



HAL
open science

Simulation directe du frittage à l'échelle des grains par diffusion surfacique et volumique.

Daniel Pino Muñoz, Julien Bruchon, François Valdivieso, Sylvain Drapier

► **To cite this version:**

Daniel Pino Muñoz, Julien Bruchon, François Valdivieso, Sylvain Drapier. Simulation directe du frittage à l'échelle des grains par diffusion surfacique et volumique.. 10e colloque national en calcul des structures, May 2011, Giens, France. pp.Clé USB. ⟨hal-00592741⟩

HAL Id: hal-00592741

<https://hal.science/hal-00592741v1>

Submitted on 3 May 2011

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

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



HAL Authorization

Simulation directe du frittage à l'échelle des grains par diffusion surfacique et volumique

D. Pino Muñoz¹, J. Bruchon¹, F. Valdivieso¹, S. Drapier¹

¹ Centre SMS, LCG UMR CNRS 5146, École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne, France, {pino,bruchon,valdivieso,drapier}@emse.fr

Résumé — Dans le cadre de la simulation du frittage à l'échelle des grains, une méthode permettant de simuler le transport de matière par diffusion surfacique et volumique est mise œuvre. Une approche eulérienne de type Level-Set est utilisée. Le flux de matière étant relié au gradient de pression, le problème mécanique doit être résolu dans un domaine de calcul qui est constitué par les grains et le milieu environnant. Les grains ont un comportement élastique linéaire tandis que le milieu environnant est considéré comme un fluide Newtonien incompressible. Cette méthode permet de suivre l'évolution d'un ensemble de grains au cours du frittage. Plusieurs cas ont été étudiés en 2D et 3D.

Mots clés — Frittage, Diffusion surfacique, Diffusion volumique, Level-Set, Éléments finis.

1 Introduction

Le frittage, qui est un procédé de fabrication très utilisé dans l'industrie, peut être décrit comme le passage d'un compact pulvérulent à un matériau cohérent par thermos-activation des mécanismes de diffusion de matière. Notre objectif est de modéliser et simuler l'évolution d'un empilement granulaire durant le frittage. Ici, nous nous concentrons sur deux mécanismes de diffusion : la diffusion surfacique et la diffusion en volume. Si les modèles décrivant ces mécanismes sont connus (section 2), par contre la stratégie numérique utilisée pour les combiner et piloter la résolution dans un cadre de calcul intensif est originale (section 3) et donne d'ores et déjà des résultats probants (section 4).

2 Modélisation de la diffusion en surface et de la diffusion en volume

2.1 Potentiels chimiques

Parmi les 3 voies de frittage reconnues [1, 2, 3], nous nous intéressons ici au frittage par diffusion surfacique et au frittage en volume. Ces deux mécanismes de diffusion peuvent être modélisés par l'intermédiaire de la loi de Dick. Cette loi est donnée par l'Equation (1) qui relie le flux de matière \vec{j} au gradient de potentiel chimique $\vec{\nabla}\mu$ et à la mobilité m^A de l'espèce qui diffuse :

$$\vec{j} = -m^A \vec{\nabla}\mu^A \quad (1)$$

Diffusion surfacique : Le potentiel chimique d'une espèce en surface d'un grain est donné par :

$$\mu = \Omega\gamma\kappa \quad (2)$$

où Ω est le volume molaire $\left[\frac{m^3}{mol}\right]$, γ est la tension surfacique $\left[\frac{J}{m^2}\right]$ et κ est la courbure moyenne $\left[\frac{1}{m}\right]$.

