



HAL
open science

Influence de la morphologie tridimensionnelle sur le comportement mécanique de réfractaires électrofondus

Kamel Madi, Samuel Forest, Michel Boussuge, Sylvain Gailliègue, E. Lataste, Jean-Yves Buffiere, D. Bernard, Dominique Jeulin

► **To cite this version:**

Kamel Madi, Samuel Forest, Michel Boussuge, Sylvain Gailliègue, E. Lataste, et al.. Influence de la morphologie tridimensionnelle sur le comportement mécanique de réfractaires électrofondus. Matériaux 2006, 2006, Dijon, France. 10 p. hal-00144475

HAL Id: hal-00144475

<https://hal.science/hal-00144475>

Submitted on 3 May 2007

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.

Influence de la morphologie tridimensionnelle sur le comportement mécanique de réfractaires électrofondus

Kamel Madi¹, Samuel Forest¹, Michel Boussuge¹, Sylvain Gailliègue¹, E. Lataste³, J.-Y. Buffière³, D. Bernard⁴ et D. Jeulin²

(1) Centre des Matériaux - UMR CNRS 7633, Ecole des Mines de Paris, B.P. 87, 91003 Evry, France

(2) Centre des Matériaux - Centre de Morphologie Mathématique - UMR CNRS 7633, Ecole des Mines de Paris, B.P. 87, 91003 Evry, France (3) GEMPPM, INSA Lyon / Bat. St Exupéry / 20 Av. Albert Einstein F-69621, Villeurbanne cedex, France (4) Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux, ICMCB/ UPR CNRS 9048 / 87, Av. du Dr Albert SCHWEITZER, 33608 PESSAC Cedex, France

1 Introduction

Le verre est un matériau qui connaît un réel essor. La demande accrue de nouvelles formulations pour atteindre des hauts niveaux de qualité (verre pour écrans plasma et LCD) impose des défis toujours plus grands pour la conception et l'optimisation des fours verriers. Les réfractaires électrofondus sont les candidats idéaux pour répondre à ces exigences. Leur procédé d'élaboration (électrofusion), proche de la fonderie des métaux, leur confère une microstructure tout à fait originale, très différente des microstructures obtenues par les procédés plus classiques de l'industrie céramique. Ces dernières années, les réfractoristes se sont aperçus que la faisabilité des produits était étroitement liée à leur comportement thermomécanique, particulièrement lors de l'étape de "recuisson", ou refroidissement contrôlé des blocs, étape critique qui met en jeu des phénomènes complexes dans le matériau.

Dans le cadre du programme de recherche PROMETHEREF (PROpriétés MEcaniques et THERmomécaniques des REfractaires) (Boussuge, 2003; Boussuge, 2004), dont cette thèse fait partie, cinq laboratoires et trois partenaires industriels se sont associés pendant quatre ans pour étudier les propriétés thermomécaniques d'une gamme de réfractaires. L'objectif de cette thèse est d'étudier les relations entre les propriétés mécaniques macroscopiques des réfractaires électrofondus, responsables de leurs propriétés d'usage, et leur structure microscopique, telle qu'elle résulte de leur procédé d'élaboration.

Comprendre, à l'échelle de la microstructure, l'origine et les actions des phénomènes impliqués lors de l'étape de "recuisson" est déterminant pour améliorer la faisabilité des matériaux, augmenter la durée de vie des fours verriers et le niveau de qualité des verres produits. In fine, la compréhension de l'influence de la morphologie des phases sur le comportement mécanique des réfractaires électrofondus permettra de formuler de nouveaux matériaux dans le sens d'une amélioration du couple faisabilité-fonctionnalité (microstructure tailoring).

