



HAL
open science

Simulation multi-physique du procédé de frittage SPS (Spark Plasma Sintering)

Gaylord Guillonnet, Eric Feulvarch, Guillaume Kermouche, Anthony Pavia,
Alain Peigney, Geoffroy Chevallier, Alicia Weibel, Claude Estournes

► **To cite this version:**

Gaylord Guillonnet, Eric Feulvarch, Guillaume Kermouche, Anthony Pavia, Alain Peigney, et al..
Simulation multi-physique du procédé de frittage SPS (Spark Plasma Sintering). 11e colloque national
en calcul des structures, CSMA, May 2013, Giens, France. hal-01717832

HAL Id: hal-01717832

<https://hal.science/hal-01717832>

Submitted on 26 Feb 2018

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.

Public Domain

Simulation multi-physique du procédé de frittage SPS (Spark Plasma Sintering)

Gaylord GUILLONNEAU ^{1*}, Eric FEULVARCH ¹, Guillaume KERMOUCHE ¹, A. PAVIA ², A. PEIGNEY ², G. CHEVALLIER ², A. WEIBEL ² et Claude ESTOURNES ²

¹ Ecole Nationale d'Ingénieurs de Saint-Etienne, Université de Lyon, Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes, UMR 5513 CNRS/ECL/ENISE, 42000 Saint-Etienne, France, gaylord.guillonneau@enise.fr

² Université de Toulouse, Institut Carnot CIRIMAT, UMR CNRS-UPS-INP 5085, Université Paul-Sabatier, 118 Route de Narbonne, 31062 Toulouse cedex 9, France, estournes@chimie.ups-tlse.fr

* Auteur correspondant

Résumé — Une simulation numérique du frittage flash (SPS) est présentée. Elle tient compte des phénomènes thermiques et électriques liés au procédé SPS. Les résultats obtenus par la simulation numérique sont confrontés à ceux obtenus expérimentalement sur la machine SPS de la Plateforme Nationale de Frittage Flash (PNF2/CNRS), afin de mieux comprendre les phénomènes physiques présents lors du procédé de frittage assemblage. La simulation est réalisée avec le logiciel de calculs SYSWELD[®].

Mots clés — frittage flash, température, densification, modèle multi-physique

1. Introduction

La technologie Spark Plasma Sintering (SPS) est une technique de consolidation des poudres céramiques, métalliques, ou composites [5, 10, 15]. Ce procédé s'appuie sur des temps de traitement thermique très brefs par l'application simultanée de décharges de courant continu pulsé et d'une pression uni-axiale externe. Cette combinaison permet d'augmenter significativement les cinétiques de frittage, rendant possible la fabrication de matériaux nano-structurés fortement densifiés.

Depuis une dizaine d'années, les travaux de recherche sur la technique SPS n'ont cessé de croître, si l'on se réfère au nombre de publications sur le sujet [10,15]. Une grande partie de ces travaux sont de nature expérimentale, mais de plus en plus d'expérimentations sont accompagnées d'une simulation numérique par éléments finis, afin de connaître la distribution des températures, des contraintes ou des champs électriques dans le système, ce qui est difficile à obtenir expérimentalement. Les premières études par éléments finis ont consisté à observer la distribution des températures et du champ électrique dans la pastille frittée. Les échantillons sont considérés comme denses, avec application d'un courant ou d'une tension électrique sur le système. La tension utilisée lors de la simulation numérique est la tension efficace [7]. La plupart des études par éléments finis ont permis de montrer que la distribution des températures n'est pas homogène dans l'échantillon fritté, la température maximum étant atteinte au cœur de l'échantillon [8]. Cette distribution des températures dépend de la géométrie du dispositif et de la pastille [7], mais aussi de la conductivité thermique de la pastille [12]. La vitesse de chauffage joue aussi un rôle important sur les valeurs de température dans l'échantillon [10]. Ces simulations numériques ont aussi mis en évidence que la distribution de la densité de courant est nulle dans la pastille si celle-ci est isolante électriquement, entraînant une forte valeur de la densité de courant dans la matrice, aux abords de la pastille [11]. Cependant de nombreux auteurs ont obtenu des valeurs de températures dans la pastille inférieures à celles obtenues expérimentalement. Cincotti *et al.*, ainsi que Vanmeesel *et al.* ont montré qu'une partie de l'erreur est due à la non-prise en compte des résistances de contact [1,9].