Diffusion volumique : On utilise les développements de Garikipati et al. [4] pour modéliser la diffusion en volume. Les grains ont un comportement élastique linéaire isotrope. Le problème est alors posé en termes d'un mélange binaire d'atomes et de lacunes. L'énergie libre \hat{h} du système est calculée au niveau de la maille atomique. Le potentiel chimique μ est donné par la variation de l'énergie libre \hat{h} par rapport à la concentration d'atomes C_a ($\mu = \partial\hat{h}/\partial C_a$). De la même façon, le tenseur de contraintes σ est donné par la variation de l'énergie libre par rapport au tenseur des déformations ϵ ($\sigma = \partial\hat{h}/\partial\epsilon$). Pour calculer le flux de matière en volume, on résout de façon couplée la deuxième loi de Dick ($\partial C_a/\partial t = -\vec{\nabla} \cdot \vec{j}$,

cette loi établit la conservation de la matière) et le problème mécanique (voir les détails dans la section 2.2). Le potentiel chimique d'une espèce située en volume d'un grain est donné par l'Equation (3).

$$\mu = \mu_0 + \frac{\partial \hat{h}}{\partial C_a} = \mu_0 + (1-f) \Omega_{A_0} p + RT \log \frac{C_A}{C_{A_0}^{eq}} \quad (3)$$

où μ_0 est le potentiel chimique à l'état d'équilibre libre de contrainte, le volume occupé par une lacune est donné par une fraction f du volume molaire Ω_{A_0} du matériau, p est la pression, R est la constante des gaz parfaits, T est la température, C_A est la concentration d'atomes, et finalement C_A^{eq} est la concentration d'atomes à l'état d'équilibre.

2.2 Problème mécanique

Dans la section 2.1 on a développé les équations qui permettent de calculer le potentiel chimique (Equation (3)) et le flux en volume (Equation (1)). La pression hydrostatique p intervient dans le potentiel chimique 3, on en a donc besoin pour faire le calcul de la diffusion en volume. L'approche que l'on a développée place les grains dans un milieu environnant avec une interface Γ_{sf} qui les sépare. On cherche alors à trouver les champs de déplacement et pression (u, p) dans le solide, et les champs de vitesse et pression (v, p) dans le milieu environnant satisfaisant certaines conditions de continuité expliquées par la suite.

Le milieu environnant est modélisé comme un fluide Newtonien peu visqueux incompressible. Le tenseur de contraintes pour ce type de fluides est donné par :

$$\sigma_{ij}^{fluide} = 2\eta \dot{\epsilon}_{ij} - p \delta_{ij} \quad (4)$$

$$v_{i,i} = 0 \quad (5)$$

où η est la viscosité dynamique et $\dot{\epsilon}$ est le tenseur taux de déformations.

Les grains sont considérés comme un matériau élastique linéaire isotrope dans le cadre de petites déformations (6) et (7)

$$\sigma_{ij}^{solide} = 2\mu \epsilon_{ij} - \frac{2}{3} \mu u_{k,k} \delta_{ij} - p \delta_{ij} \quad (6)$$

$$u_{k,k} + \frac{p}{K} = 0 \quad (7)$$

où μ est le module de cisaillement, K est le module de compressibilité et ϵ est tenseur de déformations.

Si l'on considère deux milieux (milieu 1 et milieu 2) séparés par une interface, on doit prendre en compte la tension superficielle qui induit un saut de contrainte donné par la *Loi de Laplace* :

$$\begin{aligned} \sigma_{ij}^1 n_j^1 + \sigma_{ij}^2 n_j^2 &= \gamma \kappa n_i^1 \\ \sigma_{ij}^1 n_j^1 - \sigma_{ij}^2 n_j^2 &= \gamma \kappa n_i^1 \end{aligned} \quad (8)$$

où σ^1 et σ^2 sont les tenseurs de contraintes dans les deux milieux 1 et 2 respectivement, n^1 et n^2 sont les normales sortantes à ces milieux, γ est la tension de surface et κ est la courbure moyenne de la surface (voir figure 1).