Dans ce papier nous étudions, dans un premier temps, la morphologie réelle tridimensionnelle des réfractaires électrofondus, caractérisée par la technique de microtomographie par rayons X, à l'ESRF, au synchrotron de Grenoble. Dans un second temps, nous proposons de modéliser une partie des phénomènes impliqués lors du refroidissement : fluage, changement de phase de la zircone, microfissuration (Massard et al., 2004). Nous simulons la fin du refroidissement en conditions viscoplastiques, en se plaçant en dessous du changement de phase de la zircone, de 800°C à l'ambiante. La méthodologie utilisée est basée sur une approche numérique micro-macro. Nous appliquons la méthode des éléments finis à la morphologie réelle des matériaux.

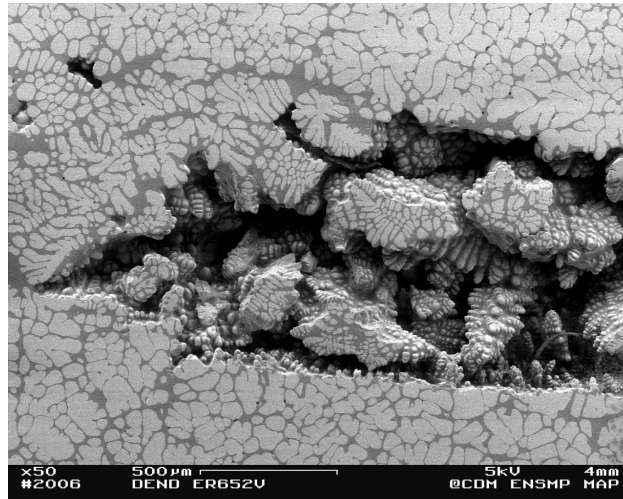


FIG. 1 – Observations de la microstructure du matériau ER1195 : vue en coupe et à coeur de la microstructure.

2 Microstructure

2.1 Observations microstructurales

La microstructure en coupe du matériau de l'étude (appellation commerciale ER1195), illustrée en figure 1, présente deux constituants :

- une phase cristallisée, sous forme de grains individualisés constitués de zircone représentant environ 88% en fraction volumique, qui conserve un comportement élastique jusqu'à de hautes températures,
- une phase vitreuse entourant les grains de zircone (12% en fraction volumique, température de transition vitreuse de 780°C), et dont le comportement mécanique évolue, lors d'une montée en température, de l'élasticité linéaire à l'élastoviscoplasticité.

L'observation d'une coupe bidimensionnelle semble donc illustrer une microstructure constituée de "grains" de zircone, séparés par une phase vitreuse, similaire à une microstructure de matériau fritté.

Néanmoins, cette conclusion ne reflète pas vraiment la réalité cachée du matériau. La microstructure des réfractaires de l'étude est en fait plus complexe qu'elle n'y paraît. Rappelons que les réfractaires électrofondus sont fabriqués par un procédé qui utilise des technologies très proches de la fonderie des métaux. La microstructure de ces matériaux est obtenue après solidification et refroidissement lent de mélange d'oxydes liquides. Dans le cas de la zircone et pour des vitesses de refroidissement de type industriel, nous observons généralement un mode de cristallisation dendritique (Alper, 1966; Gaubil, 1996). La figure 1 illustre également une vue à coeur de la microstructure où l'on peut observer des dendrites disposées sous forme de paquets et qui permet de mieux se rendre compte de la complexité du matériau de l'étude. Si, sur une simple coupe 2D, l'allure de la microstructure s'apparente à celle d'un fritté, la réalité est beaucoup plus complexe (figure 3).

