau. Quatre matériaux de l'étude précédente sont testés, la zircone, le fer, l'alliage TA6V et l'aluminium. Les matériaux polymères ne sont pas étudiés, car ils sont connus pour avoir des mécanismes de fluage par écoulement visqueux ayant souvent des lois linéaires ( $n=1$ ). Pour que le temps de changement de pression soit suffisamment court et ainsi permettre d'utiliser l'expression (III-35), la pression est réglée manuellement. Les changements sont alors que de quelques secondes. La seule exception est pour l'aluminium où la pression a été programmée, le temps de transition de pression est alors réglé au minimum programmable d'une minute. Les cycles thermiques sont composés d'une montée à 100K/min suivie d'un palier dont les températures varient en fonction du matériau étudié : 1100°C pour la zircone, 600°C pour le fer, 850°C pour l'alliage TA6V et 250°C pour l'aluminium. Les expériences ont été réalisées dans des moules en graphite de diamètre interne 8mm. Les courbes de déplacement et de contraintes sont reportées sur la Figure III-27. Les valeurs identifiées de  $n$  et leurs écart-types sont reportées dans la Table III-6 avec pour comparaison les gammes de valeurs de  $n$  identifiées par comparaison des courbes de densité relative dans l'étude précédente.

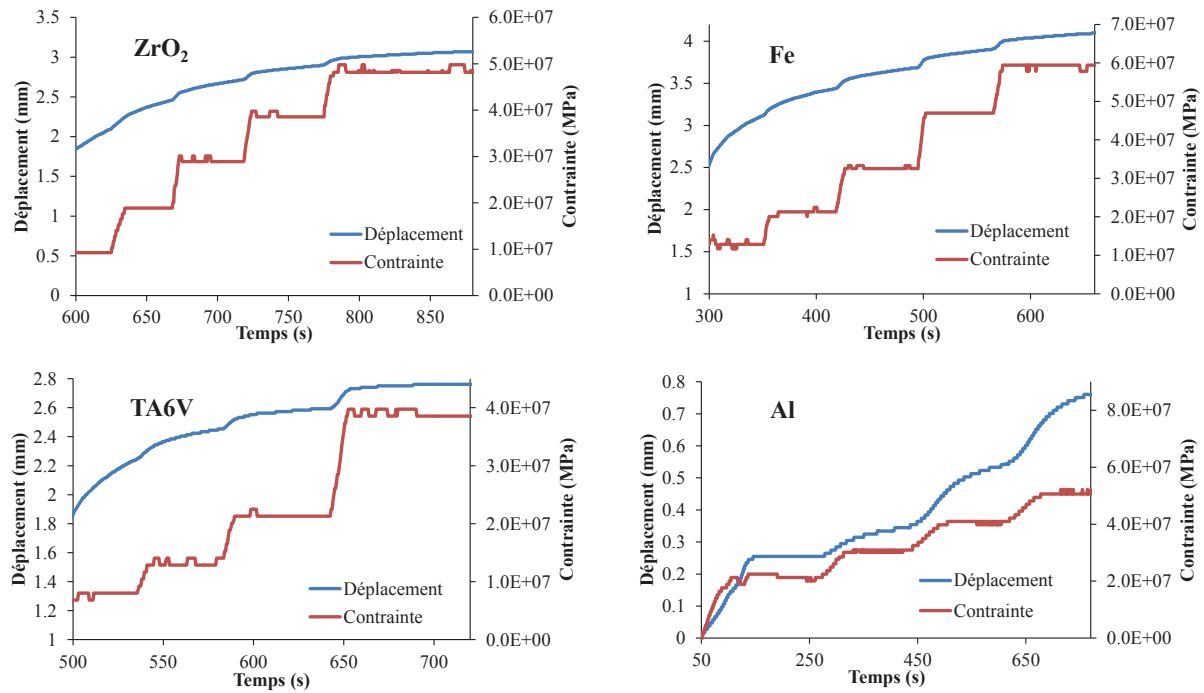


Figure III-27 Courbes de déplacement et de contraintes par la méthode de Li et al.

 Table III-6 Valeurs identifiées du paramètre de fluage  $n$  avec la méthode de Li et al (Li et al., 2012) et par comparaison des courbes de densités relatives (modèle rapide).

Matériaux	$n$ modèle de Li et al	$\pm$	$n$ modèle rapide
4Y-ZrO <sub>2</sub>	1,2	0,9	1
Fe	2,2	0,4	2
TA6V	1,9	0,8	2-3
Al	5,7	0,5	4-5

Les valeurs de  $n$  identifiées sont en bon accord avec les valeurs identifiées par comparaison des courbes de densifications. La courbe de densification contient donc des informations caractéristiques de la non-linéarité de la loi de fluage des poudres étudiées. Il semble donc que les valeurs de  $n$  identifiées grâce à elle sont pertinentes, car elles sont fortement comparables aux valeurs que nous avons identifiées indépendamment avec la méthode de Li et al. La méthode proposée par Li et al est donc intéressante pour permettre d'identifier une valeur  $n$  lorsque la méthode de comparaison des courbes de densité relative échoue. En effet nous avons vu dans ce qui précède que pour quelques essais la différentiation du  $n$  n'est pas évidente, car la plupart des courbes modélisées pour les différentes valeurs de  $n$  sont en bon accord avec les valeurs expérimentales. Le fait d'ajouter un quatrième essai aux trois premiers pour déterminer indépendamment la bonne valeur de  $n$  permet de boucler la méthodologie d'étalonnage des paramètres de frittage.

III.2.2.6 Description de la méthode d'identification rapide des paramètres de fluage appliquée au modèle d'Abouaf

Le modèle d'Abouaf et celui d'Olevsky sont très proches, la méthode rapide d'identification des paramètres de fluage peut être également appliquée au modèle d'Abouaf. Pour déterminer l'expression de l'équation de régression linéaire permettant d'identifier les paramètres de fluage  $A_0$  et  $Q$ , les équations du tenseur des contraintes et du taux de déformation équivalent doivent être exprimées dans le cadre de la compression en matrice réduisant le tenseur des taux de déformations à la forme vue précédemment (III-13):

La forme de l'expression de la loi de comportement du modèle d'Abouaf détaille l'expression du tenseur des taux de déformations en fonction du tenseur des contraintes :

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = A\sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c\underline{\sigma} + fI_1 \mathbb{1} \right) \quad \text{III-36}$$

Cette forme n'est pas intéressante dans notre cas, car les simplifications engendrées par le tenseur des taux de déformations ne sont pas utilisées dans le second membre de l'équation qui fait intervenir la contrainte radiale, une grandeur que l'on ne peut pas mesurer avec notre instrumentation. Pour exprimer comme dans le modèle d'Olevsky, l'expression du tenseur des contraintes en fonction des termes du tenseur des taux de déformations, l'expression du tenseur déviateur  $\underline{s}$  de l'expression (III-36) est détaillée comme suit :

$$\underline{s} = \underline{\sigma} - \left( \frac{1}{3} tr\underline{\sigma} \right) \mathbb{1} = \underline{\sigma} - \frac{1}{3} I_1 \mathbb{1} \quad \text{III-37}$$

En remplaçant l'expression du tenseur déviateur (III-37) dans l'équation (III-36) on obtient :

$$\underline{\dot{\varepsilon}} = A\sigma_{eq}^{n-1} \left( \frac{3}{2} c\underline{\sigma} + I_1 \left( f - \frac{c}{2} \right) \mathbb{1} \right) \quad \text{III-38}$$

Puis en isolant  $\underline{\sigma}$  on obtient :

$$\underline{\sigma} = \frac{2\underline{\dot{\varepsilon}}}{3cA\sigma_{eq}^{n-1}} - I_1 \frac{2}{3c} \left( f - \frac{c}{2} \right) \mathbb{1} \quad \text{III-39}$$

Par ailleurs, on déduit de l'expression de la conservation de la masse et de la partie sphérique de l'expression du tenseur des taux de déformations (III-36) :

$$-\frac{\dot{\rho}}{\rho} = tr(\underline{\dot{\varepsilon}}) = 3AfI_1\sigma_{eq}^{n-1} \quad \text{III-40}$$

En introduisant l'expression (III-40) dans l'équation (III-39) on obtient l'expression du tenseur des taux de déformations en fonction du tenseur des contraintes qui est très similaire à l'expression de la loi de comportement donnée par Olevsky.

$$\underline{\sigma} = \frac{1}{A\sigma_{eq}^{n-1}} \left( \frac{2}{3c} \underline{\dot{\epsilon}} + \left( \frac{1}{9f} - \frac{2}{9c} \right) tr(\underline{\dot{\epsilon}}) \mathbb{1} \right) \quad \text{III-41}$$

Pour rappel, la loi de comportement d'Olevsky en négligeant le terme des tensions de surface des grains est la suivante :

$$\underline{\sigma} = \frac{1}{A\sigma_{eq}^{n-1}} \left( \varphi \underline{\dot{\epsilon}} + \left( \psi - \frac{1}{3} \varphi \right) tr(\underline{\dot{\epsilon}}) \mathbb{1} \right) \quad \text{III-42}$$

L'expression (III-40) se simplifie de la façon suivante dans le cas de la compression uniaxiale en matrice (III-13) et donne :

$$\sigma_z = \frac{1}{A\sigma_{eq}^{n-1}} \left( \frac{2}{3c} \dot{\epsilon}_z + \left( \frac{1}{9f} - \frac{2}{9c} \right) \dot{\epsilon}_z \right) \quad \text{III-43}$$

L'expression du taux de déformation équivalent du modèle d'Abouaf est la suivante :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \sqrt{\frac{2}{3c} \dot{\epsilon}_z + \left( \frac{1}{9f} - \frac{2}{9c} \right) tr(\underline{\dot{\epsilon}})^2} \quad \text{III-44}$$

Avec la simplification (III-13) de la compression uniaxiale en matrice l'expression de  $\dot{\epsilon}_{eq}$  devient :

$$\dot{\epsilon}_{eq} = |\dot{\epsilon}_z| \frac{1}{3} \sqrt{\frac{4}{c} + \frac{1}{f}} \quad \text{III-45}$$

Grâce à l'expression de la loi de fluage on pose:

$$\frac{1}{A\sigma_{eq}^{n-1}} = A^{-\frac{1}{n}} \dot{\epsilon}_{eq}^{\frac{1}{n}-1} \quad \text{III-46}$$

(III-45) (III-46) et (III-43) donnent :

$$|\sigma_z| = A^{-\frac{1}{n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}} \left( \frac{1}{3} \right)^{\frac{1-n}{n}} \left( \frac{4}{c} + \frac{1}{f} \right)^{\frac{n+1}{2n}} \frac{1}{9} \quad \text{III-47}$$

Tous les termes de l'expression des (III-47) sont connus à l'exception de A que l'on cherche et des termes c et f de l'alumine qui apparaissent dans la littérature avec les travaux de thèse de Besson. En isolant le terme A de l'expression (III-47) et en détaillant sa dépendance en température sur la même hypothèse que précédemment on obtient l'expression de régression linéaire suivante permettant l'identification de  $A_0$  et Q :

$$\ln \left( \left( \frac{-|\dot{\varepsilon}_z| \frac{1}{n} \left( \frac{4+1}{c+f} \right)^{\frac{n+1}{2n}}}{9 \left( \frac{1}{3} \right)^{\frac{n-1}{n}} \sigma_z} \right)^n \right) - \ln(T) = \ln(A_0) - \frac{Q}{RT} \quad \text{III-48}$$

La linéarisation prend dans ce cas la forme suivante :

$$Y = a - bx \quad \text{III-49}$$

avec : Y le membre de gauche de l'équation (III-48),  $a = \ln(A_0)$ , la pente  $b = \frac{Q}{R}$ , et  $x = \frac{1}{T}$

L'essai à 75MPa et une vitesse de montée en température de 100K/min utilisé précédemment pour déterminer les paramètres  $A_0$  et Q avec le modèle d'Olevsky est maintenant utilisé avec le modèle d'Abouaf. Les fonctions c et f prises pour l'alumine (III-50, III-51) déterminées expérimentalement par Besson (Besson, 1990) Figure III-28 ont l'expression suivante:

$$f = 33 \frac{(1-\rho)}{(\rho-0.1)} \quad \text{III-50}$$

$$c = 1 + 70 \frac{(1-\rho)}{(\rho-0.1)} \quad \text{III-51}$$

Les courbes de régression linéaire pour des valeurs de n comprises entre 1 et 3 sont reportées Figure III-29. Les valeurs identifiées de  $A_0$  et Q sont reportées dans la Table III-7. Contrairement à l'identification se servant du modèle d'Olevsky, la différentiation du n est plus difficile, car toutes les courbes sont pratiquement droites. La comparaison des courbes de densification Figure III-30 confirme que la différentiation du n est difficile pour ce cas. Pour ce type de résultat, un quatrième essai peut être employé pour permettre de déterminer indépendamment la valeur de n, il est également possible d'effectuer un essai de fluage à partir de l'échantillon dense obtenu. Mis à part ce point, la méthode permet également de déterminer rapidement un jeu de valeurs permettant de modéliser avec un bon accord les points expérimentaux.

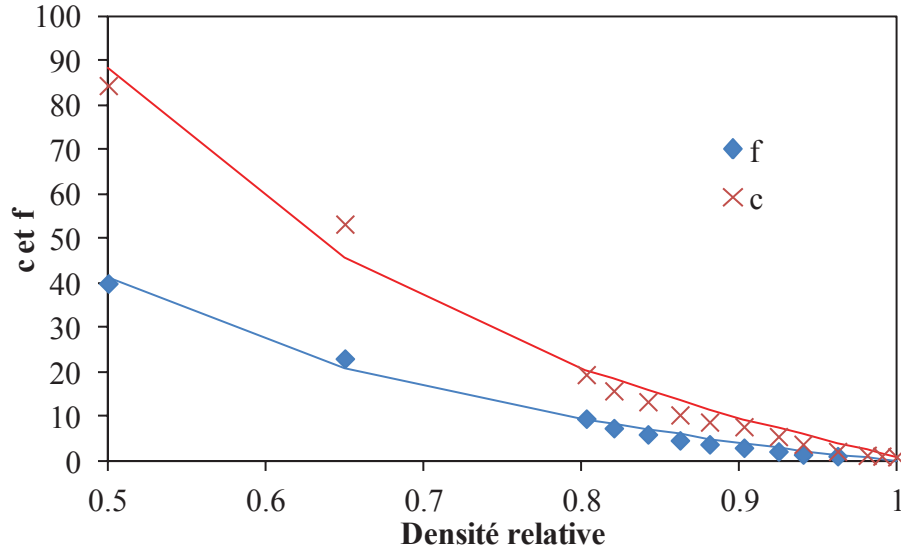


Figure III-28 Valeur des fonctions c et f de Besson (Besson, 1990).

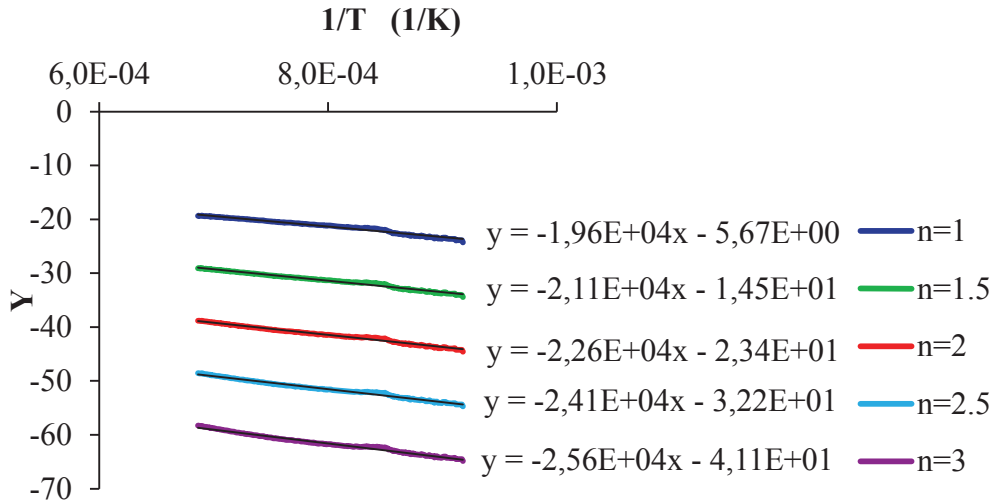


Figure III-29 Courbes de régression linéaire pour l'identification de  $A_0$  et  $Q$  avec le modèle d'Abouaf.

Table III-7 Valeurs identifiées des paramètres  $A_0$  (1/s) et  $Q$  (kJ/mol).

n	$A_0$ ( $s^{-1}Pa^{-n}$ )	$Q$ (J/mol)
1	3.44E-03	1.63E+05
1.5	4.92E-07	1.75E+05
2	7.05E-11	1.88E+05
2.5	1.01E-14	2.01E+05
3	1.44E-18	2.13E+05

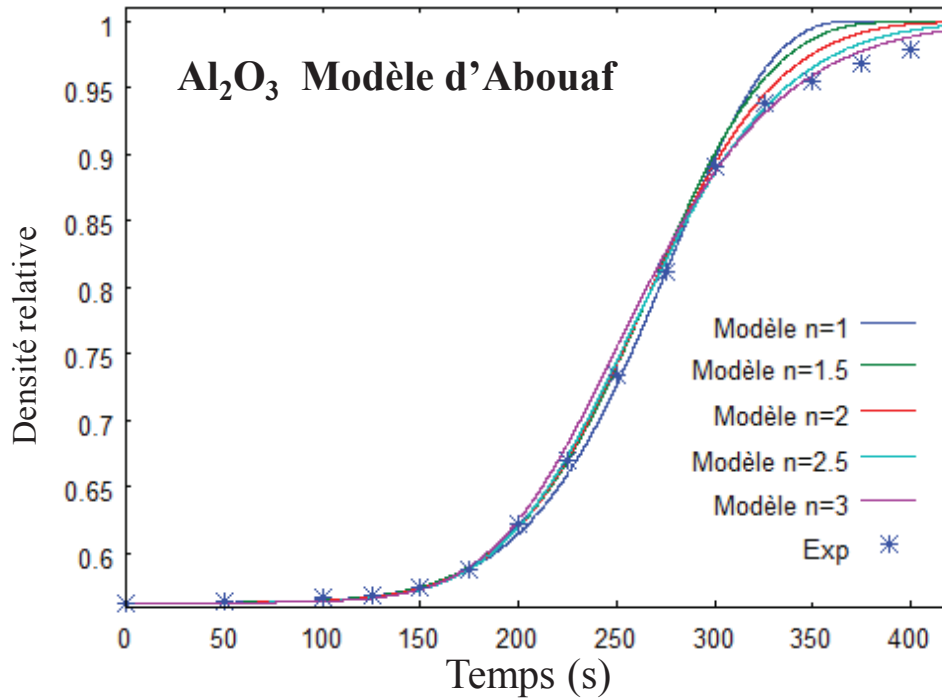


Figure III-30 Densités relatives expérimentales et calculées pour différentes valeurs de n.

### III.2.2.7 Validité de la méthode rapide d'identification des paramètres de frittage par essais SPS

Nous avons pu constater dans tout ce qui précède que la méthode rapide d'identification des paramètres de frittage présente un fort potentiel pour déterminer en quelques essais SPS un modèle de frittage présentant un très bon accord avec les densités relatives expérimentales. Nous allons étudier dans cette dernière partie du chapitre la valeur qualitative que l'on peut attribuer aux paramètres identifiés pour le cas d'un modèle type SPS.

Avec le modèle d'Abouaf le cas du SPS est décrit par l'équation (III-47) reliant la contrainte appliquée au taux de déformation et en conséquence à la densité relative de l'échantillon. Nous pouvons remarquer que les termes c et f sont regroupée dans la somme  $S_{cf}$  suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} |\sigma_z| = A^{-\frac{1}{n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}} \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1-n}{n}} (S_{cf})^{\frac{n+1}{2n}} \frac{1}{9} \\ \text{avec} \quad S_{cf} = \frac{4}{c} + \frac{1}{f} \end{array} \right. \quad \text{III-52}$$

La valeur de cette somme augmente avec la densité relative d'une valeur initiale de zéro pour une densité relative nulle, jusqu'à tendre vers l'infini pour une densification totale.

Quelles que soit les fonctions  $c$  et  $f$  théoriques choisies, il est possible d'écrire la somme  $S_{cf}$  réelle du matériau, comme le produit de la somme des fonctions théoriques  $S_{cfthéorique}$  (connu) par le facteur correctif  $F_{corr}$  (inconnu et dépendant de la densité relative).

$$S_{cf} = S_{cfthéorique} F_{corr} \quad \text{III-53}$$

L'équation (III-47) s'exprime alors de la façon suivante :

$$|\sigma_z| = A^{-\frac{1}{n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}} \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1-n}{n}} (S_{cfthéorique} F_{corr})^{\frac{n+1}{2n}} \frac{1}{9} \quad \text{III-54}$$

On obtient, en réunissant  $A$  et le facteur correctif  $F_{corr}$ :

$$|\sigma_z| = A_{eq}^{-\frac{1}{n}} |\dot{\epsilon}_z|^{\frac{1}{n}} \left(\frac{1}{3}\right)^{\frac{1-n}{n}} (S_{cfthéorique})^{\frac{n+1}{2n}} \frac{1}{9} \quad \text{III-55}$$

Avec  $A_{eq}$  un facteur de consistance équivalent intégrant le terme de consistance de fluage du matériau et le facteur correctif du terme  $S_{cf}$ :

$$A_{eq} = \frac{A}{F_{corr}^{\frac{n+1}{2}}} \quad \text{III-56}$$

La valeur de  $A$  calculée avec la méthode rapide est en fait une valeur de consistance équivalente  $A_{eq}$  et ne peut pas être utilisée en tant que donnée de fluage dense. En revanche pour modéliser la densification du procédé SPS les valeurs de contraintes ( $\sigma_z$ ) et de taux de déformation ( $\dot{\epsilon}_z$ ) ne sont pas affectées car la méthode de régression linéaire identifie à la fois le facteur  $A$  et l'éventuel facteur correctif  $F_{corr}$ . Cette approche est donc intéressante pour modéliser la compaction de poudre. Cependant, il n'est pas recommandé d'utiliser les valeurs de  $A$  identifiées de cette manière pour des applications du type forgeage à chaud de matériaux denses, car ces applications nécessitent de connaître les valeurs de  $A$  et non de  $A_{eq}$ .



### III.3 Conclusion

La simulation MEF du frittage nécessite l'identification de beaucoup de paramètres dont les lois de fluage et de densification de la poudre étudiée. Les méthodes d'identifications classiques utilisent de longues campagnes d'essais mécaniques pour identifier ces paramètres, dont des essais de fluage sur éprouvette dense et poreuse ainsi que des essais de compression isostatique à chaud (CIC). Les essais de fluage sont très répandus et ne constituent pas une grande difficulté, bien qu'ils doivent être réalisés en compression ce qui est plus rare. En revanche la réalisation d'essais CIC instrumentés est beaucoup moins courante et donc plus difficile à réaliser.

Dans cette partie deux approches sont proposées pour déterminer les paramètres de frittage d'une poudre à partir d'une machine SPS utilisée avec différentes configurations.

La première approche consistant à réaliser des essais de fluage avec des éprouvettes cylindriques denses a été menée dans deux conditions de chauffage différentes. L'une en chauffage direct (le courant électrique passe dans l'éprouvette) et l'autre en chauffage indirect (éprouvette électriquement isolée, la chaleur est communiquée de l'outillage extérieurs vers l'éprouvette). Les essais de fluage avec chauffage direct se sont révélés très problématiques, car leur forte sensibilité aux résistances de contact thermiques a causé de forts écarts de température, provoquant un fort effet tonneau des éprouvettes déformées. En revanche les essais de fluage en chauffage indirect sont très concluants, le champ de température de l'éprouvette est beaucoup plus homogène et l'effet tonneau disparaît. Les lois de compactations ont été par la suite déterminées à partir d'essais de fluage poreux et d'essais de compaction uni-axiale en matrice. Le modèle final obtient alors de bons accords avec des essais expérimentaux indépendants.

La première approche est concluante, mais la campagne d'essais est encore assez longue, une méthode plus rapide est proposée pour permettre une alternative moins coûteuse. Cette méthode consiste à poser une hypothèse théorique sur les lois de densification pour réduire les expériences servant à l'identification des paramètres de fluage à de simples essais de compression en matrice en rampe de température. Cette méthode permet d'obtenir à partir de trois essais des modèles avec d'excellents accords des données expérimentales. La méthode a été éprouvée sur les trois classes de matériaux (céramiques, métaux et polymères). L'étude de validité de ce type de modèle montre que cette méthode permet de calculer des paramètres de fluage équivalents. Il s'agit d'une grandeur constituée du paramètre de fluage vraies  $A$  multiplié par un facteur correctif des lois de densification théoriques. Les paramètres de fluage obtenus par la méthode rapide ne sont donc pas

adaptés à l'étude de phénomènes de fluage dense (forgeage), car constitués d'un facteur correctif intrinsèque; par contre l'étude confirme la validité de ces paramètres pour étudier la densification (frittage sous charge).

Nous disposons ainsi de deux méthodes d'identification différentes l'une plus rapide que l'autre mais moins conventionnelle. La méthode rapide ne nécessitant que quelques essais SPS rend la simulation MEF de la densification plus accessible.

Bien sûr, tout cela reste dans le cadre de la loi de Norton mais l'intérêt de la simulation MEF de la densification réside dans la capacité de prédiction et d'optimisation de la densification de poudres par SPS pour des formes complexes.



---

---

## **Chapitre IV. Modélisation du frottement poudre/moule à haute température**

---

---



## IV.1 Introduction

Dans la littérature, la simulation MEF du procédé SPS est en grande partie consacrée à la détermination des gradients thermiques et des effets de formes. La prise en compte de l'effet du frottement entre la poudre et le moule est plus rare. Pourtant, la friction exercée par le moule sur la poudre est connue pour avoir un effet plus ou moins important sur la densification. Plusieurs études sur la compression uniaxiale (Cho et Jeong, 2001; Mondalek, 2012; Ranjit et al., 2012) révèlent que ce phénomène peut entraîner une densification plus importante au niveau des extrémités de l'interface poudre/moule. Si ce phénomène est très marqué, la tenue mécanique des pièces frittées par cette méthode peut être compromise. En outre, ce phénomène peut engendrer une usure importante au niveau des zones de contact concernées sur le moule. Intégrer la simulation du frottement poudre/moule permettrait de développer des outillages adaptés afin de contrôler les effets de ce phénomène (le minimiser ou s'en servir volontairement pour des applications précises).