Les modélisations utilisées pour le fluide et le solide sont classiquement basées sur des variables différentes : vitesse (\vec{v}) et pression (p) pour le fluide, déplacement (\vec{u}) et pression (p) dans le solide. On va donc manipuler les équations du comportement mécanique du solide (Equations (6) et (7)) afin de pouvoir les écrire en fonction de la vitesse \vec{v} et la pression p . Pour le faire on va utiliser une démarche similaire à celle utilisée par *Papadakis* [5].

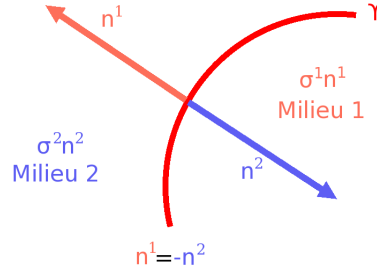


FIGURE 1 – Loi de Laplace.

On arrive finalement à la formulation variationnelle donnée par les Equations (9) et (10) :

$$\begin{aligned}
& \int_{\Omega} 2H^s \mu \theta \Delta t \dot{\epsilon}_{ij}(v) \epsilon_{ij}(\varphi) dV - \int_{\Omega} H^s \theta \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) p \varphi_{i,i} dV \\
& \quad + \int_{\Omega} 2H^f \eta \epsilon_{ij}(v) \epsilon_{ij}(\varphi) dV - \int_{\Omega} H^f p \varphi_{i,i} dV = \\
& - \int_{\Omega} 2H^s \mu \epsilon_{ij}(u^t) \epsilon_{ij}(\varphi) dV - \int_{\Omega} 2H^s \mu \Delta t \theta (1 - \theta) \dot{\epsilon}_{ij}(v^t) \epsilon_{ij}(\varphi) dV \\
& + \int_{\Omega} H^s (1 - \theta) \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) p^t \varphi_{i,i} dV + \int_{\Gamma^{fluide}} t_i^{fluide} \varphi_i dS + \int_{\Gamma^{sf}} \gamma \kappa n_i^{solide} \varphi_i dS \\
& - \int_{\Omega} H^s \theta \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) v_{k,k} q dV - \int_{\Omega} \frac{H^s}{\Delta t} \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) \frac{p}{K} q dV - \int_{\Omega} H^f v_{k,k} q dV = \\
& \int_{\Omega} \frac{H^s}{\Delta t} \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) u_{k,k}^t q dV + \int_{\Omega} \frac{H^s}{\Delta t} (1 - \theta) \left(1 - \frac{2}{3} \frac{\mu}{K}\right) v_{k,k}^t q dV
\end{aligned} \tag{9}$$

$$\tag{10}$$

où H^s et H^f sont les fonctions de Heaviside dans le solide et dans le fluide respectivement, θ est le paramètre du schéma d'intégration θ -Method qui peut prendre une valeur dans l'intervalle $[0, 1]$. Les variables u^t , v^t et p^t sont respectivement les champs de déplacement, vitesse et pression au pas de temps précédent.

Le calcul du dernier terme du second membre de l'Equation (9) (en bleu) nécessite un traitement particulier. Ce terme est une intégrale surfacique calculée sur l'interface Γ_{sf} qui sépare les grains et le fluide environnant. Dans l'approche Eulérienne que l'on utilise (voir Section 3), il n'y a pas de nœuds sur l'interface car elle coupe les éléments. On fait alors une reconstruction locale (dans chaque élément coupé) de l'interface. Cette reconstruction consiste à identifier l'intersection entre l'interface Γ_{sf} et l'élément, et finalement, on réalise le calcul sur cette intersection.

On résout le problème mécanique par la méthode des éléments finis. On utilise une formulation mixte en vitesse/pression, avec des interpolations linéaires P1/P1. Une stabilisation par la méthode OSGS est effectuée pour satisfaire une condition de stabilité de type Inf Sup [6].

3 Stratégie numérique

La stratégie numérique utilisée est basée sur une discrétisation du problème par éléments finis. Pendant le frittage d'un empilement granulaire, différents changements topologiques apparaissent, on utilise alors une approche Eulérienne pour décrire les grains.