2.2 Résultats expérimentaux

Les résultats d'essais de fluage en compression à haute température (1300°C), pour de faibles contraintes (< 5MPa) mettent en évidence un fluage secondaire peu dépendant du pourcentage de phase vitreuse et de la contrainte appliquée (Massard, 2005). De plus, même à plus de 700°C au dessus de la température de transition vitreuse du verre (ce dernier est alors tellement fluide qu'il exsude naturellement hors du matériau sous l'effet de pressions gazeuses internes), la



FIG. 2 – Représentation 3D d'un cylindre obtenu, pour le matériau ER1195, par la technique de microtomographie par rayons X au synchrotron de Grenoble à l'ESRF. La zircone est en jaune et la phase vitreuse en noir. Les dimensions du cylindre sont : $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m} \times 1433 \mu\text{m}$ (714 pixels x 714 pixels x 2048 pixels).

résistance au fluage du matériau biphasé demeure excellente, particulièrement en compression. Il semble donc que le comportement mécanique du matériau soit fortement influencé par l'arrangement tridimensionnel des phases qui le constituent, qui s'oppose au glissement.

2.3 Représentation 3D

Afin de disposer d'une représentation 3D de notre matériau, nous avons utilisé la microtomographie par rayons X (mode absorption) au synchrotron de Grenoble, à l'ESRF. La figure 2 illustre un exemple d'une image 3D de la microstructure du réfractaire obtenue sur la ligne ID19 avec une résolution de $0.7 \mu\text{m}$. A partir de ces coupes tomographiques, à l'aide d'outils d'analyse d'images et d'un algorithme de morphologie mathématique, dont le principe repose sur la reconstruction géodésique d'un ensemble binaire, nous avons étudié la connectivité tridimensionnelle des phases (calculs de percolation géométrique) (Madi et al., 2005; Madi et al., 2006). Ces calculs ont mis en évidence que les deux phases sont totalement percolantes dès une distance de $50 \mu\text{m}$. Si ce résultat est assez classique dans le cas de la phase intergranulaire de céramiques frittées, l'existence d'un squelette continu de zircone constitue une différence importante par rapport à un matériau granulaire classique. Ce squelette de zircone est assuré par une forte imbrication des dendrites (figure 3) et joue un rôle prépondérant sur la résistance au fluage particulièrement importante du matériau.

3 Simulation de la fin du refroidissement

Dans cette section, nous étudions le refroidissement du matériau ER1195 de 800°C à l'ambiante en prenant en compte la viscoplasticité de la phase vitreuse. La zircone est supposée élastique. Nous étudions les contraintes résiduelles dans le matériau à la fin du refroidissement ainsi que les risques de microfissuration au cours du refroidissement.



FIG. 3 – Connectivité de la zircone : représentation 3D des parties connexes de la zircone (dimensions : $350 \mu\text{m} \times 350 \mu\text{m} \times 1433 \mu\text{m}$).

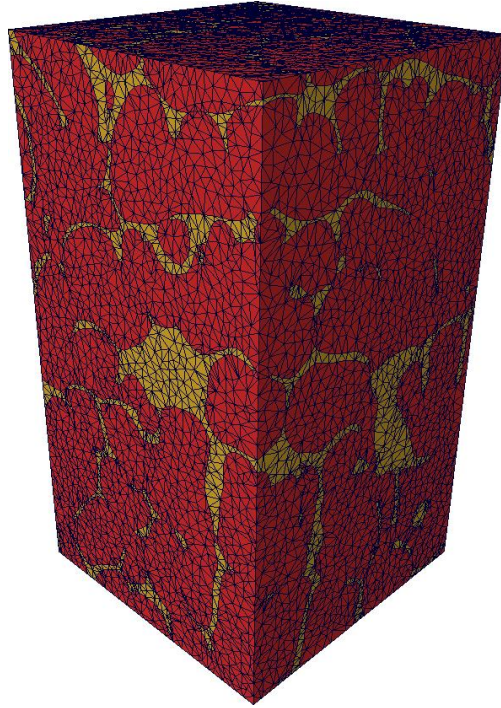


FIG. 4 – Maillage 3D de l'agrégat de l'étude (matériau ER1195) de dimensions : $336 \mu\text{m} \times 310 \mu\text{m} \times 700 \mu\text{m}$. La zircone est en rouge et la phase vitreuse en jaune. Les éléments sont des tétraèdres quadratiques. Le maillage contient 1229967 noeuds (901813 tétraèdres).