Dans cette partie nous allons nous consacrer à la simulation du phénomène. Un module du logiciel COMSOL Multiphysics permettant de prendre en compte le frottement existe, mais pour des matériaux aux propriétés mécaniques non linéaires sa mise en œuvre est difficile, car il demande alors des calculs très lourds. Dans un premier temps, le problème de contact est posé dans le cadre du modèle de frittage d'Olevsky ; (Olevsky, 1998; Olevsky, Garcia-Cardona, et al., 2012) il s'agit de déterminer une condition de frontière simulant la friction de la poudre avec le moule. Dans un deuxième temps, avec le modèle d'Olevsky, des simulations de compaction avec différents coefficients de frottement sont menées pour mettre en évidence les effets macroscopiques et locaux du frottement sur la densification. Une dernière partie est consacrée à la mise au point d'une méthodologie permettant d'identifier le coefficient de frottement de l'interface poudre/moule. En effet, les méthodes de détermination classiques (pour le frottement solide/solide) ne peuvent pas être appliquées dans le cas du frottement entre une poudre et une paroi rigide, à très haute température. Une méthode inverse basée sur les déformations engendrées par la friction avec la paroi est envisagée et est mise à l'épreuve sur trois types de contacts poudre/moule.

## IV.2 Généralités sur le frottement

En physique, la friction (ou le frottement) se définit comme une interaction s'opposant au mouvement relatif entre deux systèmes en contact. La contrainte de frottement (Rappaz et al., 1998) (ou contrainte tangentielle)  $\tau$  est classiquement reliée à la contrainte normale  $P_n$  des corps en contact par le coefficient  $\mu_{fi}$  de la façon suivante:

$$\tau = \mu_{fi} P_n \quad \text{IV-1}$$

Avec le modèle de Coulomb, au début du glissement la valeur de  $\mu_{fi}$  est appelée  $\mu_f$  coefficient de frottement. Pour une valeur  $\mu_f = 0$  le contact est glissant. À mesure que le coefficient de frottement augmente le contact tend de plus en plus vers une jonction adhésive des deux corps en contact. Le coefficient de frottement varie entre autre en fonction de :

- La rugosité de surface
- La nature chimique des matériaux en contact, atmosphère
- La présence d'un lubrifiant à l'interface de contact

Pour les matériaux métalliques, on peut également citer le phénomène de grippage étant responsable d'un fort accroissement du coefficient de frottement.

Un autre type de loi de frottement de type Norton peut être utilisée pour des matériaux viscoplastiques (Rappaz et al., 1998). Rappelons d'abord la loi de fluage de Norton :

$$\sigma_{eq} = K \dot{\epsilon}_{eq}^m \quad \text{IV-2}$$

avec,  $\sigma_{eq}$  la contrainte équivalente,  $\dot{\epsilon}_{eq}$  le taux de déformation équivalent,  $m$  l'exposant de sensibilité du taux de déformation et  $K$  la consistance du matériau (une grandeur dépendante de la température).

Dans ce cadre, la loi de frottement viscoplastique de Norton prend la forme suivante (Rappaz et al., 1998):

$$\tau = -\mu_f K |V_g|^{p-1} V_g \quad \text{IV-3}$$

avec,  $p$  un coefficient compris entre 0 et 1, homogène à l'exposant de sensibilité du taux de déformation  $m$  et  $V_g$  la vitesse de glissement relative des deux matériaux en contact.

Cette loi dépend non plus de la contrainte normale (comme dans le modèle de Coulomb) mais de la vitesse de glissement relative  $V_g$ .

Lorsqu'il y a mouvement la contrainte tangentielle  $\tau$  de la loi de Coulomb et celle de la loi viscoplastique sont tracées Figure IV-1 en fonction de la vitesse de glissement relative  $V_g$ .

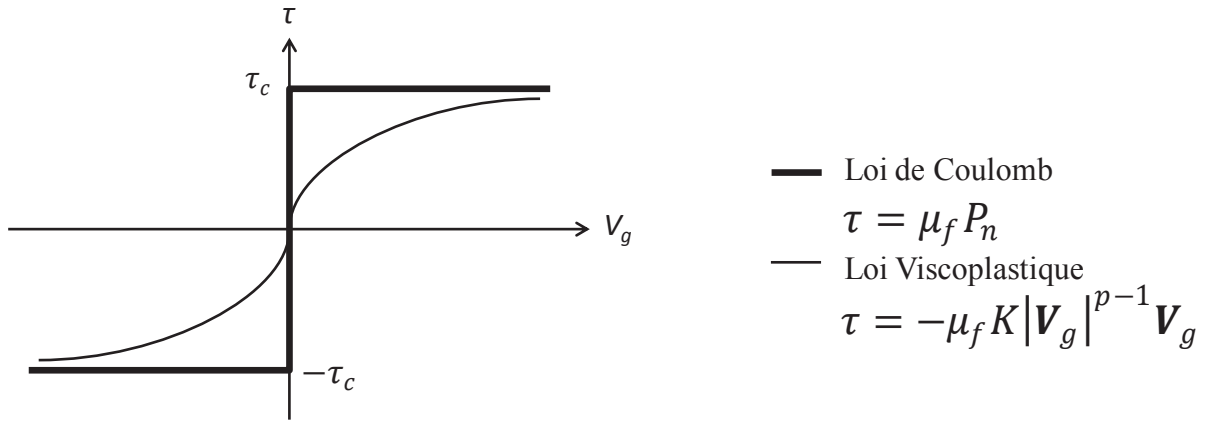


Figure IV-1 Force de frottement des lois de frottement viscoplastique et de Coulomb en fonction de la vitesse de glissement.

Dans la loi de Coulomb, le glissement n'apparaît que lorsque la contrainte tangentielle  $\tau$  atteint la contrainte de seuil de glissement  $\tau_c$ . Une fois le glissement déclenché la contrainte tangentielle est astreinte à conserver la valeur de  $\tau_c$ . À l'inverse la loi de frottement viscoplastique est une loi sans seuil, la contrainte tangentielle augmente à mesure que la vitesse de glissement augmente jusqu'à tendre vers une valeur seuil.

Les calculs numériques sont beaucoup plus robustes avec les lois sans seuils, car elles ne présentent pas de discontinuité. Ces dernières pouvant faire diverger la résolution des calculs itératifs. C'est pourquoi nous choisissons la loi de frottement viscoplastique sans seuil pour notre étude du frottement.

### IV.3 Simulation MEF du frottement

Dans un premier temps, le modèle de frottement utilisé dans le cadre du modèle compaction d'Abouaf est adapté au modèle d'Olevsky. Puis l'effet du frottement est étudié pour déterminer théoriquement son impact sur la densification. Plusieurs coefficients de frottement sont étudiés.

#### IV.3.1 Détermination théorique de l'expression de la condition de frontière

Dans les travaux de thèse de P. Mondalek (Mondalek, 2012) le frottement est introduit avec la loi viscoplastique de deux manières, à l'aide d'une condition de frontière et par une couche mince de consistance moindre. Avec le modèle d'Abouaf l'expression de la contrainte tangentielle prend la forme suivante (Jinka et al., 1997; Mondalek, 2012):

$$\tau = -\mu_f K c^{\frac{m+1}{2}} |V_g|^{m-1} V_g \quad \text{IV-4}$$

avec,  $c$  un des termes de la loi de densification.



Si l'on considère une couche mince d'épaisseur  $e$  à l'interface de contact l'expression de la contrainte tangentielle devient alors:

$$\tau = -\frac{1}{e^m} K C^{-\frac{m+1}{2}} |V_g|^{m-1} V_g \quad \text{IV-5}$$

L'expression du coefficient de frottement prend la forme suivante:

$$\mu_f = \frac{1}{e^m} \quad \text{IV-6}$$

Le taux de déformation de cisaillement au niveau de l'interface de contact peut être déterminé par l'hypothèse sous-jacente d'une couche interfaciale d'épaisseur  $e$ . Le tenseur du taux de déformation au niveau de est donné par:

$$\underline{\dot{\epsilon}} \equiv \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{|v_g|}{2e} \\ 0 & \frac{|v_g|}{2e} & 0 \end{pmatrix} \quad \text{IV-7}$$

Pour rappel, le taux de déformation équivalent  $\dot{\epsilon}_{eq}$  et le tenseur des contraintes du modèle d'Olevsky s'expriment de la façon suivante:

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{1}{\sqrt{1-\theta}} \sqrt{\varphi \dot{\gamma}^2 + \psi \dot{\epsilon}^2} \quad \text{IV-8}$$

$$\underline{\sigma} = \frac{\sigma_{eq}}{\dot{\epsilon}_{eq}} \left( \varphi \underline{\dot{\epsilon}} + \left( \psi - \frac{1}{3} \varphi \right) tr(\underline{\dot{\epsilon}}) \mathbb{1} \right) \quad \text{IV-9}$$

avec,  $\theta$  la porosité,  $\varphi$  et  $\psi$  des fonctions dépendantes de la porosité,  $\mathbb{1}$  le tenseur identité,  $\dot{\epsilon}$  et  $\dot{\gamma}$  des invariants du tenseur du taux de déformation définis comme suit:

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_x + \dot{\epsilon}_y + \dot{\epsilon}_z \quad \text{IV-10}$$

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2(\dot{\epsilon}_{xy}^2 + \dot{\epsilon}_{xz}^2 + \dot{\epsilon}_{yz}^2) + \frac{2}{3}(\dot{\epsilon}_x^2 + \dot{\epsilon}_y^2 + \dot{\epsilon}_z^2) - \frac{2}{3}(\dot{\epsilon}_x \dot{\epsilon}_y + \dot{\epsilon}_x \dot{\epsilon}_z + \dot{\epsilon}_y \dot{\epsilon}_z)} \quad \text{IV-11}$$

En introduisant les simplifications du tenseur du taux de déformation (IV-7) à l'interface de contact dans (IV-10), (IV-11) puis (IV-8) on obtient:

$$\dot{\epsilon}_{eq} = \frac{|v_g|}{e} \sqrt{\frac{\varphi}{2(1-\theta)}} \quad \text{IV-12}$$

En introduisant (IV-12) dans la composante de cisaillement de (IV-9) à l'interface et avec (IV-6) et compte tenu du fait que  $\tau$  et  $V_g$  sont opposés, on obtient l'expression de la contrainte tangentielle de frottement pour le cas du modèle d'Olevsky:

$$\tau = -\mu_f K \frac{1}{2} \frac{\varphi^{\frac{m+1}{2}}}{(2(1-\theta))^{\frac{m-1}{2}}} |V_g|^{m-1} V_g \quad \text{IV-13}$$

Cette expression est utilisée pour définir les propriétés de frontières de frottement des corps en contact.

#### IV.3.2 Mise en évidence de l'effet du frottement sur la densification par la simulation

Les simulations en éléments finis ne prennent en compte que l'échantillon de poudre de géométrie cylindrique (diamètre de 20mm et hauteur initiale de 10mm orientée selon z). La face inférieure a son déplacement selon z fixé (compression en matrice non flottante), une pression constante de 100MPa est appliquée sur la face supérieure (Figure IV-2). Le moule est modélisé par une condition de non pénétration appliquée sur les surfaces latérales (cette condition maintient la poudre dans le cylindre initial). La condition de friction est également introduite au niveau de la surface latérale grâce à l'expression de la contrainte tangentielle déterminée précédemment (IV-13). Une rampe de température de 100K/min est imposée sur tout le volume de l'échantillon jusqu'à une température de 1400°C.

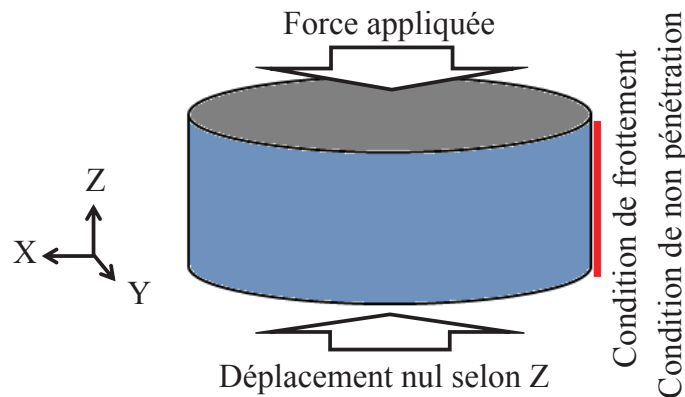


Figure IV-2 Emplacement des conditions aux limites pour les simulations d'un échantillon de poudre cylindrique.

Les premières simulations sont effectuées avec différents coefficients de frottement allant de 0,1 à 0,7. Les courbes de déplacement simulées sont reportées Figure IV-3a, ces courbes montrent que l'augmentation du coefficient de frottement se traduit par une diminution du déplacement. La friction poudre/moule semble avoir un effet significatif sur la densification. Ce résultat est assez intuitif étant donné que la contrainte tangentielle de frottement s'oppose au déplacement causé par la densification de la poudre. Le champ de déplacement en coupe ainsi que le champ de densité relative simulés pour chaque coefficient de frottement sont reportés Figure IV-3b. Comme indiqué dans la littérature, la zone de contact proche des pistons présente localement une densification supérieure. À l'inverse, la zone de

contact proche du piston du bas (fixe) est moins dense que le reste de l'échantillon. L'interprétation de ce phénomène est directement liée à la contrainte tangentielle de frottement. Au niveau de la zone supérieure de l'interface de contact, la vitesse de glissement du contact est maximale. La contrainte tangentielle générée à cet endroit est donc elle aussi maximale. Au niveau du contact avec le piston inférieur, le déplacement est nul tout comme la contrainte tangentielle. Le frottement est la cause d'un état de contrainte local supplémentaire au niveau de l'interface supérieure. La matière est plus retenue au niveau de l'interface de contact latérale qu'au cœur de la pastille, ce phénomène engendre un effet d'accumulation de matière au niveau de la zone du contact latéral supérieur, cette zone présentant un déplacement et un état de contrainte maximal.

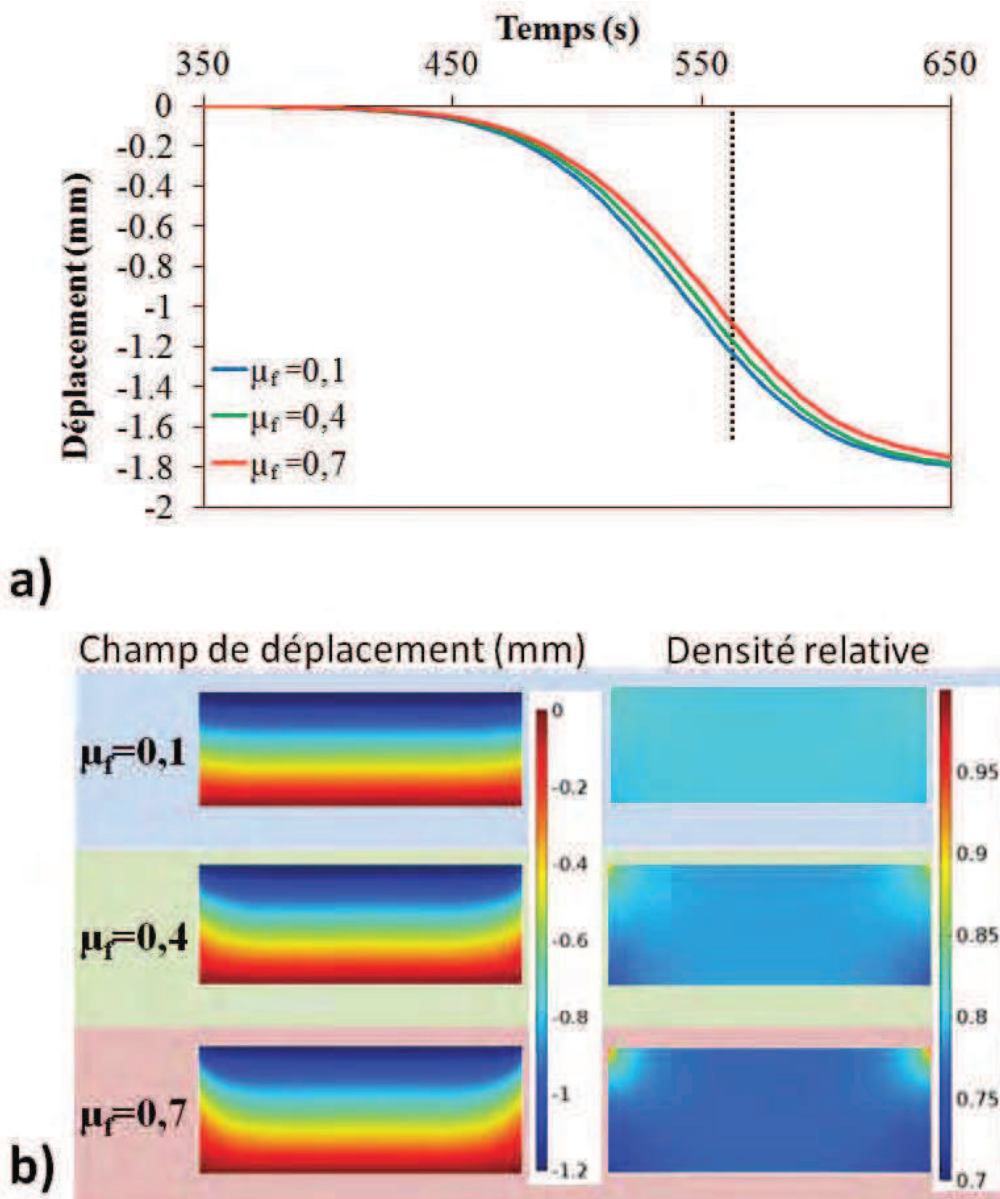


Figure IV-3 Simulation de la densification d'un échantillon cylindrique avec différents coefficients de frottement a) courbes de déplacement b) champ de déplacement et de densification à 570s.

L'effet de retenue de matière au niveau du contact en friction se traduit par une courbure importante des lignes de champ de déplacement d'autant plus importante que le coefficient de frottement est grand.

Dans les travaux de thèse de P. Mondalek (Mondalek, 2012), une détermination du coefficient de frottement est menée par comparaison au champ de densité relative expérimental avec le champ de densité relative simulé pour différentes valeurs de coefficient de frottement. Le champ de densité relative expérimental est déterminé par analyse de l'image d'une pastille coupée et polie. Dans le cadre de notre étude sur l'alumine à taille de grain de 0,14 $\mu\text{m}$ , il est impossible d'obtenir une vue d'ensemble de la pastille tout en ayant un grandissement permettant de voir l'état de porosité de l'échantillon. Nous avons décidé de passer par une comparaison de la déformation du champ de déplacement expérimental avec la déformation du champ de déplacement simulé pour plusieurs coefficients de frottement. Au vu des différences observées sur les champs de déplacements simulés Figure IV-3b, ils permettent une identification du coefficient de frottement.

#### **IV.4 Caractérisation expérimentale du frottement poudre/moule**

##### *IV.4.1 Procédure expérimentale*

Le champ de déplacement expérimental est révélé par l'introduction de fines couches de poudre de graphite intercalées à différentes hauteurs au moment du chargement de la poudre. L'alumine étant blanche (ou translucide) à l'état fritté, les couches de graphites apparaissent après le frittage sous forme de lignes noires sur un fond blanc. En fonction du coefficient de frottement de l'interface de contact, ces lignes apparaîtront plus ou moins courbées.

Les simulations ont les déplacements de la face inférieure nuls, il s'agit d'une configuration de compression simple effet (matrice non flottante). Les configurations de frittage SPS classiques sont généralement en compression double effet, deux pistons appliquent la pression par le dessus et le dessous de la pastille, le déplacement du moule n'étant pas fixé (matrice flottante). Dans cette configuration la vitesse de glissement au niveau du contact est nulle à mi-hauteur de pastille et il est maximal au niveau des contacts de glissement près des pistons en haut et en bas. Le cas d'une configuration simple effet représente donc le comportement de la moitié supérieure de la pastille en configuration double effet où les zones de fortes densifications sont situées aux extrémités du contact de glissement proche des pistons du haut et du bas.

Pour l'identification du coefficient de frottement, la configuration simple effet est choisie afin de maximiser les effets visibles du frottement dû aux vitesses de glissement qui à hauteur d'échantillon égales sont amplifiées (la vitesse de glissement est plus importante lorsqu'elle est appliquée sur toute la hauteur de la pastille au lieu de seulement la moitié pour la configuration double effet). Pour obtenir expérimentalement une telle configuration (simple effet) sans perturber le champ de température, des cales en graphite sont introduites entre l'entretoise du bas et le moule. Ainsi, seul le piston du haut subit un déplacement au cours du frittage (matrice non flottante). Pour que le courant ne passe pas par les cales en graphite, une couche isolante électrique de nitrure de bore est appliquée sur une des faces de chaque cale. La géométrie finale souhaitée est un cylindre d'alumine dense de diamètre 20mm et de hauteur avoisinant les 5 mm (Figure IV-4).

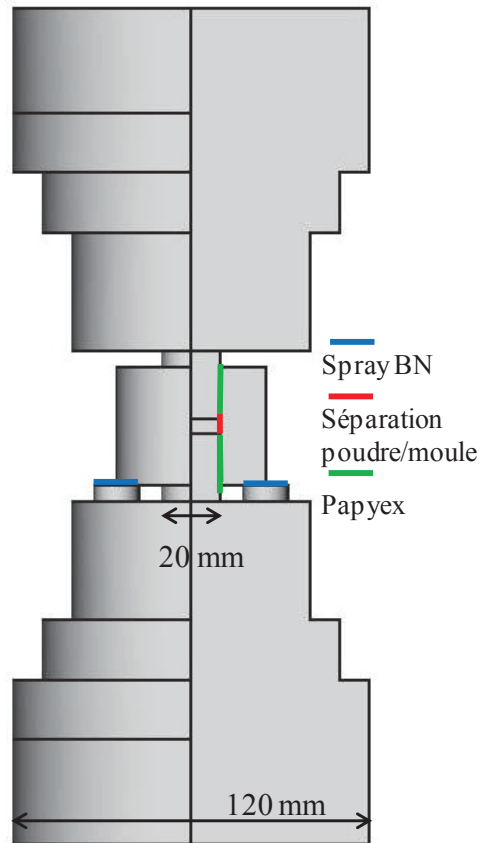


Figure IV-4 Géométrie employée pour les essais d'identification du coefficient de frottement.

Trois types d'interfaces poudre/moule sont étudiées, poudre/spray BN/moule, poudre/spray graphite/moule et poudre/papyex/moule (Figure IV-5). Ces trois types d'interfaces sont très largement utilisés, la comparaison de leur champ de déplacement expérimental permettra de déterminer leurs sensibilités au phénomène de frottement et par conséquent leurs efficacités en matière d'homogénéité de densification.

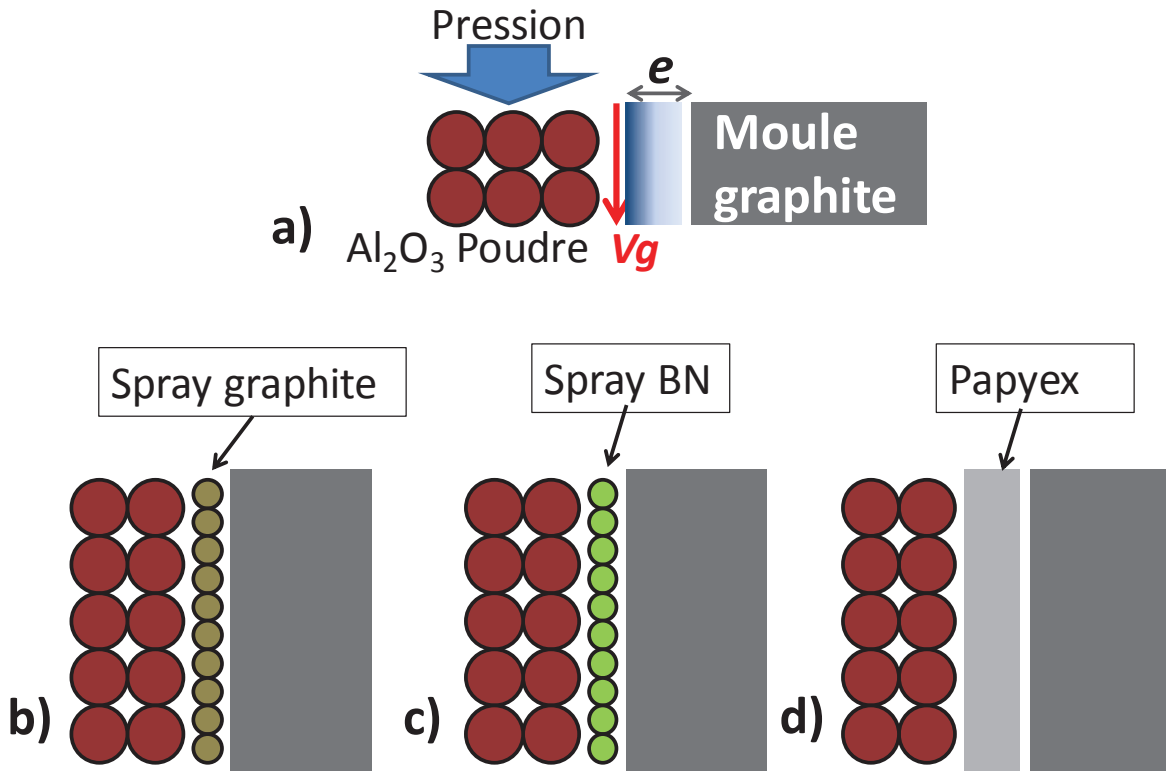


Figure IV-5 a) interface poudre/moule avec séparateur b) spray graphite c) spray BN d) papyex.

Les expériences ont été réalisées en rampe de montée en température de 100K/min avec une pression constante de 100MPa.