L'approche Eulérienne se fait dans un domaine de calcul fixe, de plus, cette approche demande l'utilisation d'un descripteur qui permet de suivre l'évolution des grains. On a donc choisi de travailler avec la *Méthode Level-Set*.

Le maillage utilisé est un maillage non structuré, dans lequel les grains sont immergés. Afin d'améliorer la précision des calculs, on raffine le maillage près de la surface des grains.

3.1 Méthode *Level-Set*

La méthode *Level-Set* est une technique numérique qui permet de suivre et d'étudier le mouvement d'une interface Γ sous l'effet d'un champ de vitesse \vec{v} donné. Cette vitesse \vec{v} peut dépendre de la position, de la géométrie de l'interface, du temps, ou bien d'une loi physique [7].

L'idée de la méthode *Level-Set* est de définir une fonction $\phi(\vec{x}, t)$ telle que l'interface Γ est représentée par $\phi(\vec{x}, t) = 0$. La fonction *Level-Set* prend d'habitude la valeur d'une fonction distance signée, c'est-à-dire :

$$\begin{aligned} \phi(\vec{x}, t) &= -\text{dist}(\vec{x}, \Gamma) && \text{pour } \vec{x} \in \Omega \\ \phi(\vec{x}, t) &= \text{dist}(\vec{x}, \Gamma) && \text{pour } \vec{x} \notin \bar{\Omega} \\ \phi(\vec{x}, t) &= 0 && \text{pour } \vec{x} \in \partial\Omega = \Gamma(t) \end{aligned} \quad (11)$$

Où $\text{dist}(\vec{x}, \Gamma)$ est la distance du point \vec{x} à l'interface Γ .

Cette idée est très utile parce que lors du traitement numérique du problème, les différents changements topologiques qui peuvent apparaître sont pris en compte de façon "automatique" par la méthode [8].

A partir des fonctions *Level-Set* on peut calculer la normale sortante \vec{n} à Ω et la courbure moyenne κ de l'interface qui interviennent de façon primordiale dans la physique du frittage.

$$\vec{n} = \frac{\vec{\nabla}\phi}{\|\vec{\nabla}\phi\|} \quad (12)$$

$$\kappa = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} = \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\vec{\nabla}\phi}{\|\vec{\nabla}\phi\|} \right) \quad (13)$$

3.2 Diffusion en surface

Dans un premier temps on a simulé le frittage en ne tenant compte que de la diffusion surfacique. La figure 2 montre l'algorithme utilisé pour faire la simulation du frittage dû à la diffusion surfacique.

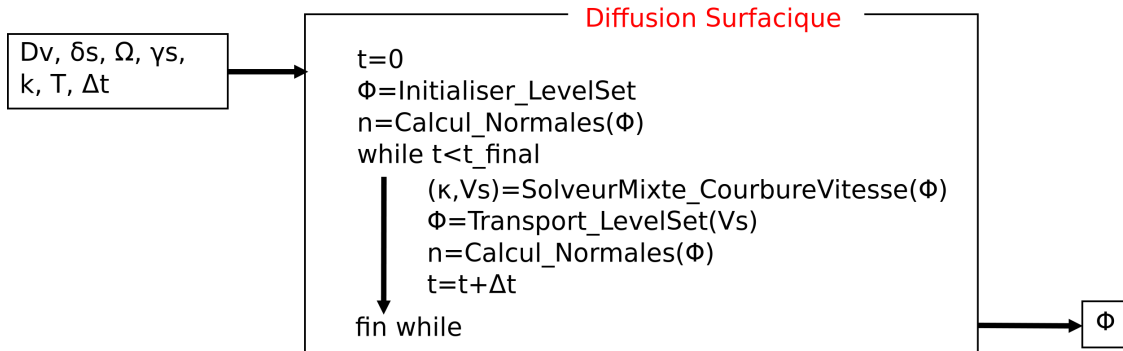


FIGURE 2 – Algorithme de calcul du frittage par diffusion surfacique.