3.1 Maillage

Ce paragraphe décrit la procédure que nous avons utilisée pour construire des maillages volumiques à partir des coupes tomographiques de notre matériau. La procédure de maillage comporte trois étapes importantes :

- (i) Segmentation : cette étape consiste à séparer les phases en présence et est réalisée à l'aide d'un seuillage manuel (aisé dans notre cas grâce au bon contraste entre la zircone et la phase vitreuse).
- (ii) Construction de l'isosurface : frontière qui sépare les deux phases en présence. A l'aide d'un algorithme de reconstruction de surface (Marching Cube), implémenté dans le logiciel Amira (Amira, 1997), il est possible de détecter cette frontière et de la définir numériquement par un maillage constitué de triangles.
- (iii) Maillage 3D : à l'aide d'un algorithme adéquat implémenté dans Amira, un maillage volumique (éléments tétraédriques) est finalement construit, à partir du maillage surfacique (figure 4).

3.2 Propriétés des constituants

La zircone est supposée élastique. Les données que nous utilisons pour la valeur du module d'Young de la zircone en fonction de la température sont issues de la littérature (Yeugo-Fogaing, 2006). La figure 5 illustre son évolution en fonction de la température. Le coefficient de dilatation de la zircone vaut $9 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ (Yeugo-Fogaing, 2006).

Nous faisons l'hypothèse que la phase vitreuse a un comportement purement élastique pour une température inférieure à celle de sa transition vitreuse (780°C) et qu'elle se comporte comme un fluide newtonien pour des températures supérieures. Nous avons approché le fluage de la phase vitreuse par une loi puissance de type Norton avec $n = 1$ et K , identifiée à partir de la courbe de viscosité expérimentale du verre représentée en figure 6. Le module d'Young de la phase vitreuse de synthèse a été mesuré par Edwige Yeugo-Fogaing en utilisant la technique

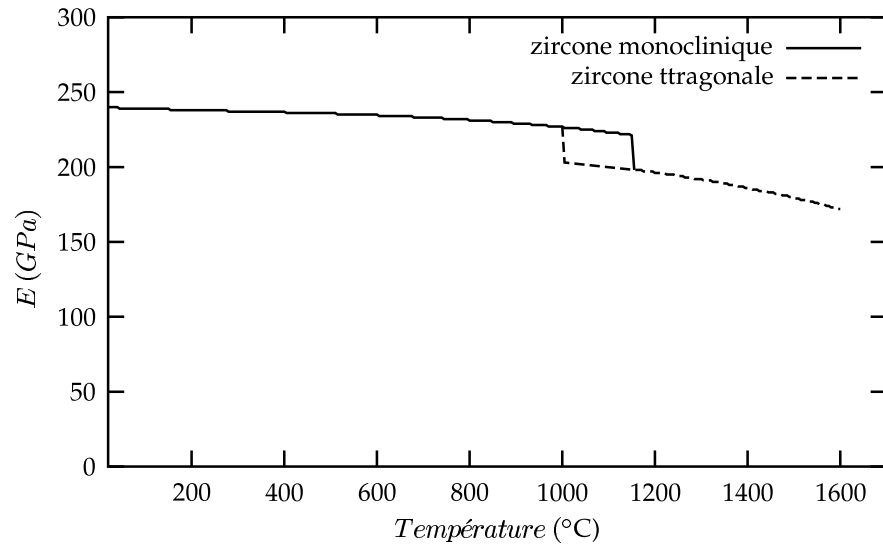


FIG. 5 – Module d'Young de la zirconie en fonction de la température (GPa) (Yeugo-Fogaing, 2006).