Depuis un peu plus de cinq ans, des travaux traitant de la simulation électro-thermomécanique du frittage SPS sont publiés. Wang *et al.* ont été les premiers à mettre un couplage mécanique sur un

échantillon d'alumine et un échantillon de cuivre [13]. Ils ont ainsi pu montrer que les valeurs des contraintes radiales et angulaires dépendent de la conductivité électrique du matériau, et de la température dans la pastille. Mc Williams et Zavaliangos ont effectué une simulation par éléments finis du frittage SPS, le comportement mécanique de l'échantillon étant purement élastique, en utilisant des conductivités thermiques et électriques dépendant de la densité [4]. Song *et al.* ont simulé le comportement électro-thermo-mécanique du frittage SPS sur une pastille poreuse en fonte [14]. Le modèle est composé d'un module électrothermique où les propriétés physiques, excepté la chaleur spécifique, dépendent de la température et de la densité, et d'un module mécanique tenant compte du comportement élasto-viscoplastique de la pastille frittée. Ils montrent que la distribution de la densité dans la pastille est hétérogène, avec une densité maximale au cœur de celle-ci. Wolff *et al.* ont utilisé une approche similaire pour modéliser le comportement électro thermo mécanique du frittage SPS sur du bore poreux [6].

A ce jour, de nombreux questionnements sur les phénomènes électriques, thermiques et mécaniques mis en jeu lors du frittage SPS restent sans réponses. Il est par exemple difficile de connaître les cinétiques de densification du matériau utilisé. Une simulation numérique du frittage SPS est donc indispensable pour mieux comprendre les phénomènes physiques mis en jeux lors du frittage SPS. Dans cet article, une modélisation électrothermique du frittage SPS est présentée. En première partie est d'abord présentée la machine SPS utilisée et le détail des essais qui vont permettre de valider le modèle électrothermique. Les détails de la modélisation sont présentés dans la deuxième partie de cet article. Ensuite, nous présentons le dispositif expérimental utilisé et les essais réalisés qui vont nous permettre de valider le modèle numérique. Dans la quatrième partie les résultats sont présentés et analysés, avec notamment une étude de sensibilité. Enfin la dernière partie est consacrée aux conclusions et perspectives.

2. Essais expérimentaux réalisés

2.1. Dispositif expérimental

Le dispositif de frittage de la Plateforme Nationale de Frittage Flash (PNF2/CNRS), situé au laboratoire CIRIMAT de Toulouse, est représenté schématiquement sur la figure 1. L'appareil est un modèle Sinter 2080, de la Société SPS Syntex Inc. qui peut délivrer un courant pulsé d'intensité maximale 8000 A et une tension maximale de 15 V. Il est composé de deux pièces en inconel situées aux extrémités supérieures et inférieures de l'appareil. Des pièces en acier situées au-dessus et en-dessous des pièces en inconel, dans lesquelles circule un liquide, permettent le refroidissement des pièces en inconel. Les pistons, les entretoises et la matrice sont en graphite et permettent le chauffage par effet Joule de l'échantillon situé au milieu du dispositif. Le courant est imposé aux bornes de l'appareil comme montré sur la figure 1. Des thermocouples ont été disposés en plusieurs points de l'appareil. Les valeurs mesurées seront comparées à celles obtenues par simulation numérique. Les tests de frittage sont effectués sur un échantillon d'alumine dense dont les dimensions sont spécifiées sur la figure 1.