#### IV.4.2 Identification du coefficient de frottement

Les photographies en coupes des pastilles obtenues sont positionnées Figure IV-6 en face de leur coefficient de frottement. Ce positionnement est déterminé en fonction de la courbure apparente du champ de déplacement expérimental avec le champ de déplacement simulé dans les mêmes conditions. Étant donné la faible courbure des couches de graphite marqueurs, les coefficients de frottement testés par la simulation sont plutôt faibles et compris entre 0 et 0,12 avec un pas de 0,02. L'expérience avec séparateur de spray graphite possède la courbure des lignes de déplacement expérimentale la plus élevée des trois interfaces testées. Le coefficient de frottement est situé vers 0,1 ce qui reste relativement faible. L'expérience avec spray de nitrure de bore (BN) possède une moindre courbure du champ de déplacement, mais tout de même assez proche de celle observée pour le spray graphite. Le coefficient de frottement est situé vers 0,08. En revanche, l'expérience avec feuille de graphite (papyex) est très différente, les couches de graphite marqueurs apparaissent pratiquement rectilignes. Cela suggère que le champ de déplacement (et par conséquent la densification) est uniforme en tout point de l'échantillon. Le coefficient de frottement est donc proche d'une valeur nulle. Outre les avantages pour le démoulage et

l'amélioration des contacts électriques, l'utilisation du papyex est donc très intéressante pour s'affranchir des hétérogénéités de densification causées par le frottement poudre/moule.

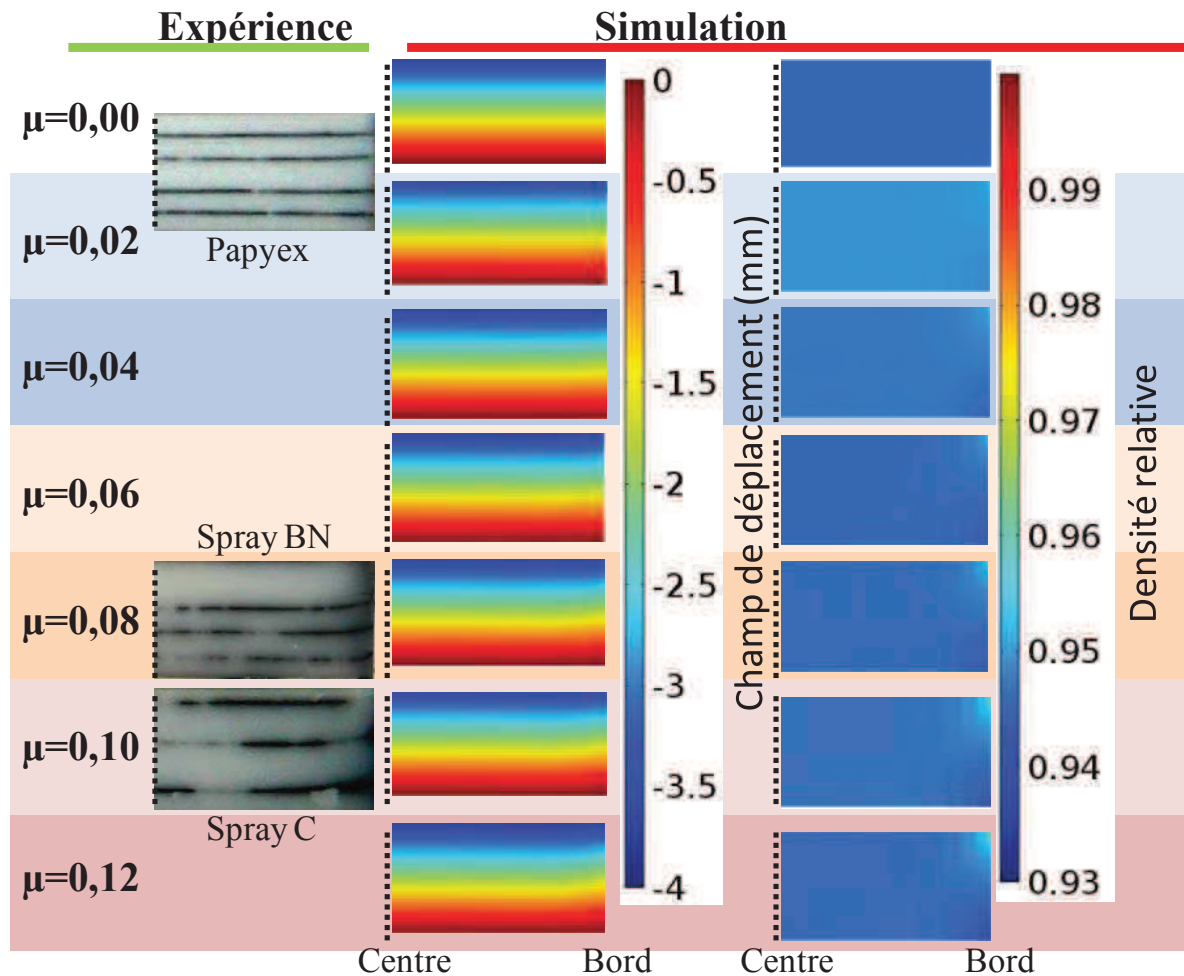


Figure IV-6 Détermination des coefficients de frottement par comparaison de la courbure des champs de déplacement expérimentaux/simulés.

L'hypothèse que nous avançons pour expliquer la très faible valeur du coefficient de frottement de l'interface avec papyex est que le glissement entre la poudre et le moule est facilité par le fait que cette interface est double. Cette interface est en effet constituée d'un contact poudre/papyex et d'un contact papyex/moule. Le contact papyex/moule est un contact solide/solide très lisse donc moins rugueux que le contact poudre/solide. Le papyex fait donc office de matériau tampon entre la poudre et le moule et permet un meilleur accompagnement du déplacement de la poudre au cours du frittage de celle-ci, on peut en quelque sorte le voir comme un lubrifiant solide.

## IV.5 Conclusion

La simulation a démontré que la friction entre la poudre et le moule peut générer de forts gradients de densité relative. Pour tester la sensibilité des interfaces de contact les plus courantes à ce phénomène de frottement, des tests expérimentaux visant à révéler les courbures du champ de déplacement engendré par le frottement ont été réalisés pour une poudre d'alumine. L'ensemble des contacts testés ont des sensibilités au frottement relativement faibles. Les écarts de densités relatives estimés à partir des champs de densités relatives simulés pour les coefficients de frottement correspondants sont au maximum de l'ordre de 3%. Les interfaces avec spray graphite ou spray BN possèdent une courbure de leur champ de déplacement situant leurs coefficients de frottement respectifs à 0,08 et 0,1. L'interface avec papyex indique un coefficient de frottement proche du contact parfait. La principale explication avancée pour expliquer ce constat est que le contact est double. L'accompagnement du déplacement de la poudre est facilité par le papyex celui-ci étant une couche déformable.

Remarquons que le papyex qui permet un démoulage facile, de meilleurs contacts électriques permet également comme le montre cette étude, une meilleure homogénéité de la densification (pas de phénomènes de frottement).





---

---

## **Chapitre V. Voies d'optimisations possibles de la technologie SPS**

---

---



## V.1 Introduction

Dans les chapitres précédents, nous avons étudié et développé des méthodes permettant l'identification de paramètres tels que les résistances de contacts électriques et thermiques présentes aux différentes interfaces de l'outillage SPS et les paramètres permettant de décrire les lois de fluage et de densification de divers matériaux. L'ensemble de ces paramètres permettent d'effectuer des simulations électro-thermo-mécanique-microstructurale (ETMM) du procédé SPS. Cette dernière partie du manuscrit est consacrée à l'étude de différentes configurations destinées à améliorer les rendements, la productivité ainsi que la capacité de ce procédé à densifier des pièces de formes complexes.

Le procédé SPS est connu pour accroître les cinétiques de densification et ainsi permettre de préserver des microstructures fines. Cependant, l'un des griefs majeur qui lui est souvent fait est qu'il ne permet de densifier qu'un seul échantillon à la fois. Des montages avec passeur d'échantillons (tunnel ou rotatif) permettant de diminuer le temps entre les frittages de deux échantillons existent (Tokita, 2002) mais ce n'est pas assez pour rivaliser avec la productivité de techniques telles que le frittage naturel voire le « HIP » où plusieurs milliers d'échantillons peuvent être densifiés simultanément avec des cycles de plusieurs heures. Pour augmenter la productivité de la technique SPS, il est donc primordial d'être capable de densifier simultanément un grand nombre d'échantillons. Comme l'expliquent Guillon et al (Guillon et al., 2014), il est possible d'effectuer simultanément un frittage de plusieurs échantillons en utilisant des configurations en parallèle et/ou en série. Dans un premier temps cette partie va être consacrée à l'étude du frittage SPS multi-échantillons utilisant des montages parallèles puis parallèles et séries. Nous allons ensuite proposer et tester expérimentalement des pistes permettant d'homogénéiser les différences de températures et de taille de grain en jouant sur le passage du courant électrique et sur les dimensions des outillages.

Dans un second temps, une étude sur la densification de formes complexes est menée. En effet les modes de densification en compression simple ou double effets (compression en matrice avec la pression appliquée par les pistons d'un côté du moule ou de part et d'autre du moule) utilisés dans le procédé ont pour inconvénient de causer des inhomogénéités de densification dans le cas de pièces de formes complexes possédant des différences d'épaisseurs (Mondalek et al., 2011). Pour résoudre ce problème, deux approches utilisant un matériau sacrificiel sont employées.

## V.2 Étude du frittage SPS par l'approche multi-échantillons

Dans ce qui suit l'approche multi-échantillons est testée sur un moule permettant le frittage simultané de 37 échantillons. Le frittage d'une première configuration à un étage est mené par la simulation ETMM puis confronté à l'expérience. Par la suite des configurations à plusieurs étages seront étudiées, mais seulement par des simulations électro-thermiques (ET).

### V.2.1 Outillage multi-échantillons en configuration parallèle

La géométrie de base du moule multi-échantillons dérive de celle utilisée en routine pour réaliser des échantillons de diamètre 8 mm (moule de hauteur 30 mm et diamètre externe 20 mm), le moule mesure également 30mm de haut et est élargi à un diamètre de 100mm. Pour positionner un maximum d'emplacement de pistons sans compromettre la structure du moule pendant la compression, 37 emplacements cylindriques sont disposés selon une structure nid d'abeille. Chaque emplacement de pistons est séparé d'une distance minimale de 3 mm. La structure en nid d'abeille est choisie, car elle permet d'équilibrer les forces de compression de la poudre sur le moule. Les seuls endroits où les forces de compression ne se compensent pas sont les zones du moule en contact avec les pistons extérieurs, le moule est donc plus épais à ce niveau. Aussi, le moule ne peut être utilisé qu'avec l'intégralité de ces emplacements occupés, si un seul emplacement est vide cela pourrait perturber la compensation des forces exercées sur le moule par la poudre menant à une éventuelle rupture (si du fait de la non compensation, la contrainte locale est amenée à être supérieure à la contrainte de rupture du graphite). La géométrie de l'outillage parallèle à 37 échantillons est reportée Figure V-1. La poudre étudiée est la même que celle étudiée dans le chapitre sur le frittage, il s'agit d'une poudre d'alumine Taimei possédant un diamètre de grains moyen de 140 nm.

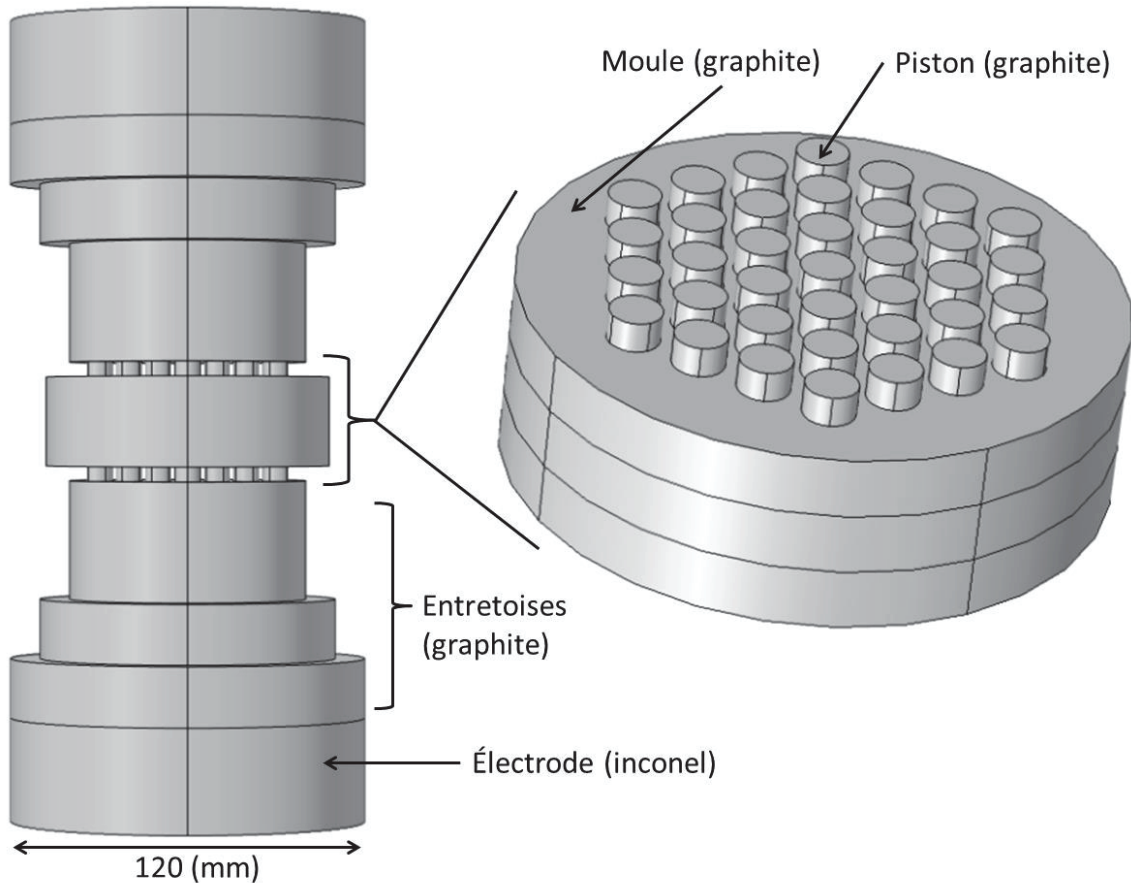


Figure V-1 Montage parallèle à 37 échantillons.

#### V.2.1.1 Essai d'étalonnage des résistances de contacts

Avant de commencer les simulations, les résistances électriques et thermiques des différents contacts doivent être déterminées. La méthode d'étalonnage de l'ensemble des résistances de contacts détaillée antérieurement est utilisée sur une configuration de diamètre 8 mm. Comme les résistances de contacts étalonnées de cette manière ont un domaine de validité limité aux conditions opératoires avec lesquelles elles ont été déterminées, il est primordial d'employer un cycle de température et de pression proche des conditions expérimentales utilisées pour la densification simultanée des 37 échantillons. Le cycle choisi (Figure V-2) est constitué d'une rampe de température (100K/min) jusqu'à 1100°C suivi d'une descente libre jusqu'à température ambiante. La pression est appliquée dès le début et est plutôt faible (25MPa) pour ne pas risquer d'endommager le moule (dans les futures expériences avec 37 échantillons). En outre cette pression est maintenue pendant la descente en température pour permettre de tester l'étalonnage des résistances de contact thermiques au refroidissement (indépendamment des résistances de contact électriques, le courant étant nul pour cette étape).

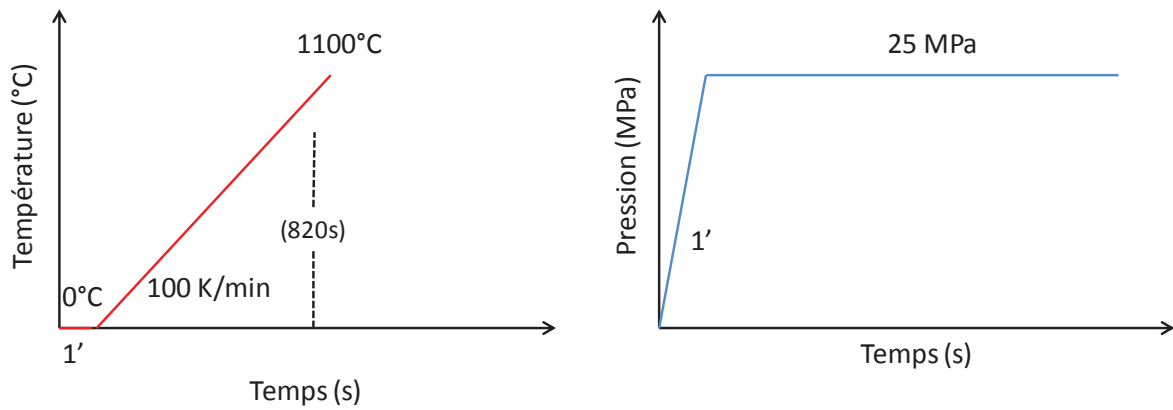


Figure V-2 Cycle de température et de pression pour l'étalonnage.

La géométrie ainsi que l'emplacement des quatre thermocouples pour l'essai d'étalonnage est reporté Figure V-3a. Le résultat des cycles de température simulés/expérimentaux en fin d'étalonnage est reporté Figure V-3b. Cette configuration est employée car la géométrie des interfaces piston/moule, échantillon/moule et pistons/échantillon de la géométrie simplifiée Figure V-3a et celle Figure V-1 sont identiques. Nous faisons l'hypothèse que pour un moule multi-échantillons les résistances de contact sont proches de celles que nous avons déterminées pour un moule à un seul échantillon possédant une géométrie des interfaces piston/moule, piston/échantillon et échantillon/moule identiques.

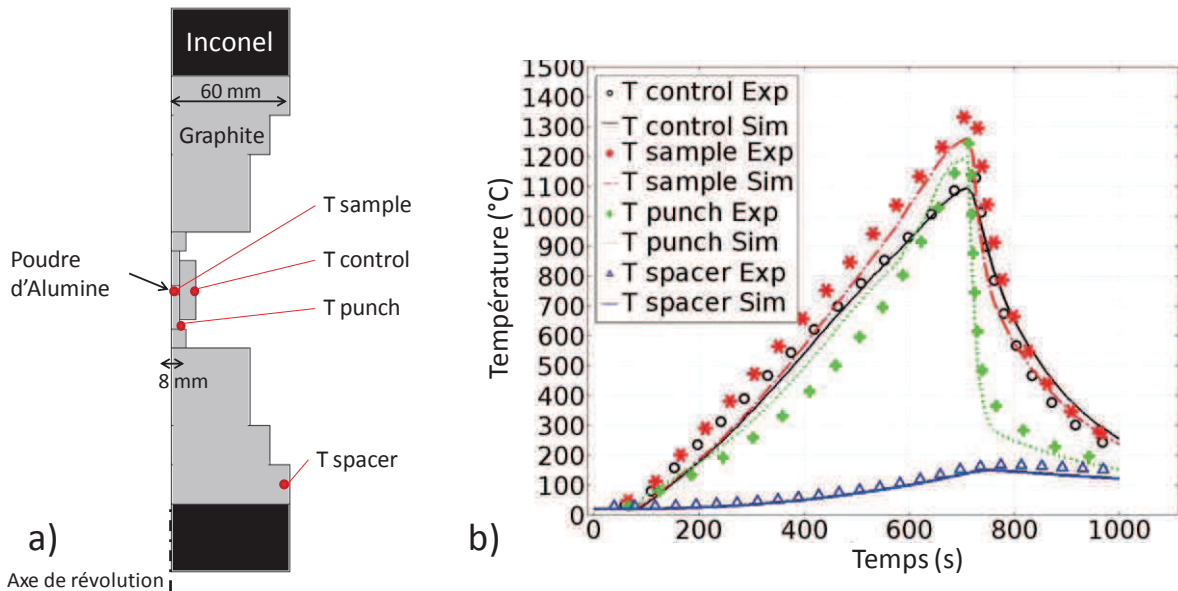


Figure V-3 Étalonnage des résistances de contact a) géométrie et emplacement des thermocouples d'étalonnage b) courbes de température expérimentales/simulées après étalonnage.

La dépendance en température des résistances de contacts ( $RCE$  ( $\Omega m^2$ ) et  $RCT$  ( $m^2 K/W$ )) des interfaces entretoise/piston, piston/moule, piston/échantillon et échantillon/moule ont alors la forme suivante:

Entretoise/piston:

$$RCT = \left( 5 * 10^{-6} + 3 * 10^{-5} * \frac{2000-T}{T-50} \right) \quad V-1$$

$$RCE = \left( 5 * 10^{-9} * \frac{2000-T}{T-100} \right) \quad V-2$$

Piston/moule:

$$RCT = \left( 80 + 50 * \frac{2000-T}{T-80} \right) * 2,4 * 10^{-4} \quad V-3$$

$$RCE = (-1,33 * 10^{-6}T + 2,5 * 10^{-3}) * 2,8 * 10^{-4} \quad V-4$$

Piston/échantillon:

$$RCT = \left( 2,5 * 10^{-5} + 1,5 * 10^{-5} * \frac{2000-T}{T-50} \right) \quad V-5$$

Échantillon/moule:

$$RCT = \left( 8 * 10^{-6} + 4 * 10^{-6} * \frac{2000-T}{T-80} \right) * 2 \quad V-6$$

Les contacts électriques des interfaces piston/échantillon et échantillon/moule ne sont pas pris en compte, car l'alumine est électriquement isolante. Les contacts électrode/entretoises et entretoise/entretoise sont déterminés grâce aux données du modèle étendu détaillé précédemment.

Électrode/entretoises:

$$RCT = \frac{1}{1,2 * 10^3} \quad V-7$$

$$RCE = \frac{1}{1,2 * 10^7} \quad V-8$$

Entretoise/entretoise:

$$RCT = \frac{1}{70 * 10^3} \quad V-9$$

$$RCE = \frac{1}{70 * 10^7} \quad V-10$$

L'ensemble de ces résistances de contact est implémenté dans la géométrie décrite Figure V-1 au niveau de leurs emplacements respectifs Figure V-4.



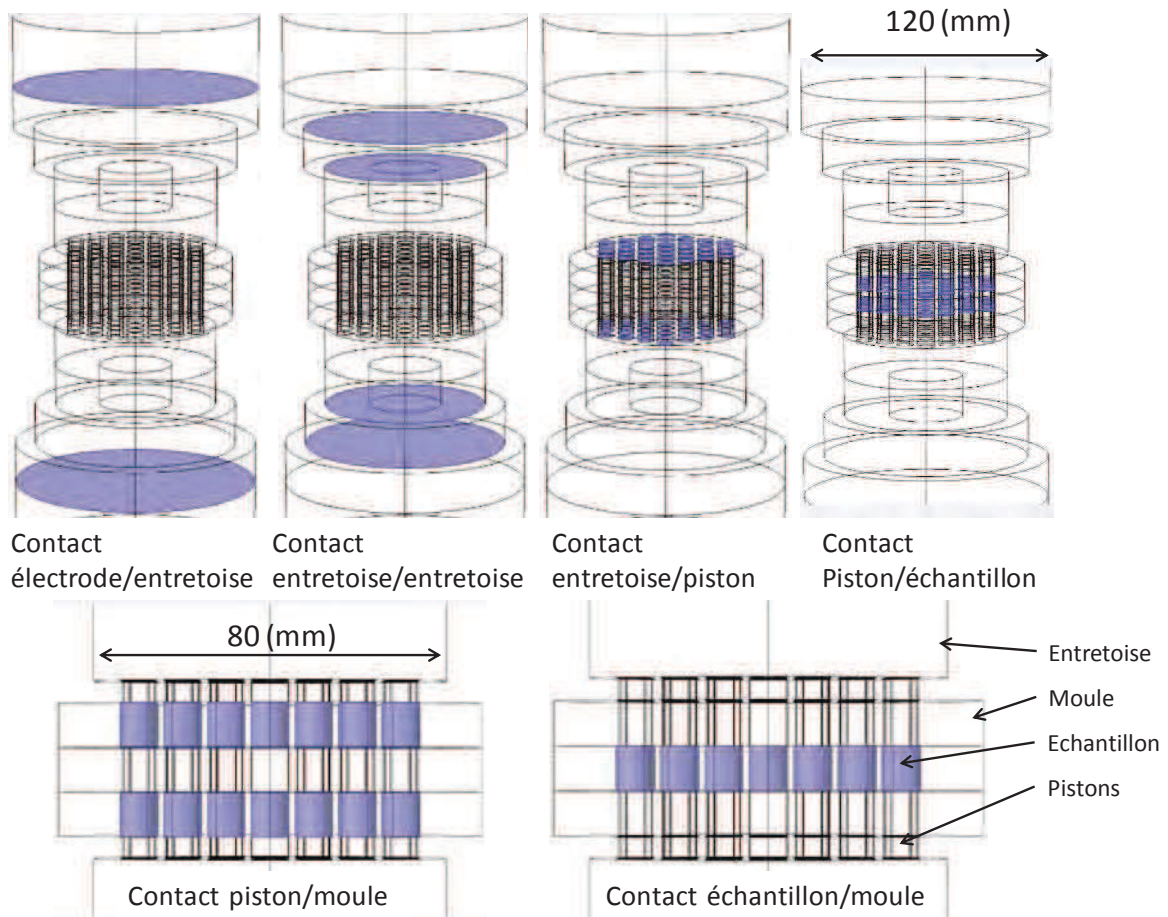


Figure V-4 Emplacement des résistances des contacts étalonnés.

#### V.2.1.2 Montage parallèle simple

Dans ce qui suit est détaillé la simulation et les résultats expérimentaux de l'essai avec le moule à un étage.

##### V.2.1.2.1 Simulation électro-thermo-mécanique-microstructurale (ETMM)

Dans un premier temps la simulation ETMM de la géométrie Figure V-1 avec les résistances de contact au niveau des emplacements détaillés précédemment Figure V-4 est menée en utilisant les cycles température/pression suivants (Figure V-5). Un régulateur numérique type PID est utilisé pour imposer le cycle thermique de consigne en surface de moule. Nous négligerons le rayonnement au niveau du moule, car il est prévu d'employer une feutrine isolante en graphite. Les lois de densification identifiées pour l'alumine à l'aide du modèle d'Olevsky dans les chapitres précédents sont utilisées pour cette étude. La poudre est séparée du moule par une feuille de graphite (papyex), en accord avec nos résultats précédents, le frottement poudre/moule peut alors être négligé.