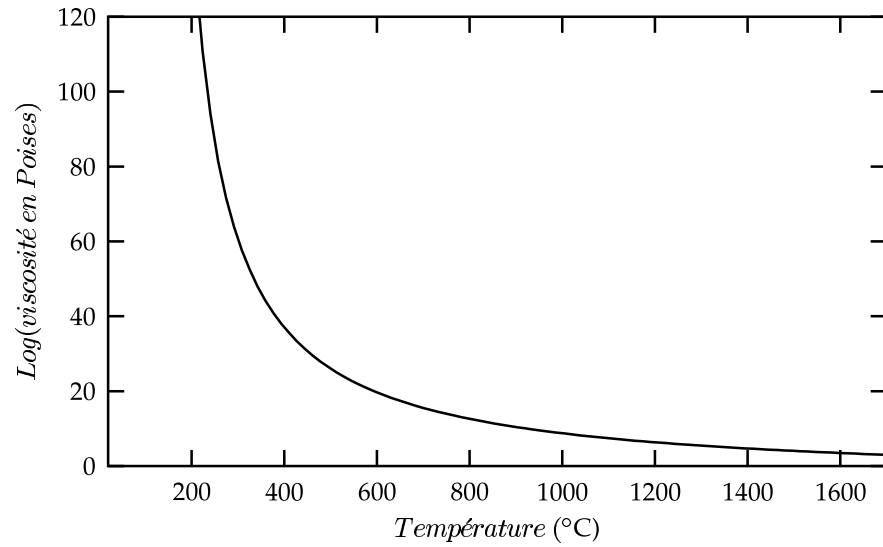


FIG. 6 – Viscosité η du verre de synthèse contenu dans le matériau ER1195 en fonction de la température (Poises). (Données CREE St-Gobain)

Température (°C)	20	100	200	400	600	$T_g = 780$
E (GPa)	72.2	72.5	72.7	73.2	73.7	73.8

TAB. 1 – Module d’Young de la phase vitreuse de synthèse (GPa) en fonction de la température (°C). (Thèse E. Yeugo-Fogaing (Yeugo-Fogaing, 2006))

d’échographie ultrasonore (Yeugo-Fogaing, 2006). Le tableau 1 illustre les valeurs obtenues pour le module d’Young de la phase vitreuse de synthèse en fonction de la température. Nous remarquons une faible variation du module d’Young en fonction de la température (environ 1% entre l’ambiante et T_g). Les valeurs mesurées se situent dans l’ordre de grandeur du module d’Young d’un verre classique (Guillemet, 1994). Le coefficient de dilatation du verre vaut $6 \times 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ (Yeugo-Fogaing, 2006).

3.3 Volume élémentaire représentatif

Les calculs ont été réalisés à partir du volume illustré en figure 4. Les dimensions du volume sont $336 \mu\text{m} \times 310 \mu\text{m} \times 700 \mu\text{m}$. Ces dimensions sont très inférieures à celles d’un bloc de réfractaire ; il existe environ un facteur 10^9 entre le volume d’un bloc et le volume de l’étude, ce qui est considérable. Le choix du volume de matière doit donc se faire avec le plus grand soin afin de garantir la meilleure représentativité.

Deux critères ont été retenus pour assurer la représentativité du volume :

- la fraction volumique de phase vitreuse doit être proche de la fraction volumique réelle moyenne du matériau ER1195 (12% environ),
- le volume de zircone doit être assez grand pour par rapport à l’entité volumique microstructurale pour contenir assez d’information statistique.

Le premier critère est respecté puisque la fraction volumique de phase vitreuse calculée dans ce volume après segmentation est de 11.7% environ. Le second critère l’est également. L’entité volumique microstructurale est similaire à une branche de dendrite, comme nous pouvons l’observer sur la figure 3. Des calculs de covariance 3D ont permis de déterminer une échelle de longueur caractéristique pour ces entités. Cette échelle vaut environ $40 \mu\text{m}$ et reste inférieure aux dimensions du volume choisi. Nous pouvons donc considérer que le volume choisi est représentatif du matériau ER1195. Nous pouvons également considérer que le volume de matière choisi est homogène et isotrope. En effet, les travaux de E. Lataste (Lataste, 2005) ont révélé que la zircone contenue dans le matériau ER1195 est polycristalline et que la taille des cristaux de zircone est de $5 \mu\text{m}$ environ. Ces dimensions restent très inférieures aux dimensions du volume de l’étude.