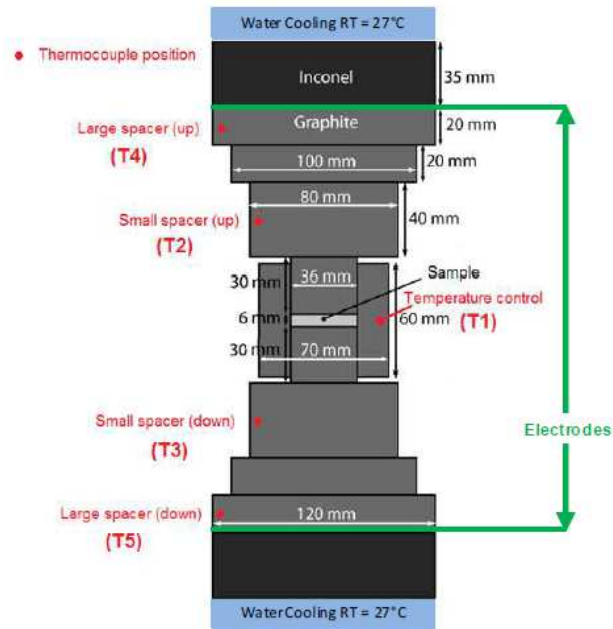


Fig. 1. Schéma représentatif du dispositif de frittage SPS et son instrumentation

2.2. Protocole d'essai

L'expérience de frittage est régulée en température. Cela signifie que le courant appliqué sur le dispositif est fonction de la valeur de la température enregistrée sur le thermocouple T1 (figure 1). Lorsque l'échantillon d'alumine est placé au centre du dispositif, le circuit de refroidissement liquide est mis en route. Une pression initiale de 100 MPa est appliquée sur les pistons. Ensuite, nous imposons une vitesse de montée en température de 100°C par minute jusqu'à atteindre une température constante de 900°C. Cette température reste constante durant 5 minutes. Sur la figure 2 est représenté le cycle de frittage SPS en température et en pression programmé sur la machine.

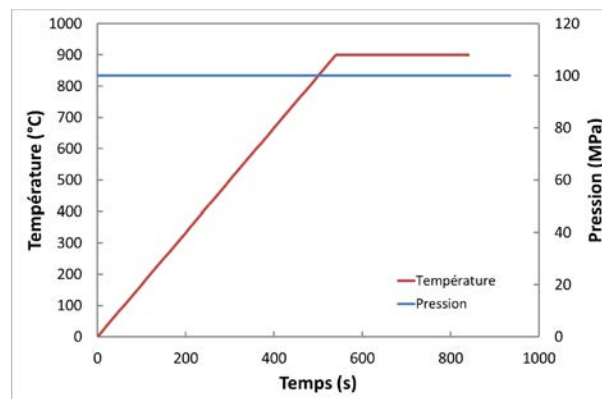


Fig. 2. Cycle de frittage SPS en température et en pression

3. Modélisation électrothermique du frittage SPS

3.1. Présentation du maillage

La simulation numérique électrothermique du frittage SPS a été modélisée avec le logiciel SYSWELD®. Le modèle est axisymétrique. Seulement un quart du dispositif est modélisé afin que le temps de calcul soit réduit (figure 3). L'ensemble des pièces sont considérées en union et les mailles sont des quadrilatères de 0.5 mm de côté.

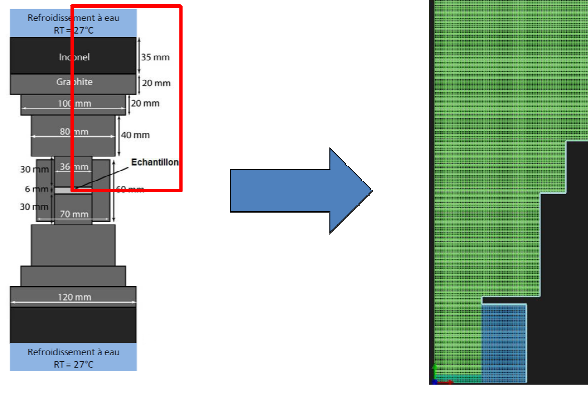


Fig. 3. Maillage utilisé dans le modèle

3.2. Physiques employées dans le modèle

Pendant le processus de frittage SPS, le couplage électrothermique résulte du chauffage par effet Joule. Les lois employées dans cette étude concernent donc la conservation de l'énergie thermique et de l'énergie électrique. Ainsi les équations couplées utilisées dans la simulation sont l'équation électrique de l'effet Joule et l'équation de la chaleur représentées par les équations suivantes :