Les résultats obtenus pour le champ de température, de densité relative et de taille de grain sont reportés Figure V-6 en fin de montée en température (820s) car à ce moment-là, les problèmes de chauffage sont maximum.

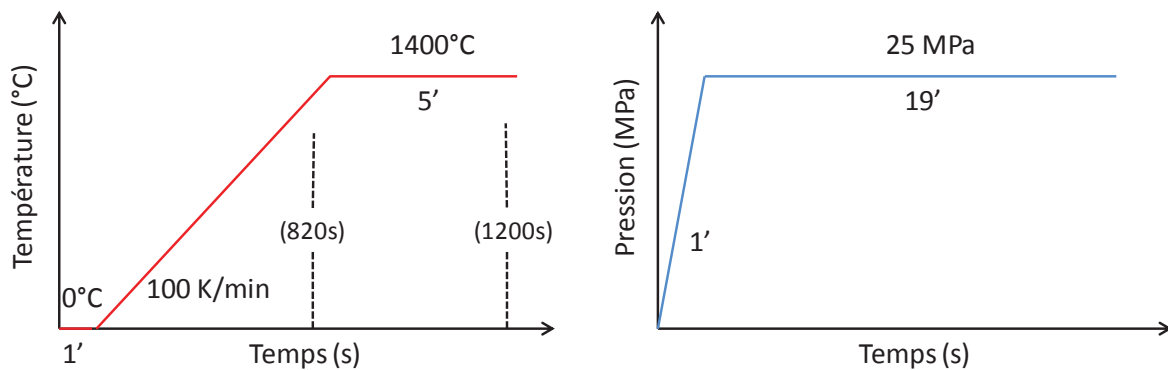


Figure V-5 Cycle de température et de pression pour la simulation ETMM à un étage.

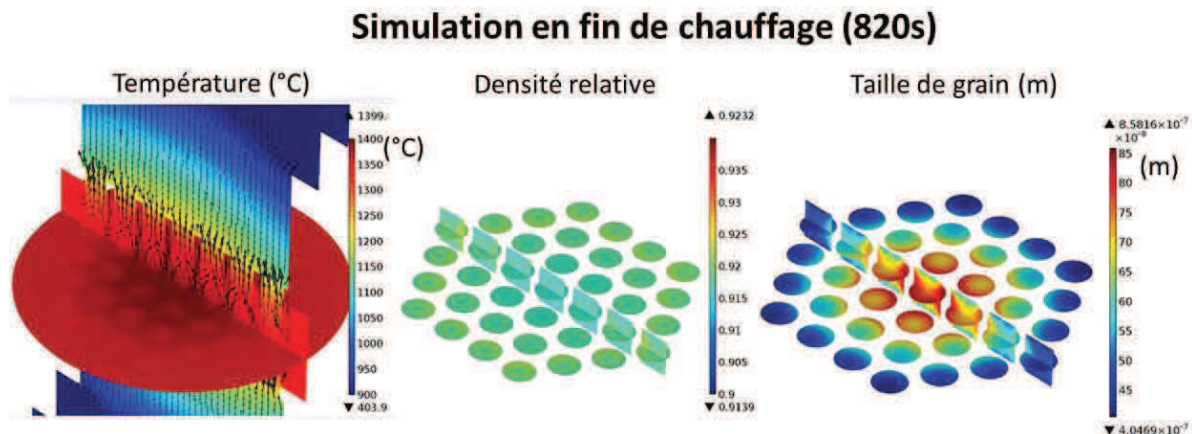


Figure V-6 Simulation ETMM a) champ de température (les flèches noires sont les vecteurs de densité de courant) b) champ de densification c) champ de taille de grain.

Le champ de température simulé révèle un important écart de température entre les échantillons du centre et ceux du bord. La différence de température est d'environ 100K. Le champ de densités relatives ne semble quant 'à lui pas affecté par le gradient de température, car il est très homogène. Les différences de densités relatives entre les échantillons ne dépassent pas les 2 %. Le déplacement imposé par les entretoises étant identique pour les 37 échantillons, le gradient de température n'affecte pas la densification. En effet, même si les échantillons du centre sont plus chauds, leur densification est astreinte à suivre la vitesse de densification des échantillons extérieurs plus lente et donc limitante. Ce phénomène est très intéressant, car il permet une densification homogène indépendamment du champ de température. Mais le gradient thermique cause un gradient de taille de grain. Le champ de taille de grain simulé a 820 secondes à un profil avec des différences marquées entre les échantillons du bord et du centre.

V.2.1.2.2 Résultats expérimentaux

Une première expérience (non reportée) a été réalisée en manuel afin d'adapter le cycle en fonction de la réaction du système, l'expérience suivante est réalisée avec un cycle approché (Figure V-7). Les expériences utilisent 1 gramme de poudre d'alumine pour chaque échantillon.

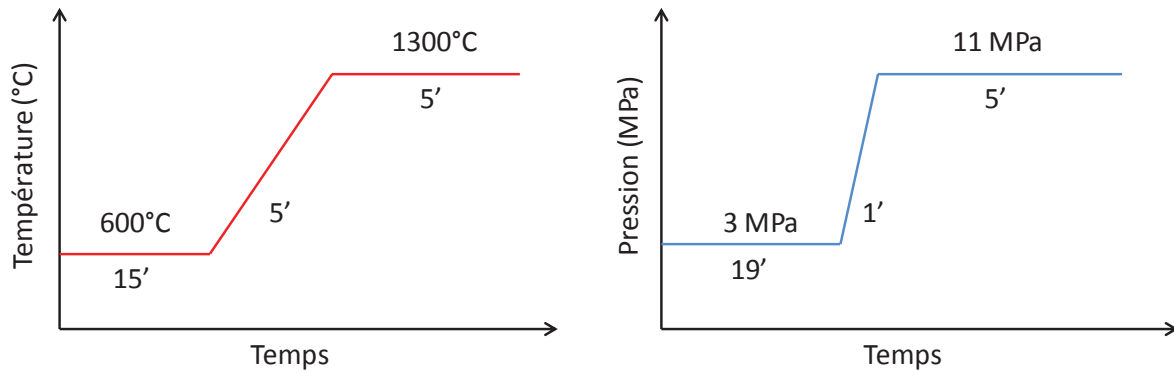


Figure V-7 Cycle de pression et de température déterminé par imitation du premier cycle réalisé en contrôle manuel.

Afin de pouvoir repérer et classifier individuellement chaque échantillon obtenu, un repérage en coordonnées XY est introduit Figure V-8. Les caractérisations ne sont pas réalisées sur l'ensemble des 37 échantillons (trop long), mais les quatre échantillons situés selon le rayon de l'hexagone (axe X).

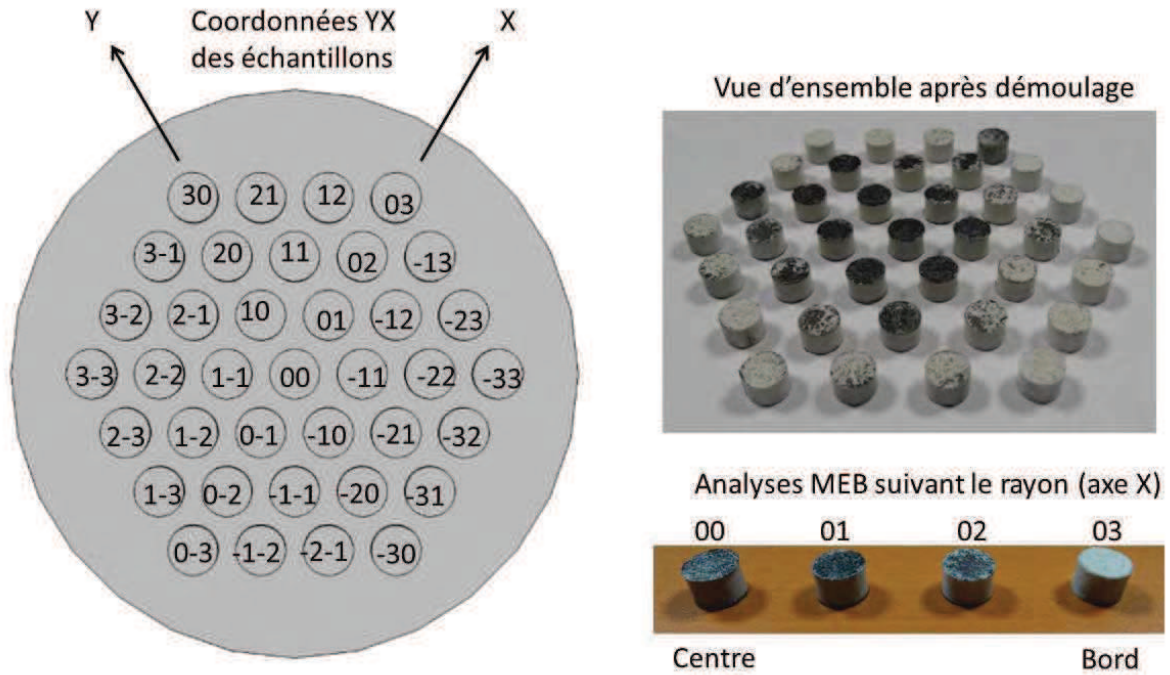


Figure V-8 Repérage de chaque échantillon suivant sa position.

Pour chaque essai, la densité relative et la taille de grain sont déterminées. Les mesures de densité relative sont réalisées par balance d'Archimède pour des densités relatives comprises entre 95 et 100%, pour les taux de compaction inférieurs, les densités relatives géométriques sont employées. La mesure de la taille de grain se fait par analyse d'image MEB sur fracture. Les images de fracture des essais réalisés avec les cycles Figure V-7 sont reportées Figure V-9. Conformément aux résultats obtenus par la simulation on constate que chaque échantillon a un taux de densification élevé (97%) avec une différence notable de la taille de grain entre les échantillons du centre (4  $\mu\text{m}$ ) par rapport à celui du bord (2  $\mu\text{m}$ ). Cette différence de taille de grain confirme la présence du gradient thermique présent dans la simulation. Les valeurs de densité relative sont reportées plus loin dans le tableau récapitulatif (Table VI.1).

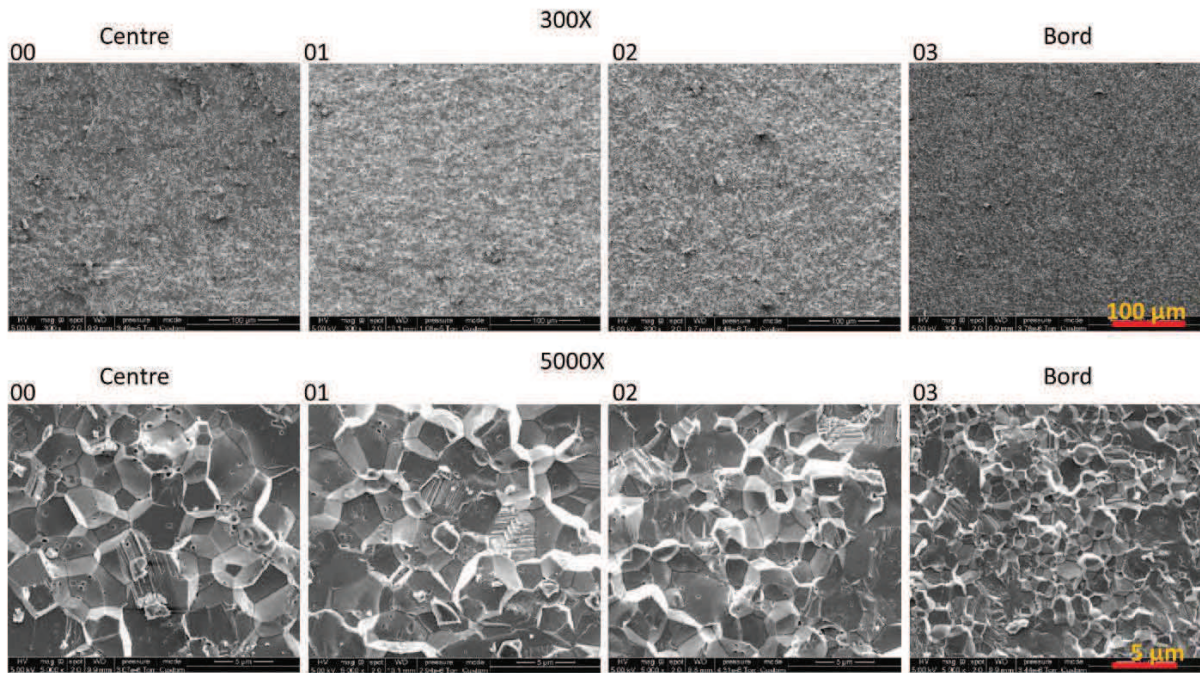


Figure V-9 Images MEB de fracture pour les premiers essais à 37 échantillons.

### V.2.1.3 Optimisation du champ de température pour le montage parallèle

Pour homogénéiser le champ de température, différentes configurations avec isolations électriques sont étudiées par la simulation puis testées expérimentalement.

#### V.2.1.3.1 Analyse électro-thermique corrective

Des simulations ont été menées avec pour objectif de trouver une solution permettant d'optimiser la distribution du courant de façon à élever la température des pistons extérieurs homogénéisant ainsi la température de l'ensemble du moule. Trois types d'essais sont envisagés avec des isolations électriques placées en différents endroits matérialisés Figure V-10. L'essai correctif 1 positionne une isolation électrique en forme de cercle de diamètre 40mm placé à la jonction de deux entretoises à une distance de 20mm des pistons de part et d'autre du moule. Expérimentalement cette isolation électrique est créée par l'ajout de deux feuilles circulaires de graphite (papyex) séparées par un cercle plus petit de nitrure de bore (isolant électrique).

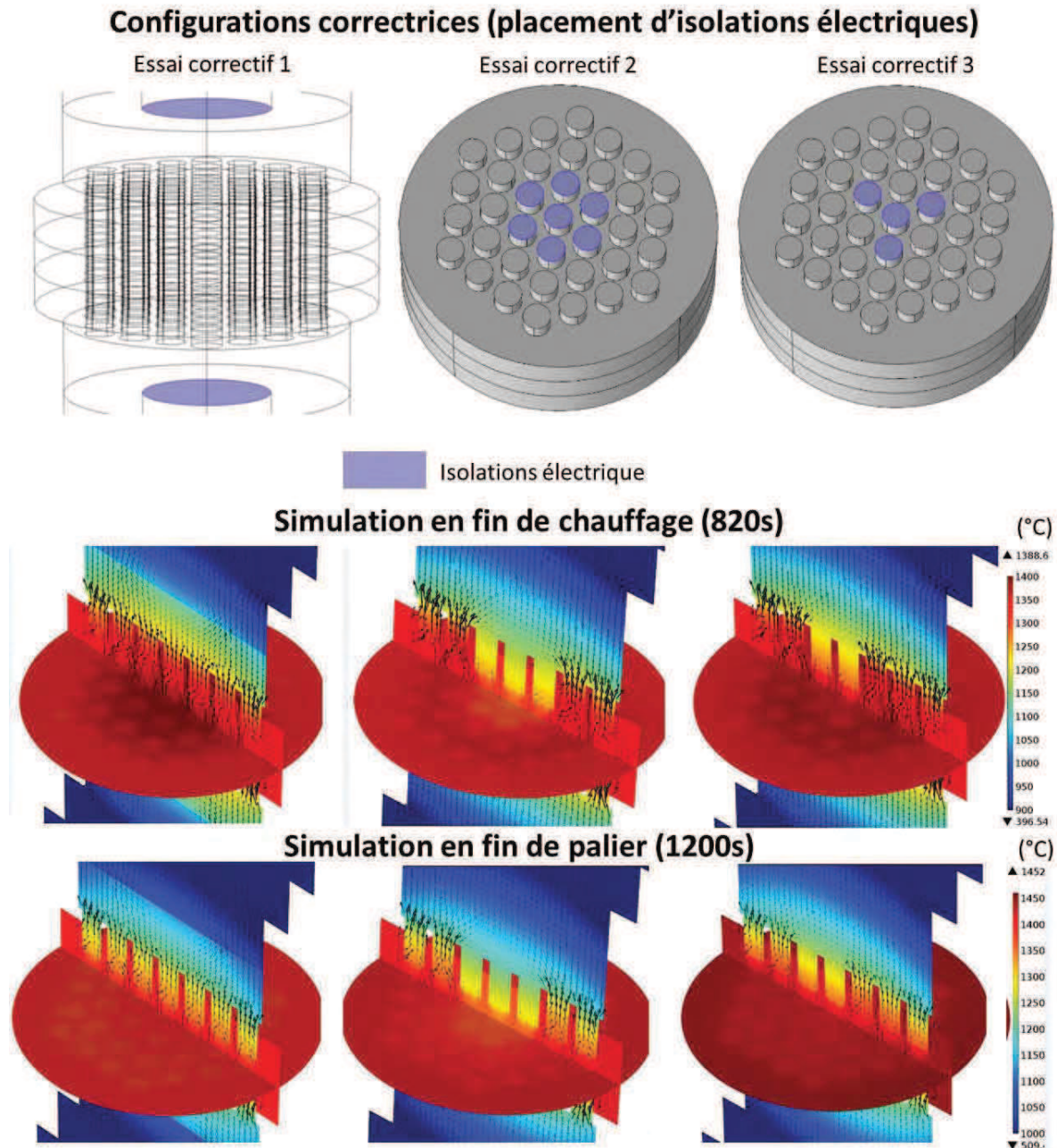


Figure V-10 Essais correctifs envisagés par la simulation ET pour une homogénéisation du champ de température (les flèches noires sont les vecteurs densité de courant).

La simulation de l'essai correctif 1 ne révèle qu'une faible amélioration du champ de température. Les flèches noires indiquent que le courant électrique contourne l'isolation électrique, mais ne diminue pas suffisamment la quantité de courant passant par les pistons centraux. Pour résoudre ce problème, les isolations électriques sont directement placées au contact entre les pistons centraux et l'entretoise. Pour l'Essai correctif 2 sept isolations électriques sont placées sur les pistons centraux. Pour cet essai, les simulations montrent une inversion de champ de température avec les pistons centraux plus froids que les pistons extérieurs. Un compromis est trouvé avec l'essai correctif 3 pour lequel trois isolations électriques sont retirées. Pour cet essai, le champ de températures sur l'ensemble des

échantillons est relativement homogène, les différences de température simulées sont au maximum de 50K.

#### V.2.1.3.2 Résultats expérimentaux

L'essai correctif 1 ainsi que l'essai correctif 3 ont été réalisés expérimentalement. Les images MEB de fracture des essais correctifs 1 et 3 sont reportés Figure V-11 et Figure V-12, les valeurs de densités relatives et de taille de grains pour les essais réalisés avec le moule à 37 échantillons sont reportées dans la Table V-1.

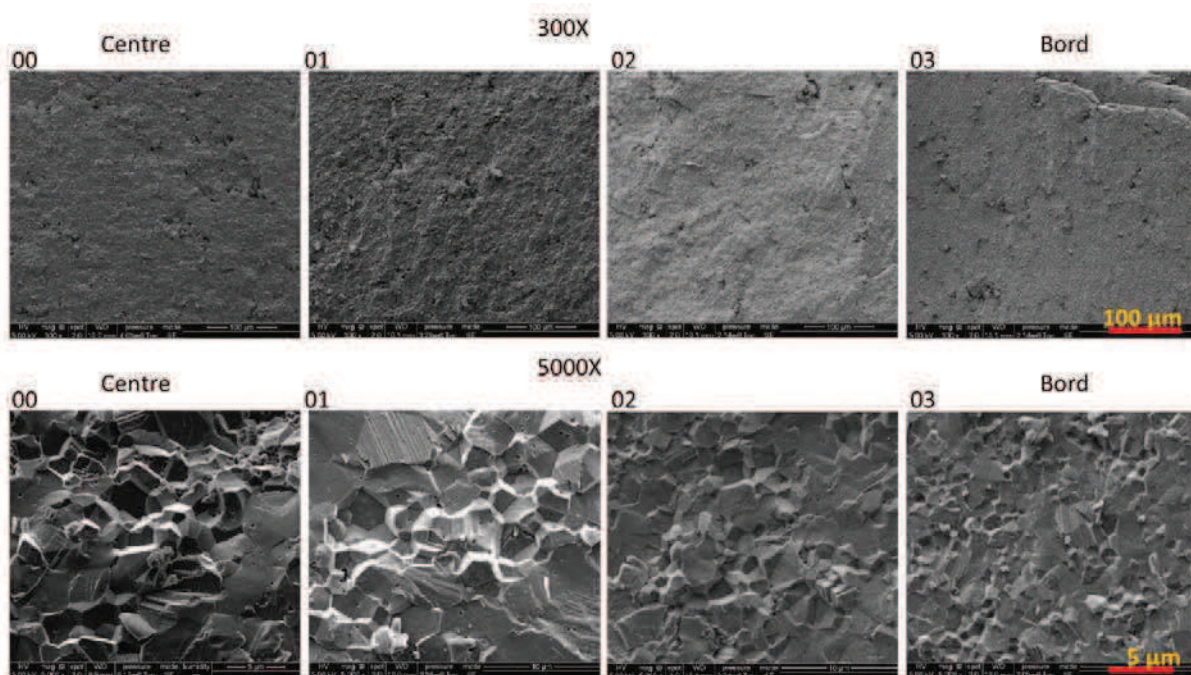


Figure V-11 Images MEB de fracture pour l'essai correctif n°1.

Comme le montre la simulation (Figure V-10), l'essai correctif n°1 est toujours sujet à une différence notable de la taille de grain entre le centre et le bord du moule. En revanche, la diminution de la taille de grain du centre vers le bord est progressive et légèrement moins ample ( $\Delta G=1,48\mu\text{m}$ ) comparé à la différence de taille de grain observée pour l'essai sans isolation électrique ( $\Delta G=2,2\mu\text{m}$ ) où l'on constate seulement une différence de taille de grain entre les échantillons intérieurs et les extérieurs. Le cycle expérimental s'est interrompu 2 minutes avant la fin programmée, les densités relatives moyennes sont donc proches de 95% au lieu des 97% avec l'ancienne configuration.

Concernant l'essai correctif n°3, des conditions différentes ont été employées pour tenter de rendre la mise en œuvre plus facile. Une montée plus lente de 50K/min (régulation plus facile), une pression plus élevée de 25MPa et une masse de poudre de 0,8 g (préparation plus facile) sont employées.

Les densités relatives obtenues sont plus faibles et proches de 85 %. Ce résultat est attribué au passage d'une masse de poudre de 1 à 0,8 g ayant pour effet de diminuer la longueur de pistons dans la zone hors moule ce qui diminue la quantité de chaleur dissipée à ce niveau (la température des l'échantillons étant par conséquent plus faible). Nous aurions dû programmer une température plus haute pour compenser cette diminution. Les différences de tailles de grain sont quant' à elles très fortement minimisées (0.47  $\mu\text{m}$  en moyenne sur tous les échantillons), la méthode corrective du champ de température semble donc fonctionner sous réserve que les faibles écarts de taille de grain se maintiennent pour les fortes densifications. En effet, la croissance granulaire est très importante pour les fortes densifications, il faudra donc par la suite refaire l'expérience de l'essai n°3 dans les conditions précédentes pour s'assurer de l'homogénéité de la microstructure pour les fortes densités.

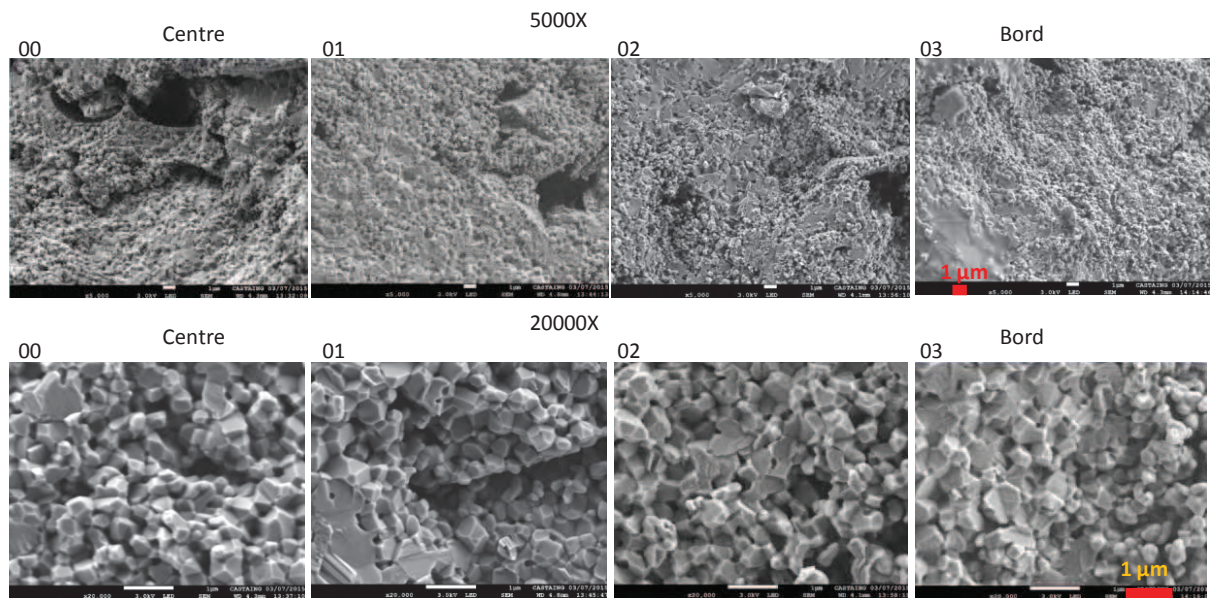


Figure V-12 Images MEB de fracture pour l'essai correctif n°3.



**Table V-1** Densité relative, taille de grain et cycles employés pour l'ensemble des expériences à 37 échantillons réalisés.