3.4 Résultats

3.4.1 Conditions de calcul

Nous effectuons un calcul elasto-thermo-viscoplastique, en imposant à tous les noeuds du maillage une rampe de température de 800°C à l’ambiante. La vitesse de refroidissement est de 100°C/h . Le maillage du volume de l’étude contient 1229967 noeuds, ce qui nécessite des coûts de calcul très importants (environ 3.7 millions de degrés de liberté). Nous avons donc eu recours au calcul parallèle. La version utilisée est celle du code Zébulon présentée dans (ZseT/ZéBuloN, 1997; Feyel, 1998). Pour notre étude, le maillage est décomposé en 24 sous-domaines. Un cluster de 12 bi-processeurs (8 Go de RAM par bi-processeur) est utilisé. Le calcul nécessite environ 60 Go de mémoire et dure environ 36 heures.

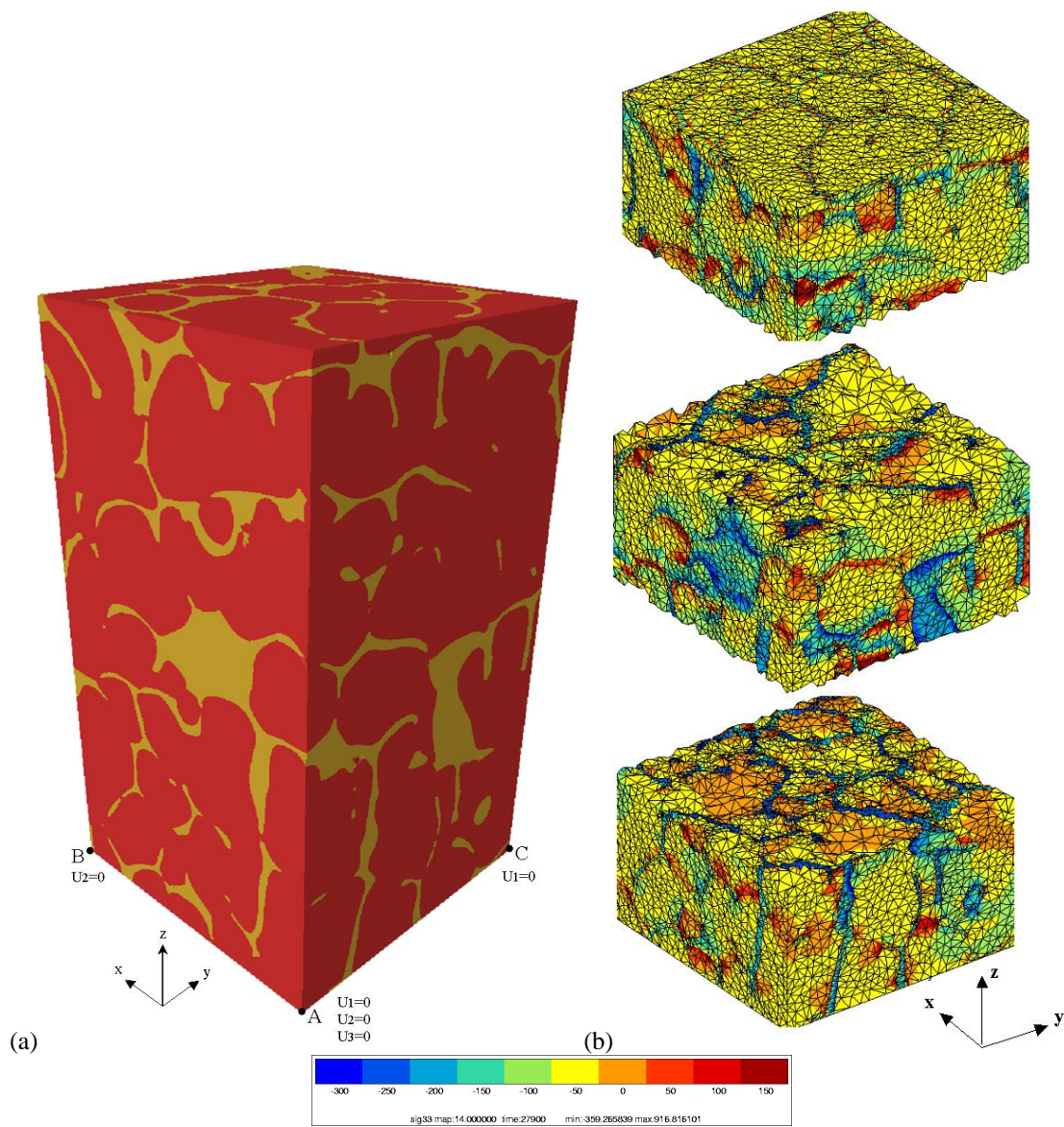


FIG. 7 – Etude du refroidissement de 800°C à l’ambiante : (a) représentation 3D du matériau ZV12 de l’étude, (b) contrainte locale σ_{33} (MPa) (direction z) dans le matériau à la fin du refroidissement.

3.4.2 Contraintes dans les phases

La figure 7b illustre la contrainte locale σ_{33} (suivant la direction z), dans le matériau à la fin du refroidissement. Nous observons des contraintes de compression dans la phase vitreuse qui valent en moyenne 110 MPa. Ces contraintes sont équilibrées par de faibles contraintes de traction (15 MPa en moyenne) dans la zircone. Des observations plus fines ont montré que les contraintes dans le matériau sont plus importantes aux interfaces zircone-verre avec des contraintes maximales de traction dans la zircone de 100 MPa environ et des contraintes maximales de compression dans la phase vitreuse de 300 MPa environ.