Le solveur mixte en courbure/vitesse ainsi que les résultats que l'on peut obtenir avec l'algorithme montré sur la figure 2 ont été publiés par Bruchon et al. [9, 10]. Cette approche permet de lever une des difficultés majeures de la modélisation du frittage surfacique contrôlé par le gradient de la courbure, cette courbure étant calculée à partir de la level-set linéaire.

3.3 Diffusion en volume

Dans une première approche vers la simulation du frittage par diffusion volumique, on a simplifié l'expression (3) du potentiel chimique en considérant une concentration d'atomes C_A constante dans le solide. On obtient alors :

$$\mu = \mu_0 + (1 - f) \Omega_{A_0} p \quad (14)$$

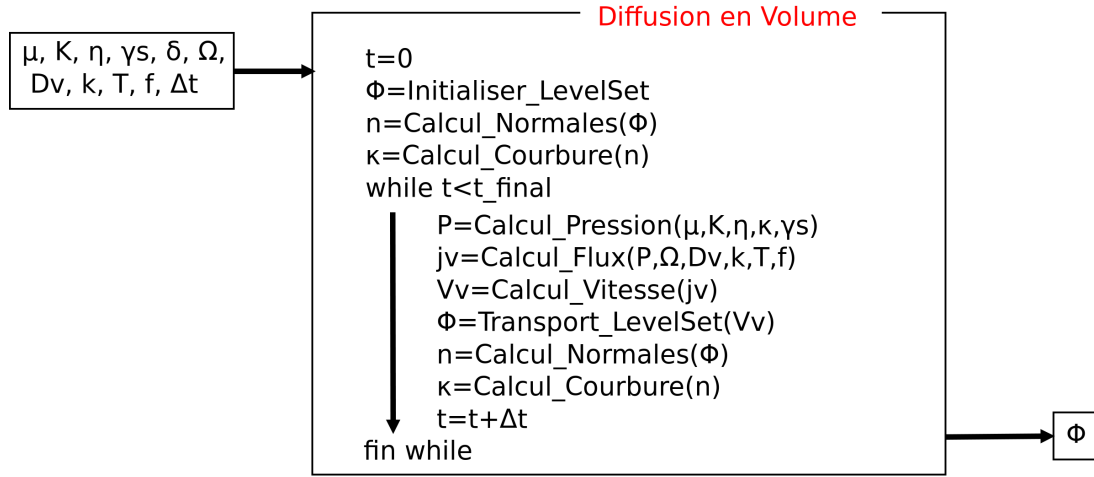


FIGURE 3 – Algorithme de calcul du frittage par diffusion en volume.

La figure 3 montre l’algorithme utilisé pour faire la simulation du frittage par diffusion en volume. Le calcul du champ de pression est très important lors de la simulation du frittage par diffusion volumique, mais se révèle malheureusement délicat. D’après la Loi de Laplace (Equation (8)) la pression est discontinue à la interface entre le solide et le fluide environnant. On résout le problème mécanique Fluide/Solide (Equations (9) et (10)) pour calculer la pression. Cette pression est ensuite utilisée pour calculer le potentiel chimique (Equation (14)) qui sera introduit dans l’Equation (1) pour calculer le flux volumique de matière. Pourtant, le gradient de potentiel chimique n’est pas défini à l’interface du fait de la discontinuité de la pression.