		00	01	02	03
	Cycles / masse	P=11MPa; Rampe= 140K/min; T <sub>frittage</sub> =1300°C; m=1 g			
Essai vierge (sans isolations électriques)	Densité relative	0.97 ± 0.01	0.989 ± 0.001	0.988 ± 0.001	0.975 ± 0.001
	Taille de grain (µm)	4,23 ± 0,05	4,10 ± 0,05	3,75 ± 0,05	2,21 ± 0,05
	Cycles / masse	P=11 MPa; Rampe= 140K/min; T <sub>frittage</sub> =1300°C; m=1 g			
Essai correctif 1	Densité relative	0.93 ± 0.01	0.960 ± 0.001	0.948 ± 0.01	0.937± 0.001
	Taille de grain (µm)	3,46 ± 0,05	3,18 ± 0,05	2,64 ± 0,05	1,98 ± 0,05
	Cycles / masse	P=25 MPa; Rampe= 50K/min; T <sub>frittage</sub> =1300°C; m=0.8 g			
Essai correctif 3	Densité relative	0.842 ± 0.006	0.866 ± 0.006	0.849 ± 0.006	0.833 ± 0.006
	Taille de grain (µm)	0,48 ± 0,05	0,46 ± 0,05	0,47 ± 0,05	0,48 ± 0,05

La simulation et l'expérience montre qu'une configuration à un étage possédant 37 échantillons présente un gradient de température radial assez important causant un écart de microstructure pour une densification paradoxalement homogène. Cette homogénéité de densification est due au déplacement imposé des pistons identique pour tout les échantillons. Par la simulation une solution consistant à empêcher le passage du courant par le centre du moule à l'aide d'isolations électriques est étudiée et montre une amélioration du problème d'homogénéité microstructurale. L'expérimentation de ces solutions partiellement achevée semble aller dans le sens des solutions simulées.

### V.2.2 Outillage multi-échantillons en configuration parallèle et série

Une optimisation du champ de température a pu être réalisée sur le montage multi-échantillon à 1 étage. Dans le but d'augmenter encore le nombre d'échantillons pouvant être densifiés simultanément, nous étudions dans ce chapitre plusieurs montages possédant trois étages à 37 échantillons (111 échantillons au total). Par manque de temps, les études suivantes n'ont pas été testées expérimentalement. Ces études sont donc exclusivement constituées de simulations ayant pour but de donner des solutions potentielles pour l'homogénéisation du champ de températures sur des configurations à plusieurs étages.

#### V.2.2.1 Configurations étudiées

Deux types de géométries d'empilement sont étudiées (Figure V-13). Dans les premiers cas, les étages sont ajoutés les uns sur les autres avec des pistons intermédiaires deux fois plus longs que les pistons standard pour assurer la bonne tenue de l'ensemble. L'autre type d'empilement (plus classique) utilise des entretoises intermédiaires pour séparer chaque étage d'échantillons. Nous allons voir un peu plus loin qu'il est également possible d'ajouter un moule externe.

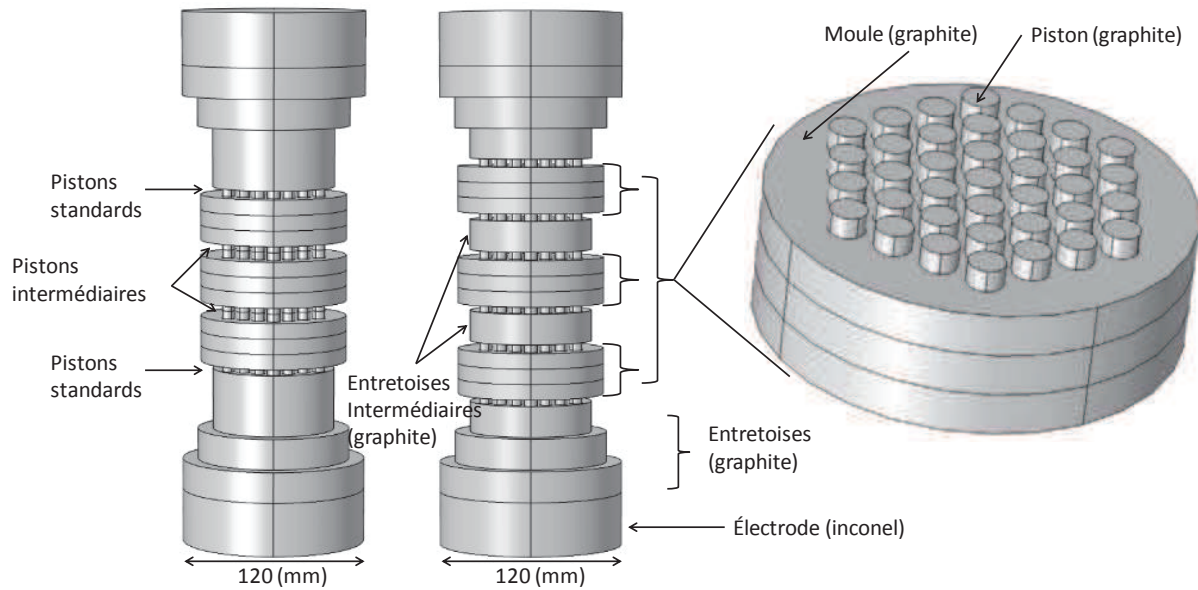


Figure V-13 Géométrie des empilements à trois étages avec et sans entretoises intermédiaires.

### V.2.2.2 Analyse électro-thermique corrective pour une homogénéisation du champ de température

Dans un premier temps, les simulations d'optimisation de la configuration avec empilement simple et avec entretoise intermédiaire sont réalisées dans l'ordre chronologique de gauche à droite Figure V-14.

La première simulation ( Figure V-14a) est réalisée pour permettre d'identifier les problèmes de gradients thermiques que nous allons chercher à minimiser par la suite. Cette première simulation montre d'importantes différences de températures selon l'axe z. Si on se repère selon l'axe z, on mesure environ 200K d'écart entre les échantillons du centre et des moules extérieurs. Il y a un phénomène d'accumulation de chaleur au niveau du moule central (à mi-hauteur selon l'axe z) qui contrairement aux deux autres moules extérieurs ne peut pas évacuer de la chaleur vers les entretoises (plus froides). Pour corriger ce phénomène, il faut modifier le système afin de générer plus de chaleur au niveau des pistons extérieurs (pistons en contact avec les entretoises). La hauteur ( $H_{pext}$ ) de ces pistons est ainsi progressivement augmentée (a à d). L'écart de température entre la rangée d'échantillons du centre et les extérieurs se réduit progressivement de 200K à environ 100K au final d) mais ce n'est pas suffisant au vu de la longueur de piston ajoutée (6 mm).

Une autre solution consistant à segmenter les pistons extérieurs en deux pour ajouter une résistance de contact thermique (e) diminuant le flux de chaleur sortant est par la suite étudiée. Mais cette solution n'apporte pas d'améliorations visibles des écarts de température entre les trois rangées d'échantillons.

Simulation d'optimisation du chauffage pour une configuration 3 étages X37 en fin de chauffage (820s)

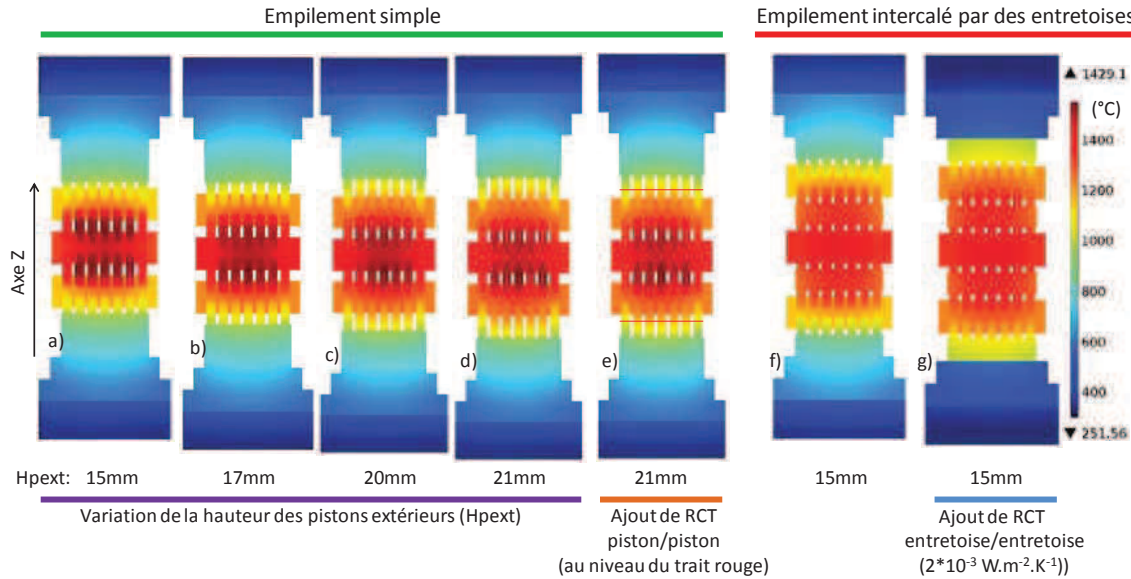


Figure V-14 Simulations d'optimisation du champ de température en configuration série/parallèle.

L'approche avec un empilement utilisant des entretoises intermédiaires est testée (f), mais le même problème que pour l'empilement simple apparaît, le moule central est plus chaud que les moules externes ( $\Delta T=150K$  selon l'axe z). Une importante résistance de contact thermique est imposée à l'interface de la première entretoise (en contact avec les pistons externes) et l'entretoise suivante (g). La chaleur est alors maintenue dans les parties centrales, mais ce n'est toujours pas suffisant pour assurer une homogénéisation acceptable de la température.

Une approche différente est alors employée, elle utilise un moule externe avec la géométrie d'empilement simple (Figure V-15). Le premier essai (Figure V-15a) est très encourageant, car pour la première fois les pistons externes sont les éléments les plus chauds. Nous nous repérons toujours par rapport à l'axe z (Figure V-15). Le passage d'une partie du courant par le moule externe permet de diminuer la quantité de chaleur dissipée dans les pistons centraux au profit des pistons externes étant un passage forcé du courant électrique. La première partie de cette nouvelle optimisation consiste alors à diminuer la hauteur des pistons pour équilibrer les écarts de températures entre le centre et les parties extérieures (selon l'axe z). La dernière partie consiste à progressivement modifier l'épaisseur du moule externe (a-e) jusqu'à atteindre la simulation située le plus à droite Figure V-15e où les écarts de température au niveau des échantillons n'excèdent pas les 30K.

Une configuration générant 111 échantillons identiques est donc théoriquement possible. Le paramètre clef est de dévier une partie du courant électrique par un moule externe afin de compenser l'excédant de chaleur présent au niveau de l'étage central par une dissipation de

chaleur maximale dans les pistons en contact avec les entretoises, pistons par lesquels la totalité du courant passe. Malheureusement, par manque de temps il ne nous a pas été possible de valider expérimentalement cette étude.

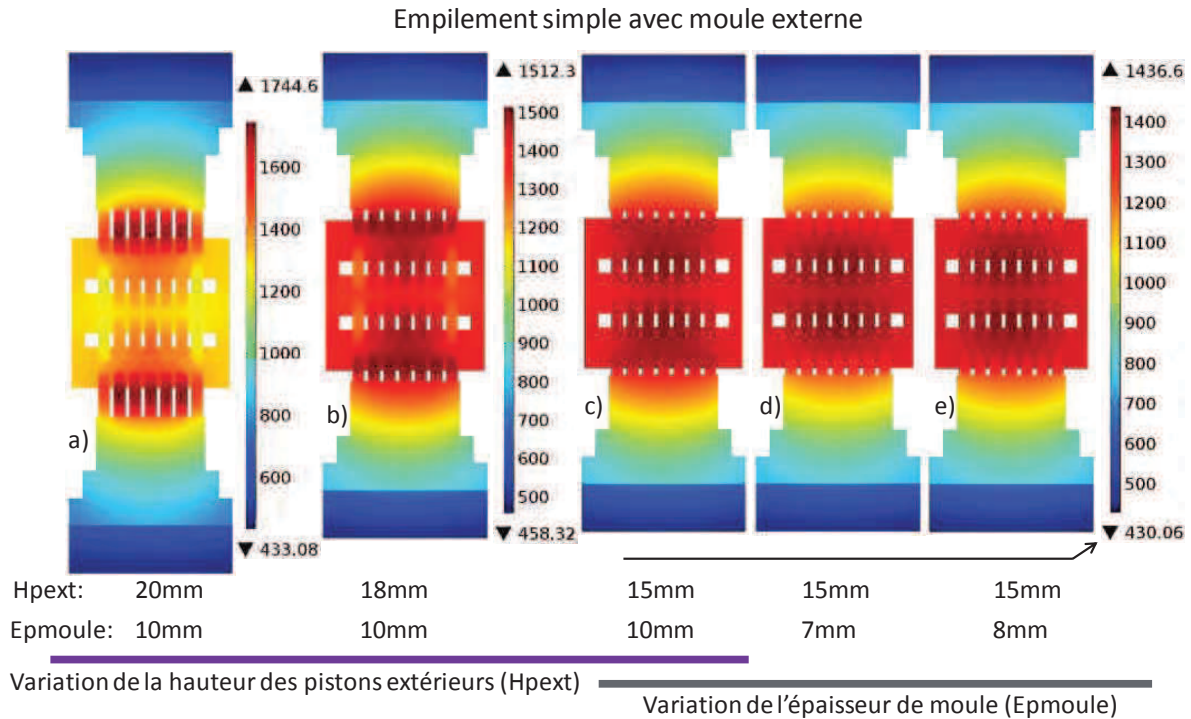


Figure V-15 Simulations d'optimisation du champ de température en configuration série/parallèle avec moule externe.

### V.2.2.3 Évaluation du coût lié à la consommation électrique

L'intérêt majeur de cette méthode est de diminuer le temps total d'élaboration d'un grand nombre de pièces. Par exemple, réaliser 111 pièces séparément avec des cycles 20 minutes prends un temps total de 37 heures, au lieu de 20 minutes avec la configuration multi-échantillons Figure V-15 (à droite). L'autre intérêt est au niveau de la consommation électrique, en effet ramené à un échantillon, un moule classique de diamètre 8mm demande plus de puissance électrique que le chauffage d'un moule multi-échantillons. Le chauffage au niveau d'un piston utilise une partie de la chaleur excédentaire générée par les autres pistons qui serait dispersée dans un outillage classique. En configuration classique la consommation électrique pour un cycle thermique tel que présenté (Figure V-2) est de 0.090 kWh, la consommation électrique de la configuration multi-échantillons ramenée à un seul échantillon est de 0.028 kWh. Le prix du kWh étant de 0.144 € (le 01/07/2015), la consommation électrique d'une pastille de diamètre 8 mm en configuration classique coûte 0.013 €, ce prix est réduit à 0.004 € par pastilles en utilisant la configuration multi-échantillons (111 échantillons).

Outre l'intérêt de gain de temps que représente l'utilisation d'une configuration multi-échantillons, la consommation électrique est divisée par 3.

### **V.3 Conclusion sur l'approche multi-échantillons**

Cette étude a permis de montrer qu'il est possible de densifier simultanément un grand nombre d'échantillons. Quatre types de montages sont étudiés : le premier est un montage parallèle utilisant un moule possédant une capacité de 37 échantillons, les trois autres sont des montages parallèles/séries utilisant trois moules posés l'un sur l'autre sans (ou avec) entretoise(s) intermédiaire(s) avec matrice externe.

Les principaux problèmes rencontrés sont des problèmes d'inhomogénéités de la température pouvant entraîner des microstructures différentes. La simulation électro-thermo-mécanique-microstructurale (ETMM) a montré sur une configuration parallèle à 1 moule qu'un gradient de température entre le centre (chaud) du moule et le bord (froid) est présent et cause un gradient de taille de grains. En revanche, si la température de frittage est suffisante, le champ de densification n'est que peu affecté par les écarts de températures. Cet effet s'explique par le déplacement des pistons, imposé identique, par les entretoises, ainsi la densification des échantillons les plus froids gouverne l'avancement de la densification rendant de ce fait l'ensemble homogène. Ce premier constat est intéressant, car le cahier des charges des pièces que l'on cherche à densifier ne comprend pas toujours des exigences sur la microstructure. Pour les autres applications, il faut trouver un moyen d'homogénéiser le champ de température.

Dans un deuxième temps, des simulations ont été menées afin d'optimiser la distribution du courant au niveau des zones centrales, vues précédemment comme les plus chaudes, afin d'équilibrer le champ de température. Des expériences ont permis de confirmer les résultats des simulations et de constater une nette amélioration de l'homogénéité de la taille de grain des échantillons.

En dernier lieu, une analyse des configurations parallèle/série (multi-étages) basée uniquement sur la simulation a montré que le principal défaut de ce type de nouveau montage est une accumulation importante de chaleur dans la zone centrale (suivant la longueur de la colonne SPS). La simulation a permis de trouver une solution à ce problème en ajoutant un moule extérieur permettant de détourner une partie du courant passant par la zone centrale. Les pistons extérieurs (selon z) dissipent ainsi plus de chaleur que ceux de la zone centrale ce qui a pour effet d'équilibrer le champ de température suivant la longueur de la colonne SPS.

#### **V.4 Élaboration de formes complexes par frittage SPS**

Cette dernière partie est consacrée à la résolution des problèmes d'inhomogénéités de densification rencontrés pour le frittage de formes complexes avec le procédé SPS. Le problème de différences de hauteur est tout d'abord détaillé à l'aide de deux exemples. Deux types de solutions sont proposés par la suite, toutes deux faisant intervenir un matériau sacrificiel.

##### *V.4.1 Problème des différences de hauteur*

###### *V.4.1.1 Mise en évidence du problème*

Le procédé SPS est très efficace pour densifier des géométries cylindriques pour les raisons suivantes: cette forme de révolution répartit équitablement les contraintes latérales appliquées sur le moule ainsi que le champ de température (même si celui-ci est inhomogène) et cette géométrie ne possède pas de différences de hauteur ce qui impose un retrait uniforme sur toute la géométrie au cours de la densification.

Comme présenté dans la publication de Mondalek et al (Mondalek et al., 2011), la densification d'une forme cylindrique en T (Figure V-16a) possède en fin de frittage une zone poreuse de densité relative de l'ordre de 70%. D'autres auteurs comme Matsugi et al (Matsugi, Kuramoto, Yanagisawa, et al., 2003) proposent une géométrie bi-niveau en forme de T (Figure V-16b) permettant d'effectuer une compaction avec deux diamètres de pistons causant deux niveaux de pression. Mais dans cette autre solution, la zone de faible diamètre de piston possède à la fois la plus forte pression et une température maximale. Une faible section de piston entraîne à courant égal une forte dissipation thermique. Dans ce cas de figure, la zone de forte section de piston densifie moins vite.

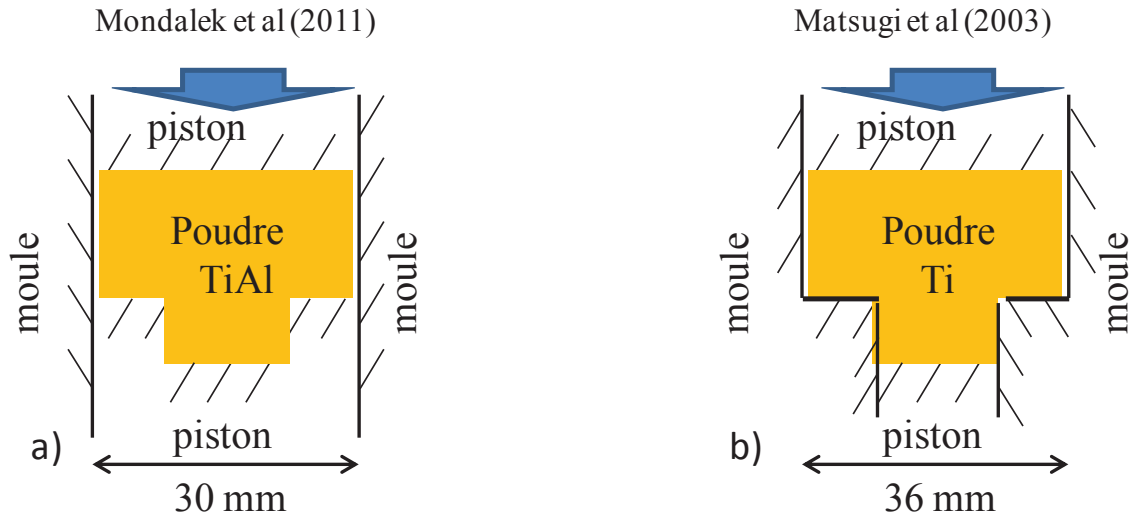


Figure V-16 Configuration en T dans les travaux de a) Mondalek et al (Mondalek et al., 2011) b) Matsugi et al (Matsugi, Kuramoto, Yanagisawa, et al., 2003).

Pour des géométries complexes possédant de fortes différences d'épaisseur, d'importants gradients de densification sont constatés. Pour comprendre ce phénomène, une simulation d'une pièce cylindrique possédant une marche est menée et le champ de densification ainsi que le champ de déplacement vertical en fin de cycle est présenté Figure V-17. La simulation employée est du même type que celles utilisées dans la partie consacrée à l'étude du frottement. Il s'agit d'un modèle purement mécanique, avec un cycle de température imposé sur toute la géométrie, les conditions aux limites sont constituées d'un déplacement fixé selon  $z$  en bas, une force est appliquée sur la face du dessus et les conditions latérales sont des conditions de non-pénétration. La poudre d'alumine Taimei dont nous avons précédemment déterminé les lois de densifications est utilisée pour cette étude. Pour l'ensemble des simulations de cette partie: le cycle thermique de consigne est constitué d'une montée à 100K/min jusqu'à 1400°C suivi d'un palier de 5 minutes; la force appliquée est 18 kN.

Le champ de densité relative simulé est similaire à celui des travaux de Mondalek et al (Mondalek et al., 2011), à l'état final la zone de moindre épaisseur est dense et la zone de hauteur importante est poreuse avec une densité relative de l'ordre de 80% sur toute la hauteur. Le champ de déplacement vertical montre des lignes d'iso-déplacements fortement courbées qui contrastent avec les lignes d'un échantillon cylindrique sans frottement où les lignes d'iso-déplacements sont horizontales.

Ce résultat explique la non-uniformité du retrait entre les deux zones de hauteurs différentes (Figure V-17). La zone de faible hauteur se densifie plus rapidement, car à déplacement égal, sa distance de retrait maximale (faible) est plus rapidement atteinte que pour la zone de forte hauteur (plus de retrait). Une fois que la zone de faible hauteur est totalement

dense, le frittage s'interrompt et la zone de forte hauteur nécessitant plus de retrait ne peut terminer son processus de densification. L'hétérogénéité du champ de densification donné par la simulation (Figure V-17) découle de ce phénomène.

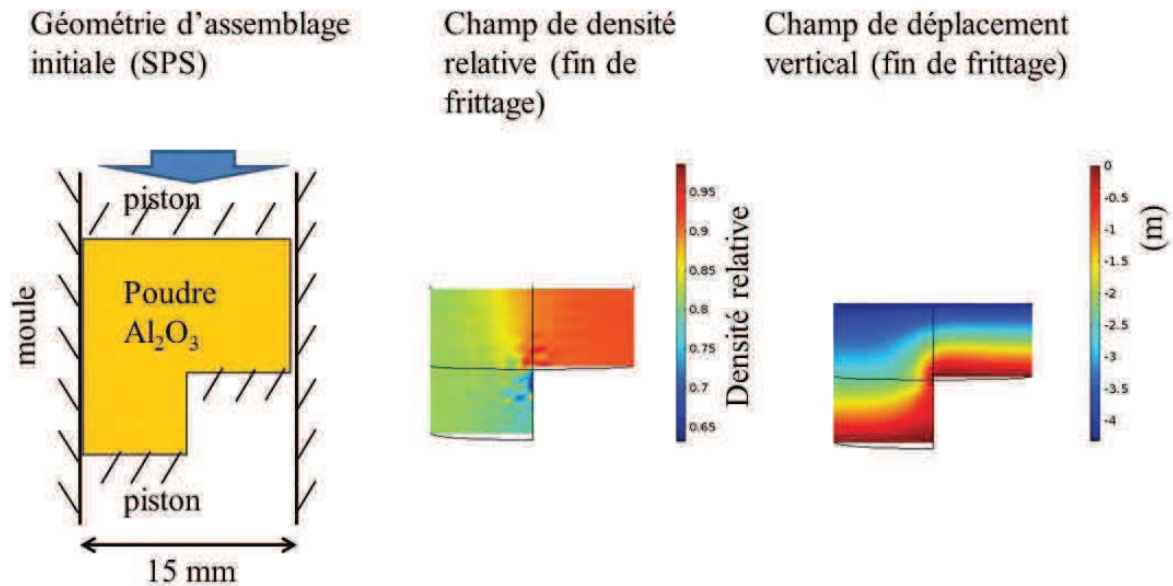


Figure V-17 Simulation de la densification et du champ de déplacement vertical d'une pièce cylindrique avec "marche".

Des travaux sur une forme plus complexe ont également été menés dans le cadre de l'ANR 09 IMPULSE dans lequel le CIRIMAT était partenaire. Ainsi, une géométrie nommée "ASTM" (Figure V-18) possédant deux épaisseurs différentes et un trou en son centre a été élaborée expérimentalement. Pour ce faire un moule de géométrie adaptée ainsi que des travaux de simulation FEM ont été menés pour palier les défauts de celui-ci.