Ces valeurs élevées de contraintes traduisent une forte probabilité de microfissuration dans le matériau et semblent confirmer l'endommagement révélé expérimentalement (Lataste, 2005; Yeugo-Fogaing, 2006). En effet, les résultats expérimentaux illustrent qu'au cours du refroidissement, entre 800°C et l'ambiante, un endommagement s'amorce dans les deux phases, mais de manière plus intense dans la phase vitreuse. Dans la zircone monoclinique, l'expansion thermique est anisotrope et peut conduire à l'apparition de contraintes entre cristaux d'orientations différentes. Les désaccords de dilatation entre la zircone et la phase vitreuse peuvent également conduire à une fissuration de la phase vitreuse et de la décohésion aux interfaces zircone-verre.

Nous travaillons actuellement sur un modèle d'endommagement non couplé afin de prédire les risques de microfissuration décrits. Nous considérons que la rupture est de type fragile et nous utilisons deux critères de rupture : un critère en contrainte normale maximale et un critère en contrainte tangentielle maximale : les résultats devraient apporter des informations sur les modes prédominants de rupture à l'échelle microstructurale.

4 Conclusion

Les réfractaires électrofondus se caractérisent par une microstructure très originale qui est directement en relation avec leur procédé de fabrication par électrofusion. Ce procédé de type sidérurgique, complètement différent des procédés traditionnellement utilisés dans l'industrie céramique, comme le frittage, conduit à un mode de cristallisation dendritique de la zircone. L'exploitation des images 3D acquises au synchrotron de Grenoble à l'ESRF a permis, dans un premier temps, de se rendre compte de la complexité d'une telle microstructure. Les calculs de percolation de la géométrie des phases ont illustré une forte connectivité des deux phases : zircone et verre. La forte imbrication des dendrites ("interlocking") assure l'existence d'un squelette de zircone à l'origine des excellentes résistances à la corrosion et au fluage, observées expérimentalement.