$$r - \text{div}(-\lambda \text{grad}(T)) = \rho C \frac{dT}{dt} \quad (1)$$

$$\text{div}(-\mu \text{grad}(V)) = 0 \quad (2)$$

Où λ est la conductivité thermique du matériau, T est la température, ρ est la masse volumique, C est la chaleur spécifique, V est le potentiel électrique, et μ est la résistivité électrique du matériau, et r est un terme dépendant de la tension appliquée et de la conductivité électrique du matériau.

3.3. Conditions limites appliquées

Les conditions limites thermiques et électriques appliquées au modèle sont définies sur la figure 4. Une tension efficace est imposée sur la surface supérieure. Celle-ci a été obtenue par l'intermédiaire des essais expérimentaux sur l'alumine. Nous imposons aussi sur cette surface les pertes par convection avec l'eau représentées par l'équation suivante :

$$\Phi_c = h_c (T_i - T_w) \quad (3)$$

Avec Φ_c le flux de chaleur conducto-convectif, h_c le coefficient d'échange par conducto-convection, T_i la température de l'eau et T_w la température des éléments de l'inconel en contact avec l'eau. Nous supposons que les surfaces verticales du dispositif subissent des pertes par rayonnement représentées par l'équation suivante :

$$\Phi_r = \sigma_s \varepsilon (T_m^4 - T_e^4) \quad (4)$$

Avec Φ_r le flux de chaleur par rayonnement, σ_s la constante de Stephan Boltzmann, ε l'émissivité des pièces en graphite, T_m la température des parois en graphite, et T_e la température de l'enceinte. Nous imposons une tension nulle aux nœuds de la surface inférieure. L'ensemble des paramètres électrothermiques utilisés pour la simulation sont décrites dans [2]. Dans la partie suivante, les données issues de la simulation numérique sont comparées aux données expérimentales obtenues, ainsi qu'à celles obtenues par le CIRIMAT par simulation numérique sur le même dispositif, la modélisation étant effectuée sous le logiciel COMSOL® [2].