On doit faire un traitement particulier de ce gradient qui consiste à le calculer sur une couche qui se trouve légèrement déplacée de α vers l’intérieur du solide. Avec ce gradient, on calcule le flux volumique de matière et la vitesse de frittage. Afin de pouvoir faire le transport de la fonction Level-Set, on a besoin d’une vitesse qui soit bien définie des deux cotés de l’interface. L’Equation 15 est résolue pour étendre la vitesse de chaque côté de l’isovaleur $\phi = -\alpha$, et donc pour définir correctement la vitesse autour de l’interface fluide/grains.

$$\frac{\partial v_n}{\partial t} + S(\phi') \frac{\vec{\nabla} \phi'}{\|\vec{\nabla} \phi'\|} \cdot \vec{\nabla} v_n = 0 \quad (15)$$

où v_n est la vitesse normale, $S(\phi')$ est une fonction signe qui vaut -1 dans le solide, 1 à l’extérieur et 0 à l’interface. ϕ' est la fonction Level-Set légèrement déplacée de α vers l’intérieur du solide : $\phi' = \phi + \alpha$.

On résout l’Equation (15) jusqu’à atteindre un état quasi-stationnaire. On obtient donc un champ de vitesse bien défini des deux cotés de l’interface qui nous permet de faire le transport de la fonction Level-Set.

4 Résultats numériques

Notre modèle a été implémenté dans la librairie éléments finis CimLib , qui est développée au CE-MEF (MinesParisTech) (voir [11]).

4.1 Diffusion Surfactive

La figure 4 montre les résultats d’une simulation de la diffusion surfactive sur un empilement cubique centré sur les faces de 14 grains en 3D. La diffusion surfactive ne permet pas d’éliminer la porosité fermée [2, 1], et nos simulations montrent la présence de la porosité fermée à l’intérieur de la structure, figure 5.

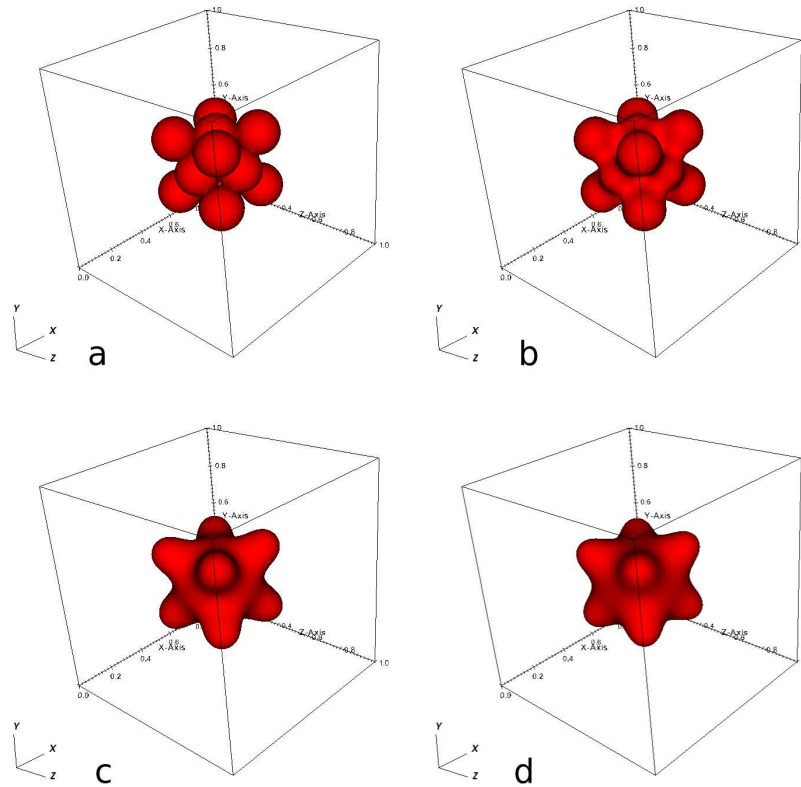


FIGURE 4 – Frittage par diffusion surfacique. a : structure cubique centré du départ. b : Structure après 20 incréments de temps. c : Structure après 100 incréments de temps. d : Structure après 180 incréments de temps.