Dans un second temps, à partir d'un maillage volumique du matériau généré à partir des coupes tomographiques, nous avons étudié le refroidissement de 800°C à l'ambiante. Les résultats ont mis en évidence des valeurs de contraintes élevées dans les phases et plus particulièrement aux interfaces zircone-verre. Ces résultats traduisent une forte probabilité de microfissuration dans le matériau, ce qui semble en accord avec les résultats expérimentaux. Nous travaillons actuellement sur un modèle d'endommagement de type fragile afin de prédire les risques de microfissuration observés expérimentalement dans le matériau au cours du refroidissement.

References

- ALPER A. M. (1966). *Microstructures developed from fusion casting*. In : Proceedings of the Third Int. Materials, symposium "Ceramic microstructures, their analysis, significance and production", held at the University of California, Berkeley, June 13-16, pp 763-798.
- AMIRA (1997). *Amira, An Advanced 3D Visualisation and Volume Modeling System*, <http://www.amiravis.com>.

- BOUSSUGE M. (2003). *Study of the thermomechanical properties of industrial refractories : the French program PROMETHEREF*. In : UNITECR 2003 Proceedings, 8th biennial worldwide conf. on refractories, Osaka, Japan, October 19-22, pp 513–516.
- BOUSSUGE M. (2004). *A french research program for the study of thermomechanical properties of industrial refractories*. Key engineering materials, vol. 264-268 (Part 3), pp 1755–1758.
- FEYEL F. (1998). *Application du calcul parallèle aux modèles à grand nombre de variables internes*. Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. Thèse de doctorat.
- GAUBIL M. (1996). *Etude de la solidification de matériaux réfractaires appartenant au système quaternaire Al_2O_3 - ZrO_2 - SiO_2 - Na_2O* . Thèse de Doctorat, Université d'Orléans.
- GUILLEMET C. (1994). *Verres et produits verriers*. Technique de l'ingénieur, Dossier A2100, vol. ARCH1.
- LATASTE E. (2005). *Comportement mécanique et endommagement de réfractaires électrofondus sous sollicitation thermomécanique*. Thèse de Doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- MADI K., FOREST S., GAILLIÈGUE S., BOUSSUGE M., LATASTE E., BUFFIÈRE J.-Y, BERNARD D., ET JEULIN D. (2006). *Finite element simulations of the deformation of fused-cast refractories*. Comp. Mat. Sci., sous presse.
- MADI K., N'GUYEN F., FOREST S., BOUSSUGE M., LATASTE E., BUFFIÈRE J.-Y, ET JEULIN D. (2005). *Etude de la morphologie tridimensionnelle de réfractaires électrofondus*. 17^{m^e} Congrès Français de Mécanique, Troyes, septembre 2005.
- MASSARD L. (2005). *Etude du fluage de réfractaires électrofondus du système alumine-zircone-silice*. Thèse de Doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- MASSARD L., MADI K., BOUSSUGE M., FOREST S., YEUGO-FOGAING E., HUGER H., ET GAULT C. (2004). *High temperature mechanical behavior of fused-cast refractories*. In : Advances in refractories for the metallurgical industries IV, fourth international symposium, Hamilton, Canada, August 22-25, ed. M. Rigaud, C. Allaire, pp 631–644.
- YEUGO-FOGAING E. (2006). *Propriétés élastiques et inélastiques de bétons réfractaires et réfractaires électrofondus*. Thèse de Doctorat, ENSCI Limoges.
- ZSET/ZÉBULON (1997). *User manual. EMP/LMR/NWNM/ONERA*.