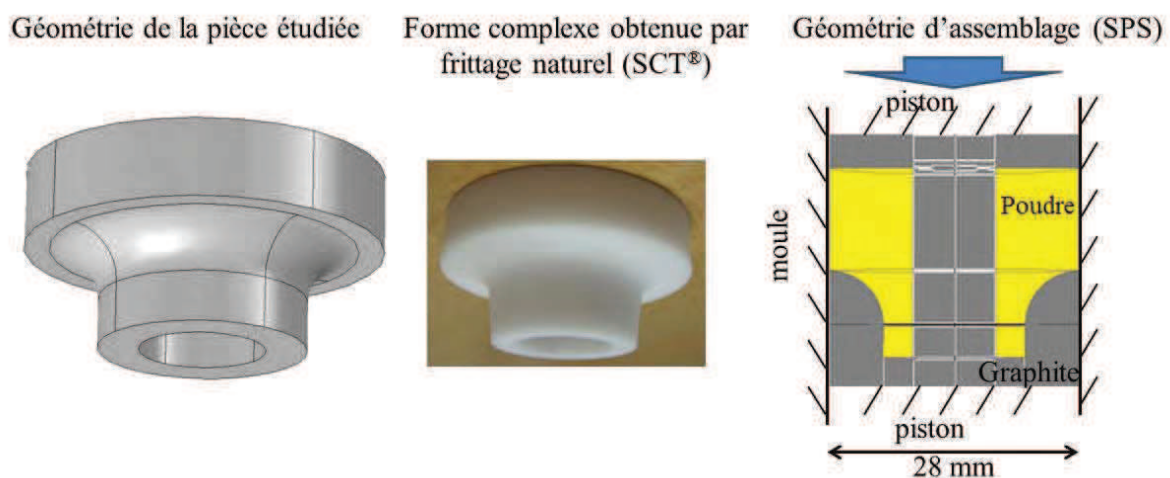


Figure V-18 Géométrie de la pièce ASTM.



La simulation de la densification en régime de montée en température (100K/min jusqu'à 1400 °C avec une pression constante de 100 MPa) de la pièce ASTM avec la configuration indiquée à droite Figure V-18 est présentée Figure V-19. Comme pour le cas de la pièce cylindrique avec marche (Figure V-17), au terme de la simulation du frittage, la zone de faible hauteur est dense et la zone de forte hauteur est poreuse, les lignes d'iso-déplacements sont très courbées. Les images MEB sur pièce polie (Figure V-20) révèlent en bon accord avec la simulation, un fort taux de porosité au niveau du point H et une densification de plus en plus importante à mesure que l'on se rapproche de du point B.

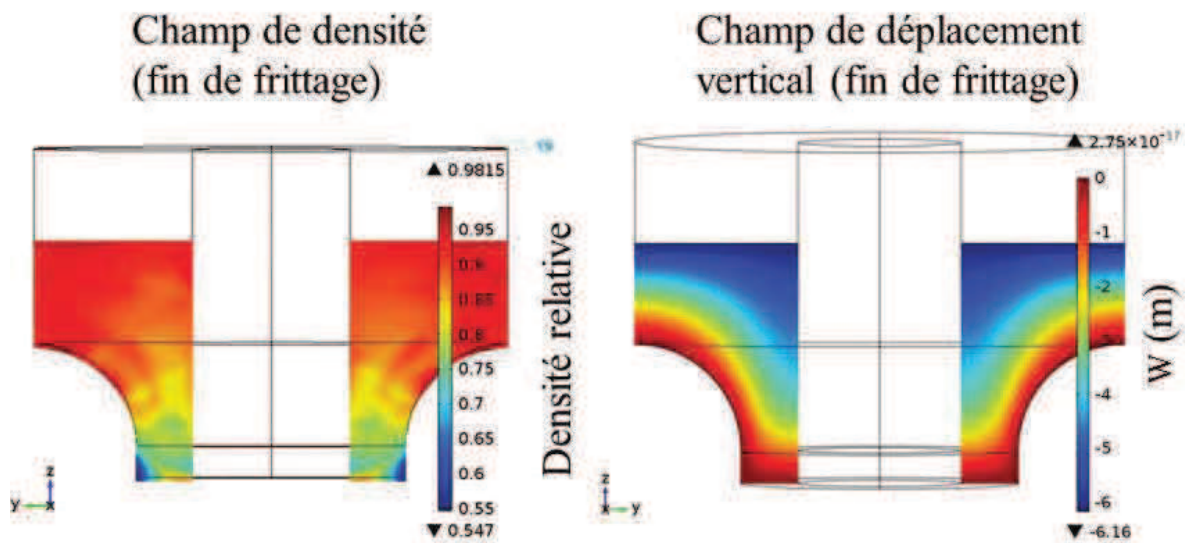


Figure V-19 Champ de densité relative et champ de déplacement vertical simulé pour la pièce ASTM.

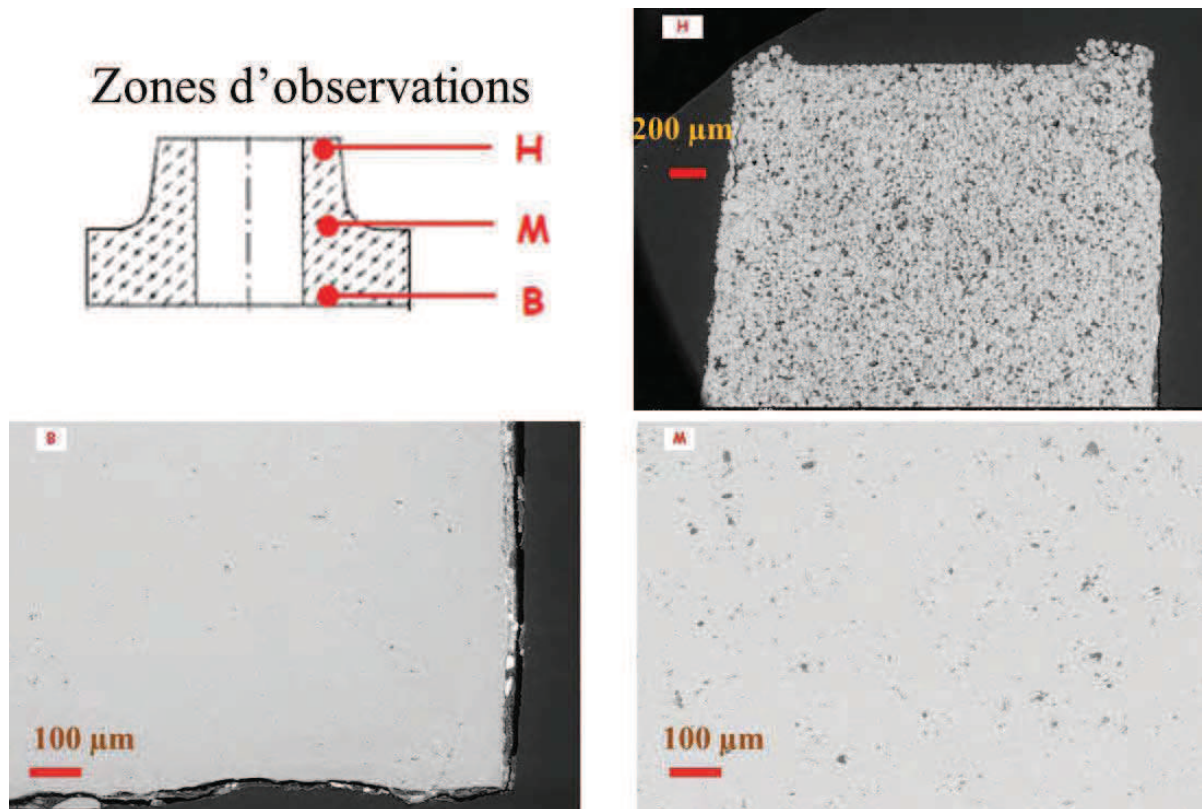


Figure V-20 Image MEB de la pièce ASTM obtenue en fin de frittage.

#### V.4.1.2 Relation entre les propriétés de fluage et les inhomogénéités de densifications

Les inhomogénéités de densification constatées pour les pièces de formes complexes sont principalement engendrées par la géométrie de la pièce et ne sont pratiquement pas influencées par les lois de comportement de fluage choisies. Pour le montrer, la simulation Figure V-21 est reprise non pas avec la loi identifiée pour l'alumine, mais avec celle déterminée pour l'alliage TA6V (cf. chapitre sur l'identification des lois de densification). Ces deux lois de fluage sont très différentes, mais le champ de densification simulé en fin de frittage est très proche de celui calculé pour l'alumine (Figure V-17). Cela confirme que les propriétés du matériau n'ont que peu d'influence sur le champ de densification à l'état final. Le modèle rapide d'identification des lois de densification (détaillé dans les parties précédentes) est donc tout particulièrement adapté à ce type d'étude où la géométrie est le principal facteur influant.

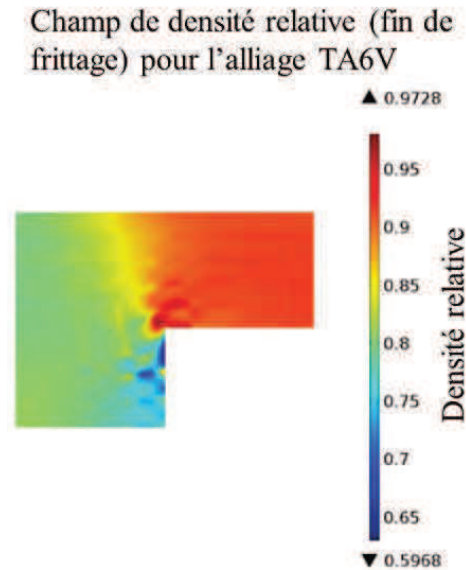


Figure V-21 Simulation de l'état de densification en fin de cycle pour la pièce cylindrique avec "marche", avec loi de fluage de l'alliage TA6V.

#### V.4.2 Approche par matériau sacrificiel

Dans cette partie, une première solution au problème de différence de hauteur est proposée. Le cas de la pièce ASTM est étudié.

##### V.4.2.1 Principe employé

Le cœur du problème d'inhomogénéité de la densification pour des pièces de forme complexes est lié aux différences de retraits. Pour homogénéiser le retrait des zones de faibles hauteurs avec le reste de la pièce, un nouveau moule a été dessiné permettant d'incorporer un anneau de poudre sacrificiel au dessous de la pièce (Figure V-22). La densification de cet anneau va permettre au piston intermédiaire de descendre, ce qui a pour effet d'allonger la distance d'écrasement des zones centrales de la pièce ayant une hauteur plus importante.

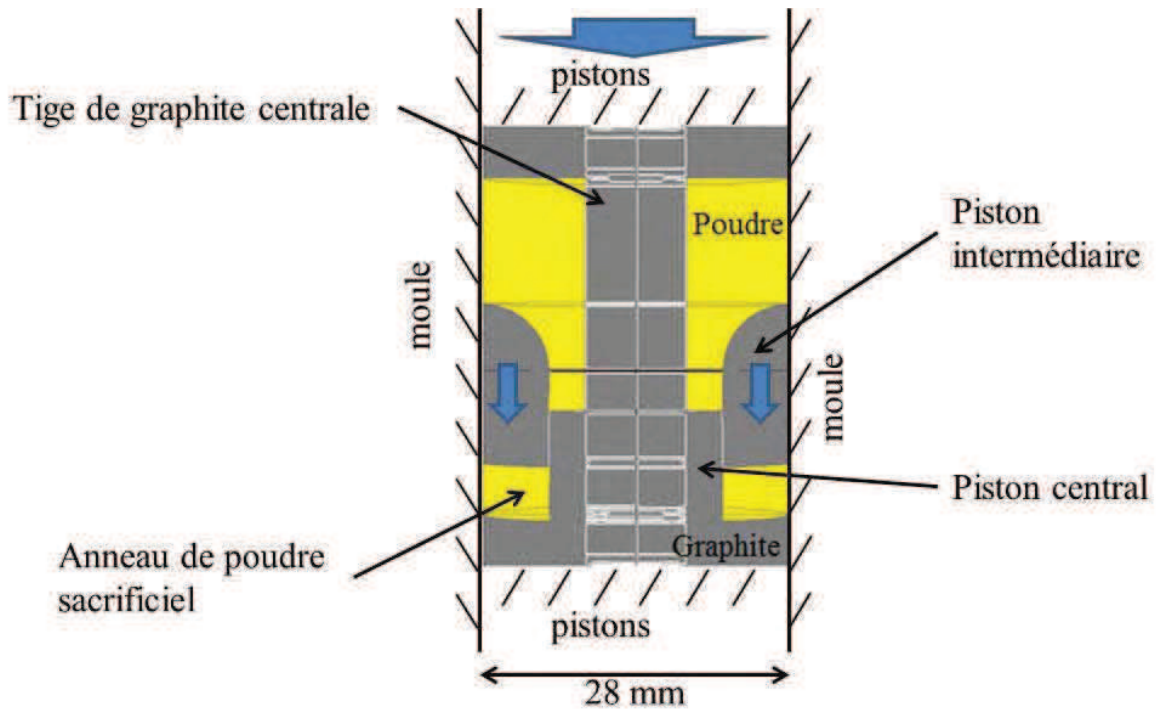


Figure V-22 Géométrie de la pièce ASTM avec anneau de poudre sacrificiel.

#### V.4.2.2 Simulations d'optimisation

La simulation de la configuration géométrique décrite précédemment est purement mécanique, seule la poudre est considérée. Le déplacement de la face du bas de la pièce et de l'anneau sacrificiel est fixé. La pression est appliquée par le haut et les faces latérales sont constituées d'une condition de non-pénétration. Le déplacement de la face supérieure de l'anneau sacrificiel ainsi que les faces supérieures du piston intermédiaire en contact avec la poudre ont un déplacement égal.

Le champ de densité relative et de déplacement simulé est reporté Figure V-23 en début et fin de frittage. Cette simulation est le résultat d'un étalonnage numérique visant à faire varier les dimensions de l'anneau sacrificiel et de la pièce, la hauteur de l'anneau sacrificiel étant ajustée jusqu'à atteindre une homogénéisation parfaite de la densification de la pièce. On constate que les lignes d'iso-déplacements sont beaucoup moins courbées et le champ de densité relative est homogène durant tout le cycle.

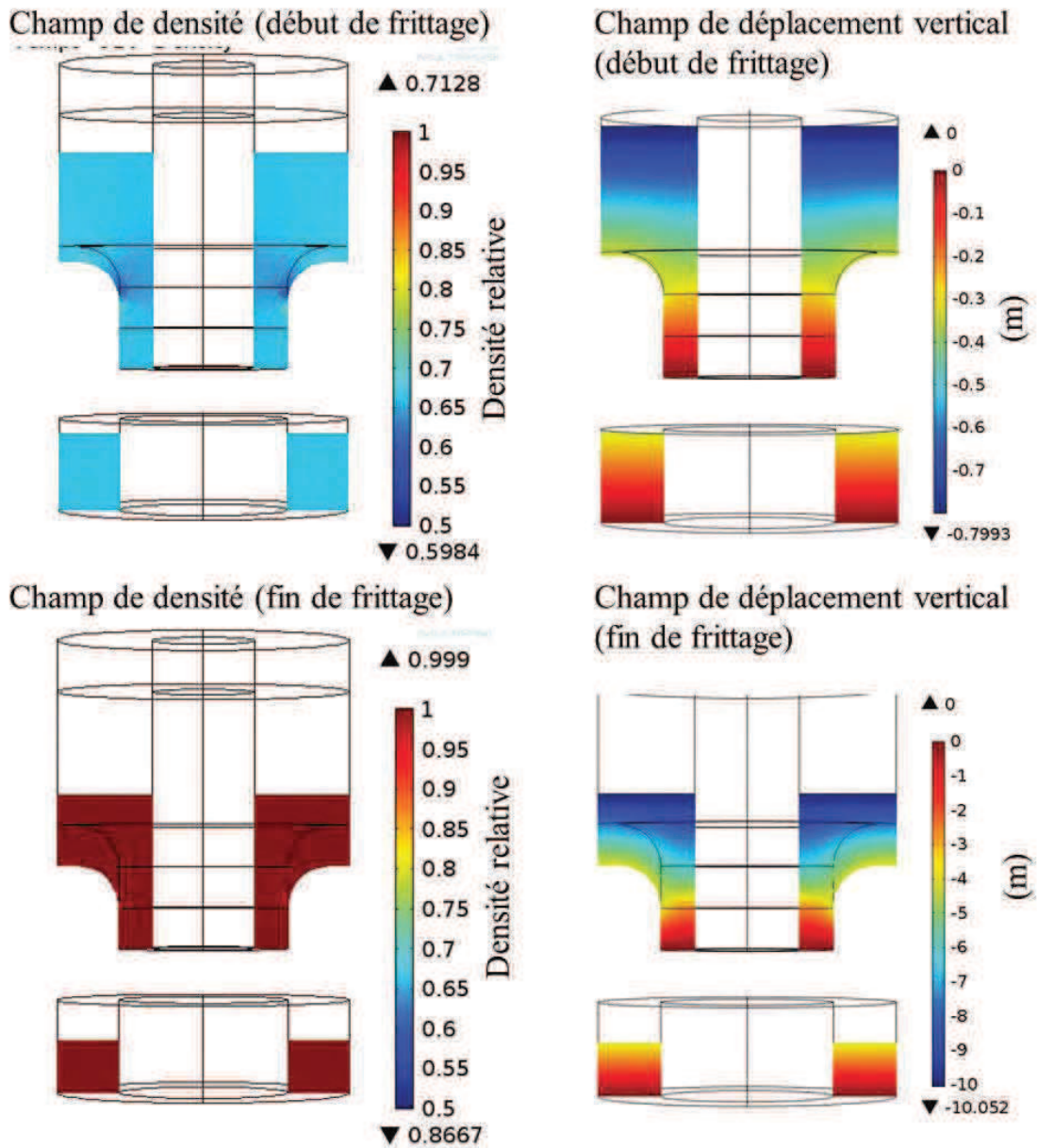


Figure V-23 Champ de densification et de déplacement simulé pour la pièce ASTM avec anneau de poudre sacrificiel.

Finalement, une simulation ETMM utilisant la géométrie présentée Figure V-24 est réalisée. Une régulation type PID est employée dans la simulation pour suivre la consigne de température en surface de matrice. Le champ des tailles de grains en fin de cycle reporté Figure V-25 indique une taille de grain moyenne de l'ordre de 3  $\mu\text{m}$ .

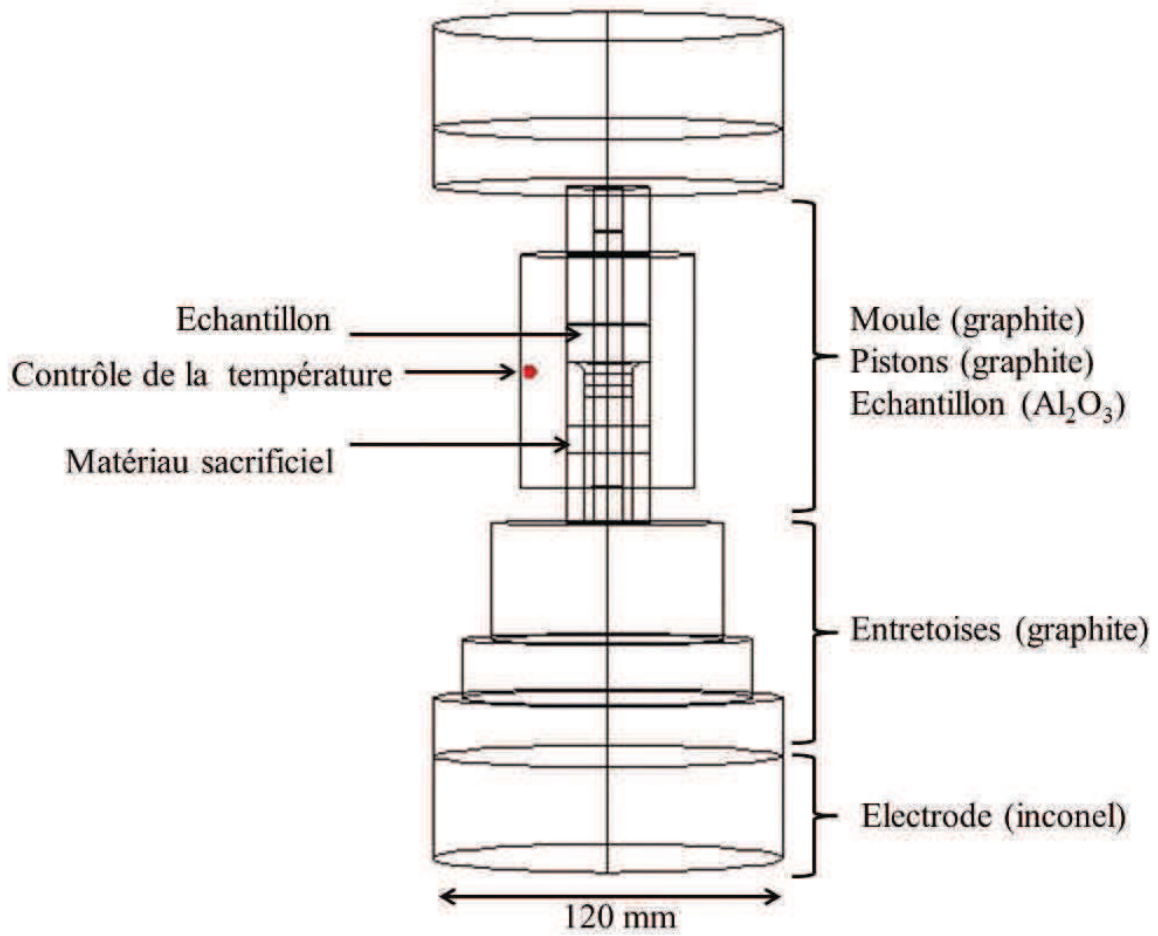


Figure V-24 Géométrie employée pour les expériences utilisant la pièce ASTM.

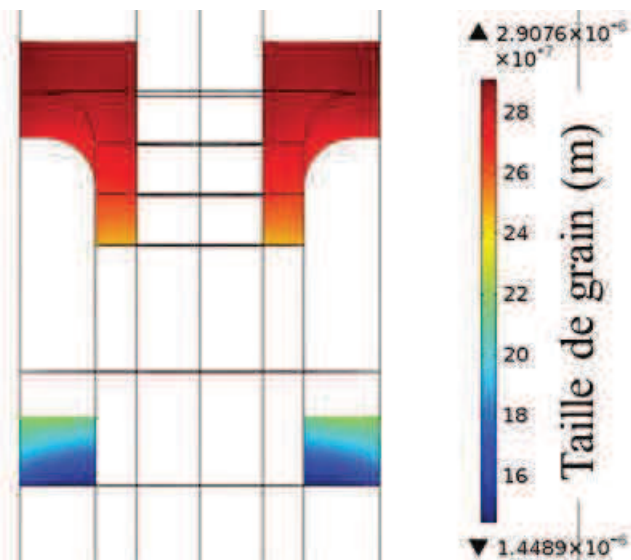


Figure V-25 Simulation ETMM du champ de taille de grains de la pièce ASTM avec anneau sacrificiel.

V.4.2.3 Résultats expérimentaux

Les essais expérimentaux utilisent la géométrie présentée Figure V-24, les cycles thermiques et la pression appliquée sont cependant légèrement modifiés pour les deux premiers essais qui sont des tests de faisabilité. Les photographies des pièces des trois essais sont reportées Figure V-26 et les informations disponibles sur les cycles et l'aspect des pièces sont rassemblées dans la Table V-2.



Figure V-26(en haut) Photographie de pièces obtenues pour les trois essais (en bas) mise en évidence de l'aspect translucide de la pièce AP379 à la lumière de soleil.

Table V-2 Conditions expérimentales, aspect des pièces, translucidité et densité relative obtenue pour les trois essais réalisés.

Nom	Force (kN)	T (°C)	Durée de palier (min)	Moment d'application de la pression	Effet tonneau inverse	Aspect de surface	Translucide	Densité relative d'Archimède (%)
AP377	18	1150	20	À chaud	Oui	Blanc	Non	97
AP378	18	1400	0	À froid	Non	Brillant	Oui	99
AP379	17	1400	5	À froid	Non	Brillant	Oui	98

Pour les essais AP377, AP378 et AP379 la densité relative mesurée est élevée. À l'exception du premier essai (AP377) les pièces obtenues ont un aspect brillant et sont translucides, comme indiqué Figure V-26 la lumière solaire parvient à traverser la pièce, preuve que l'état de densification est élevé. Les images MEB de fracture pour les essais AP378 et AP379 sont reportées Figure V-27. Les microstructures des zones H et B montrent

une densité et une taille de grain très homogène et de l'ordre de 3  $\mu\text{m}$ . La taille de grain moyenne calculée de 3  $\mu\text{m}$  par le modèle ETMM semble en bon accord avec les images MEB.

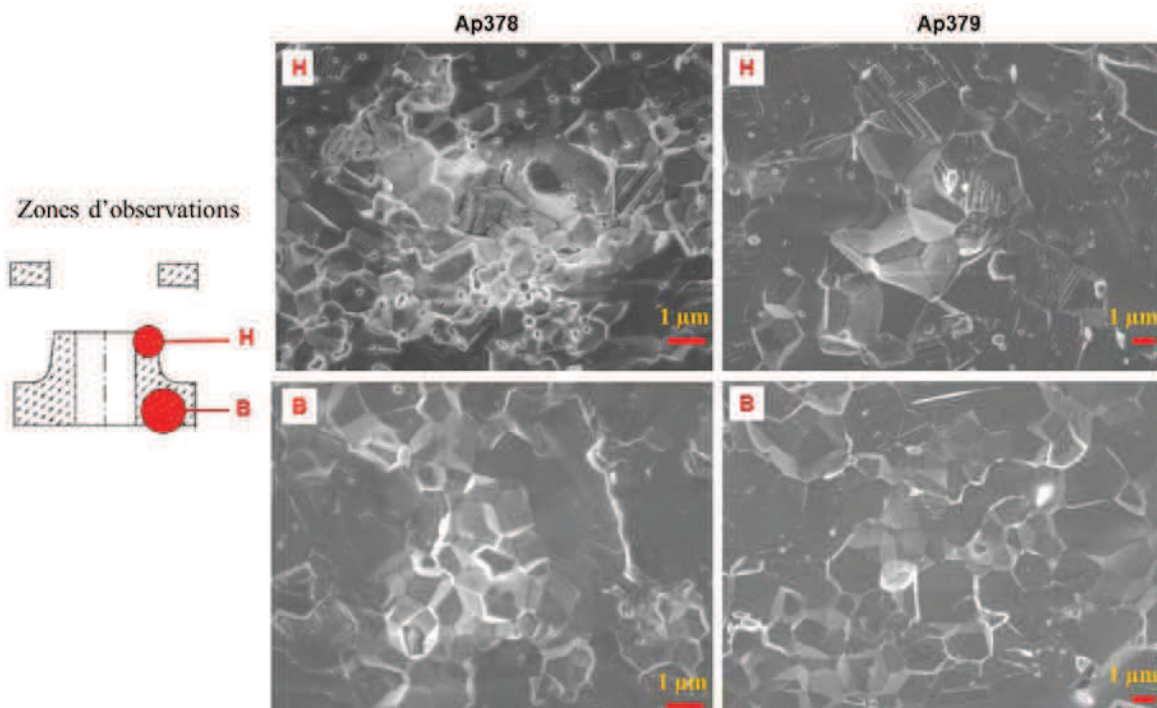


Figure V-27 Image MEB de fracture en deux endroits de la pièce ASTM.