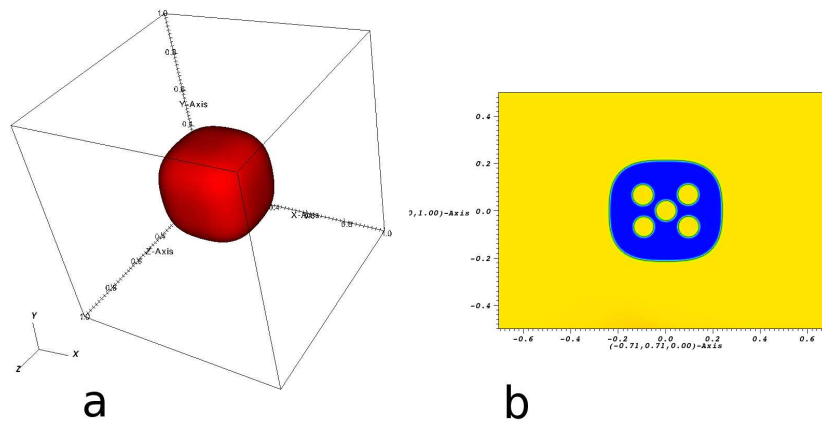


FIGURE 5 – Frittage par diffusion surfacique. a : Structure après 300 incréments de temps. b : porosité fermée dans la structure. Le bleu correspond au solide et le jaune au fluide

4.2 Diffusion volumique

La figure 6 montre le champ de pression ainsi que le champ de vitesse au niveau du cou entre deux grains qui se trouvent dans un état avancé de frittage. On peut constater que le champ de vitesse impose la croissance du cou entre les grains. La figure 7 montre l'évolution des deux grains au cours de frittage par diffusion volumique, ainsi que le champ de pression.

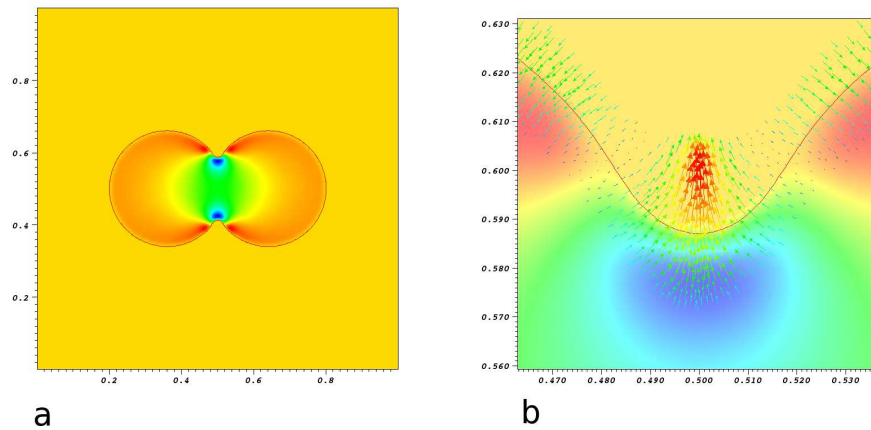


FIGURE 6 – a : Champ de Pression p . b : Champ de vitesse autour de l'interface après la convection.