L'approche précédente par matériau sacrificiel est intéressante, mais limitée aux matériaux possédant une faible complexité. En effet les formes possédant deux ou trois différences de hauteur peuvent être densifiées en utilisant autant de sections de poudre sacrificielles. Mais s'il y a trop de différences de hauteur ou si la hauteur de la pièce décroît de façon continue, il est alors très difficile de contourner le problème par l'approche précédente qui nécessiterait un très grand nombre de sections sacrificielles. C'est le cas d'une géométrie sphérique qui n'est constituée que de différences de hauteur. Pour résoudre ce problème, une approche différente que nous nommons "méthode d'interfaces mobiles", est employée.

#### V.4.3 Approche par la méthode d'interfaces mobiles

Cette approche consiste à placer la pièce et la contre-forme sacrificielle poreuse (matériau poreux ou pulvérulent) dans un moule cylindrique avec une couche de séparation inerte permettant le démoulage de la pièce souhaitée et des parties sacrificielles après frittage.



V.4.3.1 Cas du frittage SPS d'une sphère

Pour expliquer plus en détail cette méthode, prenons pour exemple le frittage d'une demi-sphère en poly-méthacrylate de méthyle (PMMA). Les principales étapes de la méthode sont reportées sur le schéma Figure V-28. D'abord de la poudre de PMMA est introduite dans un moule en graphite. Ensuite, à l'aide d'une contre-forme semi-elliptique obtenue par impression 3D, une empreinte est formée sur le lit de poudre. Puis, une couche de poudre de nitrure de bore (poudre inerte au frittage) est déposée à la surface de l'empreinte (spray). La cavité intérieure est alors remplie de poudre de PMMA. Enfin, l'ensemble refermé par deux pistons en graphite est placé dans le SPS pour l'étape de frittage. Pendant la densification l'interface interne de nitrure de bore va s'écraser jusqu'à obtenir une demi-sphère une fois l'ensemble dense. L'étape finale est la séparation de la contre-forme sacrificielle et de la demi-sphère. Le procédé le plus efficace que nous ayons testé est la fracturation de la pièce sacrificielle. La demi sphère est alors séparée du reste du cylindre (contre forme) par fracturation de celui-ci. Grâce à la couche de nitrure de bore, les fissures s'arrêtent nettement au niveau de la couche préservant ainsi la demi-sphère qui reste intacte.

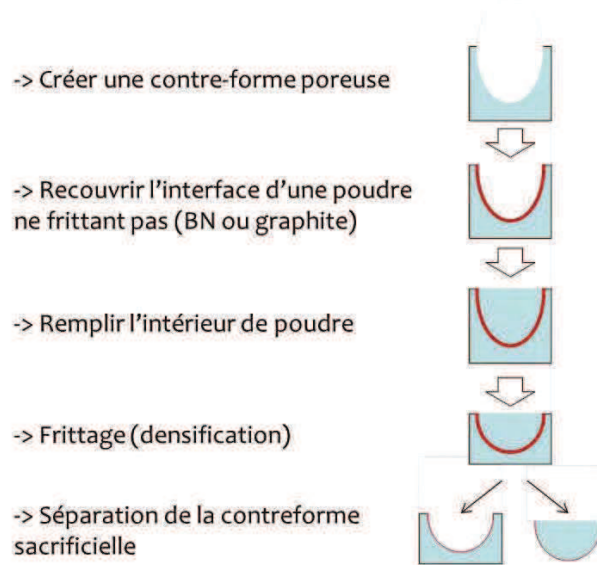


Figure V-28 Description de la méthode d'interface mobile.

Des photographies de l'étape de démoulage sont reportées Figure V-29. Ces images montrent la pièce sacrificielle fracturée et la demi-sphère qui est parfaitement préservée. Le changement de forme de l'interface occasionné par la densification est également représenté Figure V-29 (en bas à gauche). Pour cette méthode, la géométrie initiale de l'interface doit être calculée en fonction de la porosité initiale de la poudre. Ainsi l'équation

(V-11) permet de calculer l'étirement de la hauteur initiale  $h_i$  d'une pièce en fonction de sa hauteur finale  $h_f$  souhaitée et des densités relatives initiales  $d_i$  et finales  $d_f$ .

$$h_i = \frac{h_f * d_f}{d_i} \quad \text{V-11}$$

Une sphère complète est par la suite réalisée grâce à la superposition de deux montages de demi-sphères (Figure V-29).

Cette méthode appelée «méthode d'interface mobile» ou sa forme contractée méthode «mobilint» consiste simplement à placer une interface de poudre inerte à l'intérieur d'un cylindre de poudre. Cette interface est mobile au cours de la densification et la méthode prévoit d'anticiper l'écrasement de la forme initiale.

Démoulage: la couche interfaciale non frittée permet la séparation



Figure V-29 Photographies du démoulage de la demi-sphère et de la sphère complète.

#### V.4.3.2 Elaboration de formes de plus en plus complexes.

Pour éprouver la méthode « mobilint » sur d'autres formes, un cône, une pyramide et une pyramide à base étoilée sont frittés à partir d'une poudre d'aluminium en utilisant une feuille de graphite (papyex) comme couche d'interface. Avec le papyex, la méthode consiste à

donner la forme de l'interface directement au papyex par pliage, puis les zones de la pièce et les zones sacrificielles sont remplies de poudre (Figure V-30).

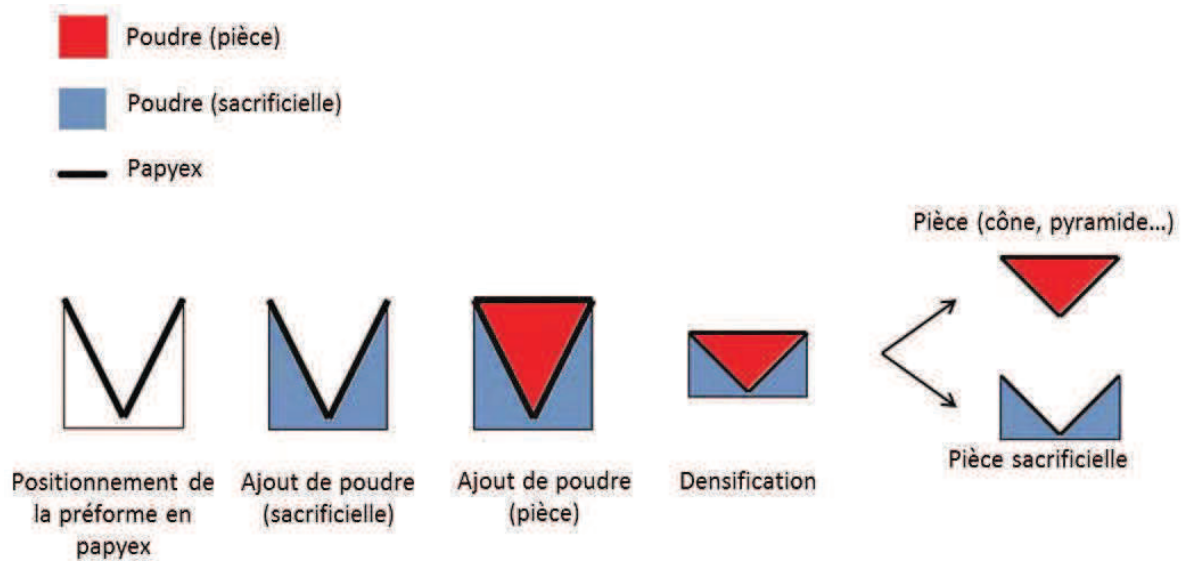


Figure V-30 Méthode d'interface mobile avec une interface de séparation en papyex.

Les pièces obtenues (Figure V-31) sont denses entre 97 et 99%, une image MEB de fracture sur la pièce sacrificielle de la pyramide (Figure V-32) révèle une microstructure avec peu de porosité et assez ductile. Il est intéressant de constater que les deux formes pyramidales possèdent toutes deux des arrêtes droites bien définies. Ce résultat est en effet difficile à atteindre par des procédés de coulage en moule sans usinage.

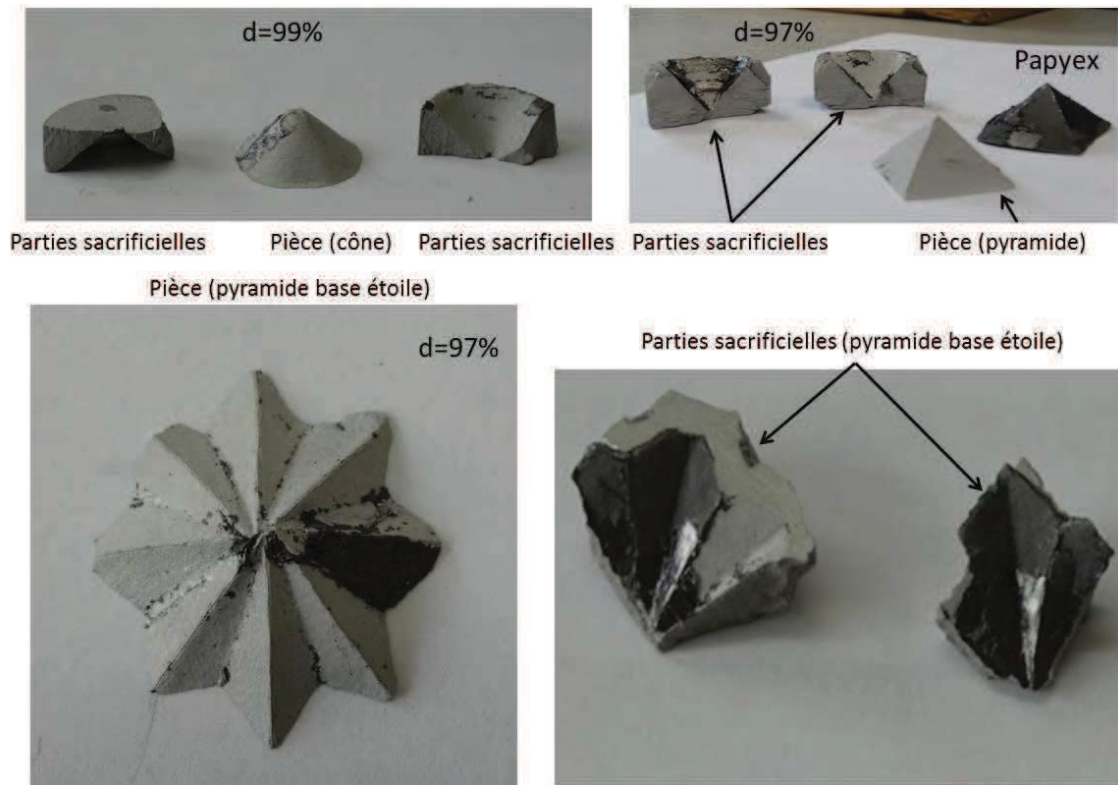


Figure V-31 Photographie des échantillons obtenus avec séparation papyex.

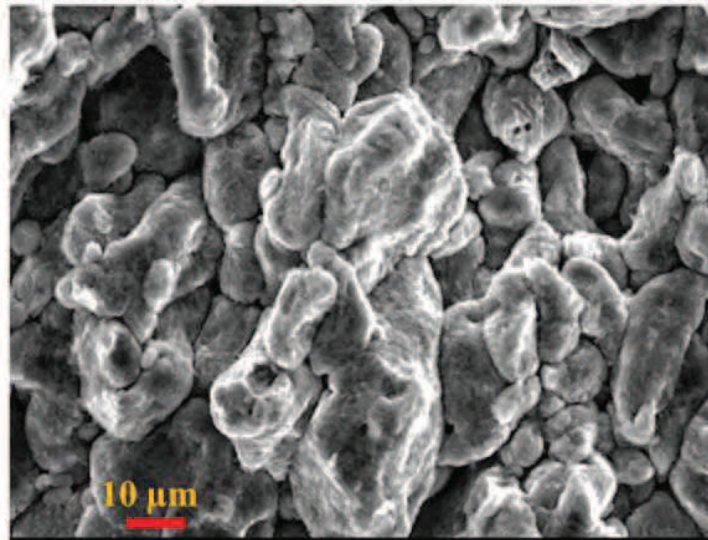


Figure V-32 Image MEB de fracture sur la partie sacrificielle de la pyramide.

#### V.4.3.3 Application de la méthode avec un matériau sacrificiel de nature différente

La méthode semble très efficace pour des poudres de même nature pour la pièce et des parties sacrificielles, mais pour diminuer les coûts des pièces sacrificielles, il est essentiel de tester la faisabilité de la méthode « mobilint » avec des poudres différentes. Pour ce test l'exemple du cône est repris avec une poudre de zircone pour le cône et une poudre d'alumine pour la pièce sacrificielle. Ces deux poudres sont choisies, car elles ont des

comportement au frittage (température de fusion et courbe de densification) relativement proches. La photographie des pièces obtenues est présentée Figure V-33, on obtient bien un cône de zircon dense à 99% et deux pièces d'alumine denses à 98%. La microstructure au centre et au bord est homogène et possède une taille de grain moyenne de l'ordre de 200 nm (Figure V-34). La possibilité de diminuer le coût des pièces sacrificielles en utilisant des matériaux différents semble possible dans la mesure où ces deux matériaux ont des courbes de densifications similaires.



Figure V-33 Pièces obtenues avec la méthode « mobilint » avec deux matériaux.

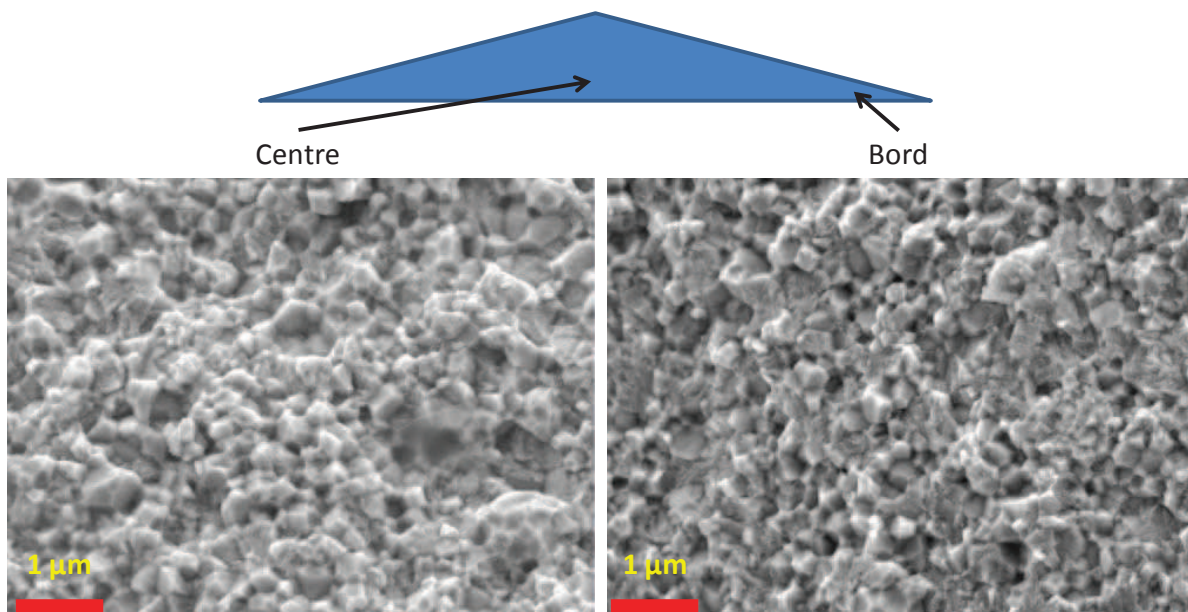


Figure V-34 Images MEB de fracture obtenues au centre et au bord du cône en zircon.

## V.5 Conclusion sur les approches forme complexe

La réalisation de pièces de formes complexes par le procédé SPS classique est difficile dès lors que les géométries des pièces ont des différences de hauteur nécessitant des retraits différents. Comme le déplacement des pistons est uniforme, les zones de hauteurs différentes sont sujettes à des inhomogénéités de densifications plus ou moins importantes.

Pour résoudre ces problèmes, une première approche consistant à équilibrer les distances de retrait par l'ajout de parties sacrificielles est employée. Les simulations mécaniques ont permis d'optimiser les dimensions de cette partie sacrificielle et donc du design du moule. Les essais expérimentaux sont très concluants, car des différences de densification de 30% sont alors réduites à quelques %. De plus, la microstructure est homogène dans toute la pièce et en bon accord avec les prédictions de la simulation ETMM. Cette méthode bien que satisfaisante reste cependant limitée aux formes moyennement complexes (ne possédant par un grand nombre de variations de hauteurs).

Pour les formes plus complexes, une autre méthode que nous appelons « méthode d'interface mobile » est envisagée. Cette méthode consiste à séparer par une interface inerte deux volumes de poudre l'un étant celui de la pièce désirée et l'autre étant celui d'une pièce sacrificielle, l'ensemble formant un cylindre. Au cours de la densification, l'interface bouge jusqu'à donner en fin de frittage la géométrie de la pièce complexe souhaitée. L'intérêt principal de cette méthode est qu'il n'y a plus de limitations de forme pour densifier totalement des pièces dans la mesure où l'on peut générer l'interface de séparation et le démoulage de la pièce. Ce système revient à effectuer un frittage classique en géométrie cylindrique en s'affranchissant des problèmes de différences de hauteurs. Outre la résolution des problèmes de densifications, l'autre avantage de cette méthode est qu'elle permet de fritter simultanément plusieurs pièces en les séparant d'autant d'interfaces que nécessaire. Les premiers essais réalisés sont très concluants, car des pièces de formes relativement complexes ont pu être obtenues avec des densifications relativement importantes et des microstructures homogènes. Cette méthode doit à l'avenir être testée sur des pièces de formes très complexes.



---

---

## **Conclusion et perspectives**

---

---





L'objectif scientifique de cette thèse est d'acquérir une meilleure compréhension de la technologie SPS. Pour ce faire nous avons développé un modèle électro-thermo-mécanique-microstructural (ETMM) à l'aide du logiciel de simulation par éléments finis COMSOL Multiphysics. Ce modèle permet de simuler le chauffage par effet Joule de l'outillage ainsi que la densification et la croissance granulaire de l'échantillon. L'objectif technologique vise l'amélioration de la productivité (temps, énergie, coût, etc.), du contrôle (température, microstructure) et de la densification des pièces. Le but final étant le design de formes complexes de densité et de microstructure contrôlées.

La première étape de la thèse a consisté en l'implémentation du modèle ETMM et l'identification expérimentale des différents paramètres de simulation.

Le modèle d'effet Joule était pré-implémenté dans le logiciel, la principale difficulté a été l'identification des résistances électriques et thermiques de contact présentes au niveau des interfaces des différentes pièces de la colonne SPS. Une méthodologie inverse est employée pour déterminer les résistances de contact à partir de mesures de température. La résistance de contact verticale piston/papyex/moule sujette à une très faible pression s'est avérée responsable d'une forte différence de température radiale ainsi que d'une élévation globale de la température, tous deux pouvant aller jusqu'à 200K. L'avantage de cette méthode est qu'elle permet d'obtenir l'ensemble des résistances de contact en un seul essai. La limite de cette méthodologie réside en son domaine de validité limité aux conditions ayant servies à son identification. Pour étendre le modèle de contact à une plus large gamme d'instrumentation, un modèle de contact étendu est identifié à partir des données d'expériences avec différentes dimensions d'outillages. L'effet de facteur d'échelle sur les résistances de contact est ainsi étudié, la vérification du modèle sur un essai indépendant révèle un bon accord des températures expérimentales/simulées ; les erreurs moyennes sont de l'ordre de 3% et l'erreur maximum n'excède pas 7%.

Un modèle de densification intégrant la microstructure basé sur les travaux d'Olevsky et d'Abouaf est implémenté et identifié par deux méthodes. La première méthode utilise des essais de fluage en compression sur éprouvettes cylindriques denses et poreuses. Cette méthode assez classique est en bon accord avec des essais indépendants de compaction type SPS. Dans une approche phénoménologique, l'autre méthode plus rapide permet de déterminer les paramètres du modèle de densification en seulement trois essais SPS instrumentés. Mais, cette dernière méthode suppose une hypothèse théorique sur les lois de densification, afin de permettre une identification plus rapide des paramètres de fluage équivalents. Cette méthode donne également de bons accords simulation/expérience et est particulièrement adaptée aux études courtes car demandant un minimum de moyens

expérimentaux. Une loi de croissance granulaire a également été identifiée ; elle a permis de mettre en avant l'interaction entre le fluage et la taille de grain, cette dernière ralentissant grandement la densification en fin de cycle.

La modélisation du frottement poudre/moule a permis de montrer que ce phénomène lorsqu'il est important peut causer de fortes inhomogénéités de densification. Une méthode d'identification du coefficient de frottement basé sur la courbure des lignes d'iso - déplacement expérimentales a montré que le frottement au contact poudre/moule, avec papyex intercalé, est négligeable. Les contacts à base de spray de poudres intercalés ont quant' à eux des valeurs de coefficients de frottement proches de 0,1.

La dernière partie est consacrée à la recherche de solutions pour l'optimisation de la technique SPS en termes de productivité et de capacité à densifier de façon homogène des pièces de formes complexes. Ces travaux utilisent les résultats du modèle ETMM identifié dans ce qui précède.

Les études sur l'amélioration de la productivité du SPS se concentrent sur la possibilité d'effectuer le frittage d'un grand nombre de pièces simultanément. Deux configurations multi - échantillons sont employées, l'une utilisant un moule avec 37 emplacements d'échantillon (configuration parallèle) et l'autre étant un empilement de trois moules pour un total de 111 échantillons (configuration série/parallèle).

La configuration parallèle a révélé la présence d'une différence de température entre les échantillons du centre (plus chauds) et ceux du bord, causant une différence de taille de grain, mais pas de différence de densification. En effet, le déplacement des pistons étant imposé par les entretoises la densification est insensible aux éventuelles différences de températures entre les échantillons. La simulation a permis de montrer qu'il est possible de corriger ce problème de différences de température en isolant électriquement certains pistons centraux.

La configuration série/parallèle présente également des problèmes d'écart de température. Ces problèmes peuvent être corrigés par l'ajout d'un moule externe permettant d'ajuster la quantité de courant passant à travers le moule central.

L'autre problème abordé concerne l'élaboration de formes complexes de densification homogène par la technologie SPS. Les pièces possédant des formes avec de grandes variations d'épaisseurs ont tendance à avoir des inhomogénéités de densification. Pour résoudre ce problème, deux approches par matériau sacrificiel sont étudiées.

Pour des pièces ne possédant qu'un nombre limité d'épaisseurs différentes, une solution consistant à équilibrer les distances de compression des zones de hauteurs différentes à l'aide de la compaction de pièces sacrificielles est étudiée. Cette approche est utilisée pour une forme possédant deux épaisseurs différentes et a permis d'obtenir des pièces denses, de microstructures homogènes.

Pour les pièces de formes très complexes possédant beaucoup de différences d'épaisseur une autre approche est employée. Cette dernière consiste à placer ensemble, la pièce complexe et ses pièces sacrificielles séparées d'une couche inerte de façon à former un assemblage cylindrique facile à densifier par la méthode SPS. Lors du frittage la forme des interfaces évolue jusqu'à tendre vers la géométrie de la pièce souhaitée. Le matériau inerte doit rester à l'état de poudre ou du moins permettre la séparation des pièces et des parties sacrificielles. Nous avons testé des interfaces inertes à base de spray de nitrure de bore et à base de papyex. Cette méthode que nous appelons "mobilint" a été testée pour la fabrication d'une sphère en PMMA (spray BN), d'un cône, d'une pyramide à base carrée puis à base étoile (papyex). Toutes ces pièces sont uniformément denses. Dans le but de tester la possibilité d'utiliser un matériau sacrificiel différent de celui de la pièce pour baisser le coût des matières perdues, une expérience avec un cône en zircone et des pièces sacrificielles en alumine a été testée expérimentalement et a permis d'obtenir un cône de zircone dense et de microstructure homogène.

L'intérêt premier de la méthode "mobilint" est qu'elle permet de densifier facilement n'importe quel type de forme (dans la mesure où l'on peut placer l'interface de séparation). L'autre avantage de cette méthode est qu'elle permet de densifier simultanément plusieurs pièces de formes plus ou moins complexes.

Les points suivants peuvent faire l'objet de futurs travaux.

Le modèle avec résistances de contact peut être étendu à un domaine d'étude encore plus large. Il serait en effet très intéressant de posséder un modèle de contact généralisé pour les configurations en graphites habituelles, ce qui permettrait à la communauté de bénéficier d'un outil de simulation performant permettant d'effectuer des simulations anticipatives sur de plus larges domaines.

Même si la méthodologie d'étalonnage présentée permet de simuler un champ de température en accord avec l'expérience, il serait intéressant de comparer les valeurs de résistances de contact obtenues avec des valeurs mesurées par un outillage spécifique pour tester les limites de cette méthode.

Concernant la partie mécanique, les méthodes d'identification des paramètres de frittages doivent être étendues à la pré-compaction à froid, un domaine pouvant dans certains cas, causer de grandes inhomogénéités de densification avant même l'étape de frittage à chaud.

Il est également envisageable de comparer les résultats obtenus avec le modèle ETMM et ceux obtenus par une approche théorique prenant en compte plusieurs physiques (diffusion, électro - migration, transition de phases, etc.), une modification du modèle pouvant en découler.