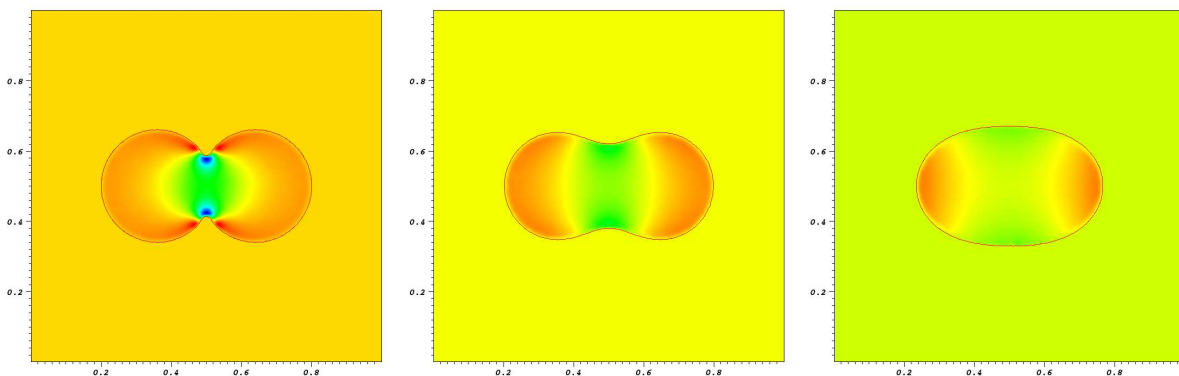


FIGURE 7 – Évolution du champs de pression pendant le frittage par diffusion volumique après 0, 20 et 100 incréments de temps.

Conclusions et perspectives

La méthode développée permet de bien simuler le procédé du frittage par diffusion surfacique en 2D et en 3D. L'approche Eulérienne utilisée permet de gérer les différents changements topologiques qui peuvent apparaître dans la structure. Par rapport à la diffusion volumique, la prise en compte du comportement mécanique des deux milieux et la discontinuité physique de la pression, demande un traitement très rigoureux ainsi que l'utilisation des techniques de stabilisation afin de réduire le bruit numérique.

La simulation du frittage par diffusion volumique est en cours de développement et la prise en compte de la variation de la concentration d'atomes dans le solide doit être effectuée, établir un couplage entre le comportement mécanique du solide et la concentration d'atomes. La diffusion aux joints de grains est importante. Il faut donc développer un modèle qui permette de lier le comportement mécanique des deux milieux au flux de matière aux joints de grains. Il sera alors possible de simuler le processus de frittage en phase solide par ces 3 voies de frittage.

Références

- [1] H.E. Exner, E. Arzt, Robert W. Cahn, and Peter Haasen. Sintering processes. In *Physical Metallurgy (Fourth Edition)*, pages 2627–2662. North-Holland, Oxford, 1996.
- [2] M. F. Ashby. First report on sintering diagrams. *Acta Metallurgica*, 22(3) :275–289, 1974.
- [3] D. Bernache-Assollant and JP. Bonnet. Frittage aspects physico chimiques. *Techniques de l'ingénieur*, 2000.

- [4] K. Garikipati, L. Bassman, and Michael Deal. A lattice-based micromechanical continuum formulation for stress-driven mass transport in polycrystalline solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49(6) :1209–1237, 2001.
- [5] G. Papadakis. A novel pressure-velocity formulation and solution method for fluid-structure interaction problems. *Journal of Computational Physics*, 227(6) :3383–3404, 2008.
- [6] M. Chiumenti, Q. Valverde, C. Agelet de Saracibar, and M. Cervera. A stabilized formulation for incompressible elasticity using linear displacement and pressure interpolations. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 191(46) :5253–5264, November 2002.
- [7] J. A Sethian et al. *Level set methods and fast marching methods*. Cambridge university press Cambridge, 1999.
- [8] R. Fedkiw and S. Osher. Level-set methods : An overview and some recent results. *Journal of Computational Physics*, 169 :463, 2001.
- [9] J. Bruchon, D. Pino, F. Valdivieso, S. Drapier, and G. Pacquaut. 3D simulation of the matter transport by surface diffusion within a Level-Set context. *European Journal of Computational Mechanics*, 19(9) :281–292, 2009.
- [10] J. Bruchon, S. Drapier, and F. Valdivieso. 3d finite element simulation of the matter flow by surface diffusion using a level-set method. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, doi : 10.1002/nme.3079, 2010.
- [11] H. Digonnet, L. Silva, and T. Coupez. Cimlib : a fully parallel application for numerical simulations based on components assembly. In *AIP Conference Proceedings*, volume 908, page 269, 2007.