La partie consacrée à l'optimisation de la technologie SPS peut permettre les travaux suivants:

Les solutions de la partie consacrée au frittage simultané de plusieurs échantillons peuvent être testées sur différentes configurations en augmentant au maximum le nombre de pièces pouvant être densifiées simultanément, l'objectif étant de rivaliser avec des techniques telles que le frittage naturel où plusieurs milliers d'échantillons peuvent être densifiés en une fois.

Les solutions trouvées pour densifier de façon homogène des pièces de forme complexe doivent être testées sur des formes d'un haut niveau de complexité afin d'en déterminer les verrous technologiques. Une étude peut être menée sur la recherche de matériaux sacrificiels idéals, avec un faible coût et une grande facilité de mise en œuvre. Il serait également intéressant de fusionner la technique de frittage simultané de plusieurs échantillons avec les techniques de frittage de formes complexes.

Enfin, nous comptons mettre à l'épreuve les méthodes de modélisation et d'optimisation que nous avons développées sur un cas concret à vocation industrielle.

## Références :

- Abouaf, M. (1985). *Modélisation de la compaction de poudres métalliques frittées Approche par la mécanique des milieux continus*. Thèse, L'institut national polytechnique de Grenoble.
- Abouaf, M. et J. L. Chenot. (1983). modélisation de la rhéologie d'un matériau poreux Application à la densification de poudres par compression isostatique à chaud (CIC). Société française de métallurgie.
- Abouaf, M. et J. L. Chenot. (1986). A numerical model for hot deformation of metal powders 5, 121-140.
- Abouaf, M., J. L. Chenot, G. Raison, et P. Bauduin. (1988). Finite element simulation of hot isostatic pressing of metal powders. *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 25, 191-212.
- Allen, J. B. et C. Walter. (2012). Numerical Simulation of the Temperature and Stress Field Evolution Applied to the Field Assisted Sintering Technique. *ISRN Materials Science* 2012, 1-9.
- Anselmi-Tamburini, U., S. Gennari, J. E. Garay, et Z. A. Munir. (2005). Fundamental investigations on the spark plasma sintering/synthesis process: II. Modeling of current and temperature distributions. *Materials Science and Engineering: A* 394, 139-148.
- Antou, G., G. Mathieu, G. Trolliard, et A. Maître. (2009). Spark plasma sintering of zirconium carbide and oxycarbide: Finite element modeling of current density, temperature, and stress distributions. *Journal of Materials Research* 24, 404-412.
- Arzt, E. (1982). The influence of an increasing particle coordination on the densification of spherical powders. *Acta Metallurgica* 30, 1883-1890.
- Ashby, M. . et R. M. . Gentamore. (1968). The dragging of small oxide particles by migrating grain boundaries in copper. *Acta Metallurgica* 16, 1081-1092.
- Baladea, L., M. Surand, B. Viguier, et J. Ruau. (2014). Creep behavior of Ti-6Al-4V from 450°C to 600°C. *U.P.B Scientific Bulletin, Series B* 76 Iss 1.
- Bernache-Assollant, D. et J. Bonnet. (2005). Frittage : aspects physico-chimiques - Partie 1 : frittage en phase solide. In *fondamentaux-en-chimie*, Techniques de l'ingénieur.
- Bernard-Granger, G. et C. Guizard. (2007). Spark plasma sintering of a commercially available granulated zirconia powder: I. Sintering path and hypotheses about the mechanism(s) controlling densification. *Acta Materialia* 55, 3493-3504.
- Besson, J. (1990). *Simulation numérique de la mise en forme des céramiques application à la compaction isostatique à chaud*. Thèse, L'école nationale supérieure des mines de paris.
- Besson, J. et M. Abouaf. (1989). Microstructural changes in alumina during hot isostatic pressing. *Materials Science and Engineering: A* 109, 37-43.

- Bloxam, A. G. (1906). Brevet, Improved Manufacture Of Filaments Of Tungsten Or Molybdenum For Electric Incandescence Lamps.
- Bouvard, D. et E. Ouedraogo. (1987). Modelling of hot isostatic pressing: A new formulation using random variables. *Acta Metallurgica* 35, 2323-2328.
- BRISSON, E. (2014). *Etude experimentale du frittage assemblage d un composite conducteur en Ag SnO2 sur un support en cuivre par courants pulses*. Thèse, Université de Bretagne-Sud.
- Brook, R. J. (1969). Pore-Grain Boundary Interactions and Grain Growth. *Journal of the American Ceramic Society* 52, 56-57.
- Brook, R. J. (1976). Controlled grain growth in ceramic fabrication processes. *Academic Press, New York eD Wang FFY* 331-364.
- Burke, J. E. et D. Turnbull. (1952). Recrystallization and grain growth. *Progress in Metal Physics* 3, 220-292.
- Cai, Y., D. Zhao, X. Zhao, L. Chen, W. Jiang, et P. Zhai. (2009). Modeling Temperature Gradient Evolution of CoSb<sub>3</sub> Material for Thermoelectric Devices during Spark Plasma Sintering. *MATERIALS TRANSACTIONS* 50, 782-790.
- Carré, P., E. Brisson, P. Rogeon, et H. Desplats. (2010). Rapport, *Développements d'un procédé innovant d'élaboration de multimatériaux par courant pulsé* (No. T0+24). LORIENT.
- Carré, P., E. Brisson, P. Rogeon, et H. Desplats. (2014). Rapport, *Caractérisation du contact thermique : graphite-papyex-graphite, graphite-papyex-graphite*. LORIENT.
- Castañeda, P. P. (1991). The effective mechanical properties of nonlinear isotropic composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 39, 45-71.
- Cho, J. R. et H. S. Jeong. (2001). Application of upper bound method to the powder-forging of cup-shaped axisymmetric preforms for estimating punch load. *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 51, 429-448.
- Cincotti, A., A. M. Locci, R. Orrù, et G. Cao. (2007). Modeling of SPS apparatus: Temperature, current and strain distribution with no powders. *AIChE Journal* 53, 703-719.
- Clark, M. . et T. . Alden. (1973). Deformation enhanced grain growth in a superplastic Sn-1% Bi alloy. *Acta Metallurgica* 21, 1195-1206.
- Coble, R. L. (1963). A Model for Boundary Diffusion Controlled Creep in Polycrystalline Materials. *Journal of Applied Physics* 34, 1679.
- Cocks, A. C. F. (1989). Inelastic deformation of porous materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 37, 693-715.
- Cologna, M., B. Rashkova, et R. Raj. (2010). Flash Sintering of Nanograin Zirconia in <math>\leq 5\text{ s}</math> at 850°C: Rapid Communications of the American Ceramic Society. *Journal of the American Ceramic Society* 93, 3556-3559.

- Conrad, H., A. F. Sprecher, W. D. Cao, et X. P. Lu. (1990). Electroplasticity the effect of electricity on the mechanical properties of metals. *Journal of Materials Science* 42, 28-33.
- Cremer, G. D. (1944). Brevet, Sintering together powders metals such as bronze, brass or aluminium.
- D'Adrian, A. (1922). Brevet, Article of fused metallic oxide and process of producing the same.
- Duva, J. M. et P. D. Crow. (1992). The densification of powders by power-law creep during hot isostatic pressing. *Acta Metallurgica et Materialia* 40, 31-35.
- Enweani, B. N., J. W. Davis, et A. A. Haasz. (1995). Thermal diffusivity/conductivity of doped graphites. *Journal of Nuclear Materials* 224, 245-253.
- Favrot, N., J. Besson, C. Colin, et F. Delannay. (2004). Cold Compaction and Solid-State Sintering of WC-Co-Based Structures: Experiments and Modeling. *Journal of the American Ceramic Society* 82, 1153-1161.
- Fridez, J. D. (1986). *Etude structurale de la déformation superplastique d'une alumine dense à grains fins*. Thèse, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne.
- Frost, H. et M. . Ashby. (1982). Deformation-mechanism maps : the plasticity and creep of metals and ceramics. *Oxford Oxfordshire New York: Pergamon Press*.
- Geindreau, C., D. Bouvard, et P. Doremus. (1999a). Constitutive behaviour of metal powder during hot forming. *European Journal of Mechanics - A/Solids* 18, 597-615.
- Geindreau, C., D. Bouvard, et P. Doremus. (1999b). Constitutive behaviour of metal powder during hot forming. Part I: Experimental investigation with lead powder as a simulation material. *European Journal of Mechanics - A/Solids* 18, 581-596.
- German, R. M. (1996). *Sintering theory and practice*. Livre, New York: Wiley.
- Giuntini, D., E. Olevsky, C. Garcia-Cardona, A. Maximenko, M. Yurlova, C. Haines, et al. (2013). Localized Overheating Phenomena and Optimization of Spark-Plasma Sintering Tooling Design. *Materials* 6, 2612-2632.
- Grasso, S., Y. Sakka, et G. Maizza. (2009). Pressure Effects on Temperature Distribution during Spark Plasma Sintering with Graphite Sample. *MATERIALS TRANSACTIONS* 50, 2111-2114.
- Grasso, S., Y. Sakka, G. Maizza, et C. Hu. (2009). Pressure Effect on the Homogeneity of Spark Plasma-Sintered Tungsten Carbide Powder. *Journal of the American Ceramic Society* 92, 2418-2421.
- Green, R. J. (1972). A plasticity theory for porous solids. *International Journal of Mechanical Sciences* 14, 215-224.
- Guennouni, T. (1987). Yield criteria of heterogeneous materials with rigid-plastic constituents Case of porous or cracked materials. *journal of theoretical and applied mechanics* 6, 571-615.



- Guillon, O., J. Gonzalez-Julian, B. Dargatz, T. Kessel, G. Schierning, J. Räthel, et M. Herrmann. (2014). Field-Assisted Sintering Technology/Spark Plasma Sintering: Mechanisms, Materials, and Technology Developments: FAST/SPS: Mechanisms, Materials, and Technology Developments. *Advanced Engineering Materials* 16, 830-849.
- Guyot, P., G. Antou, N. Pradeilles, A. Weibel, M. Vandenhende, G. Chevallier, et al. (2014). Hot pressing and spark plasma sintering of alumina: Discussion about an analytical modelling used for sintering mechanism determination. *Scripta Materialia* 84-85, 35-38.
- Helle, A. S., K. E. Easterling, et M. F. Ashby. (1985). Hot-isostatic pressing diagrams: New developments. *Acta Metallurgica* 33, 2163-2174.
- Hillert, M. (1965). On the theory of normal and abnormal grain growth. *Acta Metallurgica* 13, 227-238.
- Holm, R. (1967). *Electric Contacts Theory and Application*. Livre, Berlin; New York: Springer-Verlag.
- Hsueh, C. H., A. G. Evans, et R. L. Coble. (1982). Microstructure development during final/intermediate stage sintering—I. Pore/grain boundary separation. *Acta Metallurgica* 30, 1269-1279.
- Inoue, K. (1965). Brevet, Electric discharge heat treatment of metals in electrolytes.
- Inoue, K. (1991). Brevet, Electric discharge heat treatment of metals in electrolytes.
- Jinka, A. G. K., M. Bellet, et L. Fourment. (1997). A new three-dimensional finite element model for the simulation of powder forging processes: application to hot forming of P/M connecting rod. *International Journal for Numerical Methods in Engineering* 40, 3955-3978.
- Kim, B.-N., K. Hiraga, K. Morita, et H. Yoshida. (2009). Effects of heating rate on microstructure and transparency of spark-plasma-sintered alumina. *Journal of the European Ceramic Society* 29, 323-327.
- Kim, K. . et Y. . Jeon. (1998). Densification behavior of 316L stainless steel powder under high temperature. *Materials Science and Engineering: A* 245, 64-71.
- Kuhn, L. T. et R. M. McMeeking. (1992). Power-law creep of powder bonded by isolated contacts. *International Journal of Mechanical Sciences* 34, 563-573.
- Langer, J., M. J. Hoffmann, et O. Guillon. (2009). Direct comparison between hot pressing and electric field-assisted sintering of submicron alumina. *Acta Materialia* 57, 5454-5465.
- Lenel, F. V. (1955). Brevet, Resistance sintering under pressure. *Journal of metals* 7, 158-167.
- Li, W., E. A. Olevsky, J. McKittrick, A. L. Maximenko, et R. M. German. (2012). Densification mechanisms of spark plasma sintering: multi-step pressure dilatometry. *Journal of Materials Science* 47, 7036-7046.

- Louat, N. . (1974). On the theory of normal grain growth. *Acta Metallurgica* 22, 721-724.
- Luo, J., Y. Sun, C. Zhang, et Z. Zhao. (2012). Thermal-electrical coupled analysis and experimental investigation on spark plasma sintering of SiC ceramics. *Journal of Wuhan University of Technology-Mater. Sci. Ed.* 27, 1120-1124.
- Maizza, G., S. Grasso, et Y. Sakka. (2009). Moving finite-element mesh model for aiding spark plasma sintering in current control mode of pure ultrafine WC powder. *Journal of Materials Science* 44, 1219-1236.
- Martin, S., R. Parekh, M. Guessasma, J. L  chelle, J. Fortin, et K. Saleh. (2015). Study of the sintering kinetics of bimodal powders. A parametric DEM study. *Powder Technology* 270, 637-645.
- Matsugi, K., H. Kuramoto, T. Hatayama, et O. Yanagisawa. (2003). Temperature distribution at steady state under constant current discharge in spark sintering process of Ti and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powders. *Journal of Materials Processing Technology* 134, 225-232.
- Matsugi, K., H. Kuramoto, O. Yanagisawa, et M. Kiritani. (2003). A case study for production of perfectly sintered complex compacts in rapid consolidation by spark sintering. *Materials Science and Engineering: A* 354, 234-242.
- Matweb. (2015). <http://www.matweb.com/>.
- McWilliams, B., J. Yu, et A. Zavaliangos. (2015). Fully coupled thermal–electric-sintering simulation of electric field assisted sintering of net-shape compacts. *Journal of Materials Science* 50, 519-530.
- McWilliams, B., A. Zavaliangos, K. C. Cho, et R. J. Dowding. (2006). The modeling of electric-current-assisted sintering to produce bulk nanocrystalline tungsten. *JOM* 58, 67-71.
- Mersen. (2015). [https://www.mersen.com/uploads/tx\\_mersen/15-speciality-graphite-materials-for-sintering-Mersen\\_10.pdf](https://www.mersen.com/uploads/tx_mersen/15-speciality-graphite-materials-for-sintering-Mersen_10.pdf).
- Mol  nat, G., L. Durand, J. Galy, et A. Couret. (2010). Temperature Control in Spark Plasma Sintering: An FEM Approach. *Journal of Metallurgy* 2010, 1-9.
- Mondalek, P. (2012). *Numerical modeling of the spark plasma sintering process*. Th  se, Ecole nationale sup  rieure des mines de Paris.
- Mondalek, P., L. Silva, et M. Bellet. (2011). A Numerical Model for Powder Densification by SPS Technique. *Advanced Engineering Materials* 13, 587-593.
- Munir, Z. A., U. Anselmi-Tamburini, et M. Ohyanagi. (2006). The effect of electric field and pressure on the synthesis and consolidation of materials: A review of the spark plasma sintering method. *Journal of Materials Science* 41, 763-777.
- Mu  oz, S. et U. Anselmi-Tamburini. (2010). Temperature and stress fields evolution during spark plasma sintering processes. *Journal of Materials Science* 45, 6528-6539.
- Mu  oz, S. et U. Anselmi-Tamburini. (2013). Parametric investigation of temperature distribution in field activated sintering apparatus. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology* 65, 127-140.

- Nicolle, C. (1999). *Mise en forme de poudres de bore par compaction isostatique à chaud Détermination des propriétés rhéologiques et simulation numérique du procédé*. Thèse, Université de Bourgogne.
- Olevsky, E. A. (1998). Theory of sintering: from discrete to continuum. *Materials Science and Engineering: R: Reports* 23, 41-100.
- Olevsky, E. A., W. L. Bradbury, C. D. Haines, D. G. Martin, et D. Kapoor. (2012). Fundamental Aspects of Spark Plasma Sintering: I. Experimental Analysis of Scalability. *Journal of the American Ceramic Society* 95, 2406-2413.
- Olevsky, E. A. et L. Froyen. (2009). Impact of Thermal Diffusion on Densification During SPS. *Journal of the American Ceramic Society* 92, S122-S132.
- Olevsky, E. A., C. Garcia-Cardona, W. L. Bradbury, C. D. Haines, D. G. Martin, et D. Kapoor. (2012). Fundamental Aspects of Spark Plasma Sintering: II. Finite Element Analysis of Scalability. *Journal of the American Ceramic Society* 95, 2414-2422.
- Olevsky, E. et L. Froyen. (2006). Constitutive modeling of spark-plasma sintering of conductive materials. *Scripta Materialia* 55, 1175-1178.
- Orrù, R., R. Licheri, A. M. Locci, A. Cincotti, et G. Cao. (2009). Consolidation/synthesis of materials by electric current activated/assisted sintering. *Materials Science and Engineering: R: Reports* 63, 127-287.
- Pavia, A. (2012). *Études fondamentales pour la compréhension des mécanismes de densification des matériaux par la technologie Spark Plasma Sintering*. Thèse, Université de Toulouse.
- Pavia, A., L. Durand, F. Ajustron, V. Bley, G. Chevallier, A. Peigney, et C. Estournès. (2013). Electro-thermal measurements and finite element method simulations of a spark plasma sintering device. *Journal of Materials Processing Technology* 213, 1327-1336.
- Rahaman, M. N. (2008). *Sintering of ceramics*. Livre, Boca Raton, FL: CRC Press.
- Raichenko, A. I. et E. S. Chernikova. (1989). A mathematical model of electric heating of the porous medium using current-supplying electrode/punches. *Soviet Powder Metallurgy and Metal Ceramics* 28, 365-371.
- Ranjit, K. M., N. S. Mahesh, et M. I. Anwar. (2012). Numerical Analysis of Powder Compaction to Obtain High Relative Density in '601AB' Aluminum Powder. *SAS TECH* 11, 79-84.
- Rao, A. S. et A. C. D. Chaklader. (1972). Plastic Flow During Hot-Pressing. *Journal of the American Ceramic Society* 55, 596-601.
- Rao, S. S. (2011). *The Finite Element Method in Engineering*, Livre, 5. ed. Amsterdam: Elsevier, Butterworth-Heinemann.
- Rappaz, M., M. Bellet, et M. Deville. (1998). *Traité des Matériaux: Modélisation numérique en science et génie des matériaux*, Presses Polytechniques et Universitaires Romandes., Vol. 10.

- Rasp, T., T. Kraft, et H. Riedel. (2013). Discrete element study on the influence of initial coordination numbers on sintering behaviour. *Scripta Materialia* 69, 805-808.
- Santanach, J. G., A. Weibel, C. Estournès, Q. Yang, C. Laurent, et A. Peigney. (2011). Spark plasma sintering of alumina: Study of parameters, formal sintering analysis and hypotheses on the mechanism(s) involved in densification and grain growth. *Acta Materialia* 59, 1400-1408.
- Scherer, G. W. (1977). Sintering of Low-Density Glasses: I, Theory. *Journal of the American Ceramic Society* 60, 236-239.
- Shinagawa, K. (2014). Simulation of grain growth and sintering process by combined phase-field/discrete-element method. *Acta Materialia* 66, 360-369.
- Skorohod, V. V. (1972). Rheological basis of the theory of sintering. *Naukova Dumka, Kiev*.
- Sofronis, P. et R. M. McMeeking. (1992). Creep of Power-Law Material Containing Spherical Voids. *Journal of Applied Mechanics* 59, S88.
- Spears, M. A. et A. G. Evans. (1982). Microstructure development during final/ intermediate stage sintering—II. Grain and pore coarsening. *Acta Metallurgica* 30, 1281-1289.
- Srivastava, A. et A. Needleman. (2013). Void growth versus void collapse in a creeping single crystal. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 61, 1169-1184.
- Surand, M. (2013). *Etude du comportement viscoplastique en traction et en fluage de l'alliage TA6V de 20°C à 600°C*. Thèse, Université de Toulouse.
- Tagai, H. et T. Zisner. (1968). High-Temperature Creep of Polycrystalline Magnesia: I, Effect of Simultaneous Grain Growth \*. *Journal of the American Ceramic Society* 51, 303-310.
- Taylor, G. F. (1933). Brevet, Apparatus for making hard metals compositions.
- Tiwari, D., B. Basu, et K. Biswas. (2009). Simulation of thermal and electric field evolution during spark plasma sintering. *Ceramics International* 35, 699-708.
- Tokita, M. (2002). Brevet, Rotary table type electric pressure sintering apparatus.
- Vanmeensel, K., A. Laptev, J. Hennicke, J. Vleugels, et O. Van der Biest. (2005). Modelling of the temperature distribution during field assisted sintering. *Acta Materialia* 53, 4379-4388.
- Vanmeensel, K., A. Laptev, O. Van der Biest, et J. Vleugels. (2007). Field assisted sintering of electro-conductive ZrO<sub>2</sub>-based composites. *Refereed Reports IX Conference & Exhibition of the European Ceramic Society/IX Conference & Exhibition of the European Ceramic Society* 27, 979-985.
- Venkatachari, K. R. et R. Raj. (1986). Superplastic Flow in Fine-Grained Alumina. *Journal of the American Ceramic Society* 69, 135-138.
- Voisin, T., L. Durand, N. Karnatak, S. Le Gallet, M. Thomas, Y. Le Berre, et al. (2013). Temperature control during Spark Plasma Sintering and application to up-scaling and complex shaping. *Journal of Materials Processing Technology* 213, 269-278.

- Wang, C., L. Cheng, et Z. Zhao. (2010). FEM analysis of the temperature and stress distribution in spark plasma sintering: Modelling and experimental validation. *Computational Materials Science* 49, 351-362.
- Wang, J. et R. Raj. (1990). Estimate of the Activation Energies for Boundary Diffusion from Rate-Controlled Sintering of Pure Alumina, and Alumina Doped with Zirconia or Titania. *Journal of the American Ceramic Society* 73, 1172-1175.
- Wang, X., S. R. Casolco, G. Xu, et J. E. Garay. (2007). Finite element modeling of electric current-activated sintering: The effect of coupled electrical potential, temperature and stress. *Acta Materialia* 55, 3611-3622.
- Wang, Y. C., Z. Y. Fu, et W. M. Wang. (2003). Numerical Simulation of the Temperature Field in Sintering of BN by SPS. *Key Engineering Materials* 249, 471-476.
- Weintraub, G. et H. Rush. (1913). Brevet, Process and apparatus for sintering refractory materials.
- Wolff, C. (2011). *Modélisation du processus thermo électro mécanique de frittage flash*. Université Paul Verlaine de Mertz.
- Wolff, C., S. Mercier, H. Couque, et A. Molinari. (2012). Modeling of conventional hot compaction and Spark Plasma Sintering based on modified micromechanical models of porous materials. *Mechanics of Materials* 49, 72-91.
- Wu, Y., X. An, et F. Huang. (2014). DEM simulation on packing densification of equal spheres under compression. *Materials Research Innovations* 18, S4-1082-S4-1086.
- Xue, Y., L. H. Lang, G. L. Bu, et L. Li. (2011). Densification modeling of titanium alloy powder during hot isostatic pressing. *Science of Sintering* 43, 247-260.
- Yoneya, M. et T. Ikeshoji. (2001). A Numerical Calculation Method Advantageous for Complex Boundary Problems. An Application to the Pulse Discharge Sintering Process. *MATERIALS TRANSACTIONS* 42, 2165-2171.
- Yovanovich, M. M. (2005). Four decades of research on thermal contact, gap, and joint resistance in microelectronics. *IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies* 28, 182-206.
- Yucheng, W. et F. Zhengyi. (2002). Study of temperature field in spark plasma sintering. *Materials Science and Engineering: B* 90, 34-37.
- Zavaliangos, A., J. Zhang, M. Krammer, et J. R. Groza. (2004). Temperature evolution during field activated sintering. *Materials Science and Engineering: A* 379, 218-228.
- Zhang, J. et A. Zavaliangos. (2011). Discrete Finite-Element Simulation of Thermoelectric Phenomena in Spark Plasma Sintering. *Journal of Electronic Materials* 40, 873-878.
- Zhao, J. et M. P. Harmer. (1988a). Effect of Pore Distribution on Microstructure Development: II, First- and Second-Generation Pores. *Journal of the American Ceramic Society* 71, 530-539.
- Zhao, J. et M. P. Harmer. (1988b). Effect of Pore Distribution on Microstructure Development: I, Matrix Pores. *Journal of the American Ceramic Society* 71, 113-120.

## **Spark Plasma Sintering : couplage entre les approches Modélisation, Instrumentation et Matériaux**

Le "Spark Plasma Sintering" est un procédé innovant qui permet de densifier, assembler, forger... tous types de matériaux avec des cinétiques très rapides. Cependant, il nécessite des améliorations pour le contrôle des températures, l'homogénéité microstructurale pour des pièces de formes complexes... et de productivité industrielle. Pour résoudre ces problèmes, un modèle électro-thermo-mécanique-microstructural est identifié : i) pour la partie Thermo-Electrique une instrumentation fine a permis par une approche inverse d'évaluer les résistances de contacts, ii) par essais in-situ de fluage et de compression pour la partie mécanique-microstructurale. Il a permis de trouver des solutions pertinentes pour élaborer des pièces – de microstructure homogène – simultanément en grand nombre (modification du passage du courant électrique) - de formes complexes (intervention de pièces sacrificielles).

Mots clés: Spark Plasma Sintering, frittage, formes complexes, modélisation, fluage

## **Spark Plasma Sintering: coupling between the approaches of Modelling, Instrumentation and Materials**

The "Spark Plasma Sintering" process allows very high consolidation kinetics (densification, assembly, forging) of materials (powder, porous, nanostructured). However, some difficulties remains on this innovative process, particularly in terms of temperature control, microstructural homogeneity especially for complex shapes ... and industrial productivity. To solve these problems, an electro-thermo-mechanical-microstructural model is identified: i) using a thin instrumentation of the machine for the Thermo-Electric part including a reverse approach to evaluate the contact resistances, ii) by in situ creep and compression tests for mechanical microstructural-part. The resulting model has helped to find solutions for microstructural homogenization of the parts, for simultaneously densify of large numbers of parts (modifying the flow of electric current) and/or complex shapes (intervention sacrificial parts).

Keywords: Spark Plasma Sintering, sintering, complex shapes, modeling, creep