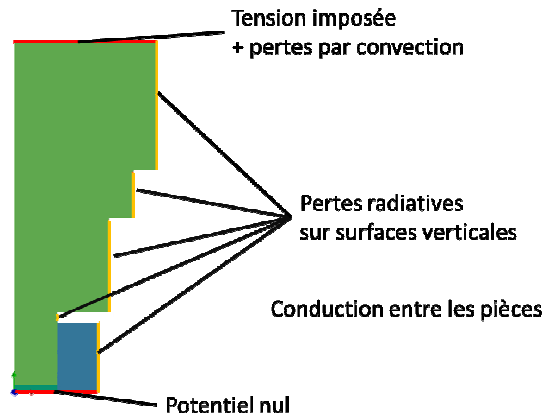


Fig. 4. Conditions limites thermiques et électriques appliquées au modèle

4. Résultats et interprétation

4.1. Evolution de la température et du courant

Sur la figure 5 est représentée l'évolution de la température enregistrée expérimentalement au niveau du thermocouple T1 situé dans la matrice, en fonction du temps. Ces résultats sont comparés à l'évolution de la température obtenue numériquement par le CIRIMAT avec le logiciel COMSOL® [15] et celle obtenue par notre modèle (LTDS) avec le logiciel SYSWELD®. Premièrement, les valeurs de température obtenues numériquement avec les deux modèles évoluent de façon similaire. Ceci n'est pas surprenant étant donné que les physiques employées et les conditions limites appliquées sont les mêmes. Les deux modèles diffèrent uniquement sur la géométrie des mailles. Ceci est confirmé sur la figure 6 qui représente l'évolution du courant efficace mesuré sur la surface supérieure en fonction du temps. Sur la figure 5, les températures obtenues par simulation numérique diffèrent des valeurs mesurées expérimentalement, notamment lorsque la température dépasse les 600 °C. De plus, le palier de maintien à température constante n'est pas respecté. Nous constatons aussi sur la figure 6 que les valeurs de courant enregistrées expérimentalement sont supérieures à celles issues de la simulation numérique par les deux modèles, dès 50s. Le fait de ne pas tenir compte des résistances de contact dans le modèle peut expliquer cette différence. Cependant Anselmi-Tamburini *et al.* ont montré que ce paramètre n'influe pas sur la valeur du courant et de la température des pièces si les pressions appliquées sur l'échantillon sont supérieures à 50 MPa [11]. Une seconde hypothèse proviendrait d'une mauvaise estimation des paramètres électrothermiques des différentes pièces, nécessaires à la simulation numérique. Dans le paragraphe suivant, une étude de sensibilité des différents paramètres est présentée.

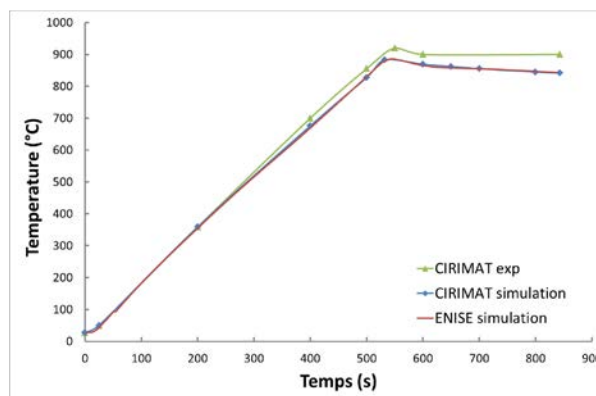


Fig. 5. Evolution de la température mesurée expérimentalement au niveau du thermocouple T1. Comparaison avec les températures obtenues par simulation numérique

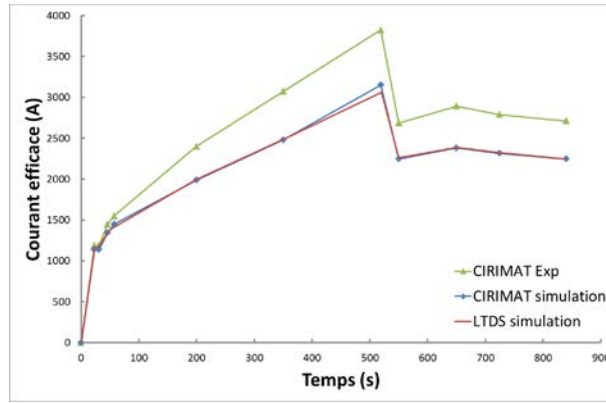


Fig. 6. Evolution du copurant efficace mesuré expérimentalement. Comparaison avec les courants obtenus par simulation numérique

4.2. Influence des paramètres électriques et thermiques du graphite

Une étude de sensibilité sur les paramètres électriques et thermiques du graphite a été réalisée pour observer si ces paramètres peuvent expliquer les écarts entre les résultats expérimentaux et ceux issus de la simulation numérique. Cette étude consiste à faire varier de 10 % l'ensemble des paramètres et d'observer les écarts de température par rapport à celle obtenue sur la figure 5. L'ensemble des résultats sont présentés sur la figure 7, montrant l'évolution de la température obtenue au niveau du thermocouple T1, en fonction du temps. Ce graphe met en évidence l'influence importante de la conductivité électrique du graphite. En effet, à 540s, la température obtenue sans modification de paramètres (Référence) est de 880°C environ, alors que celle obtenue lorsque la conductivité électrique est augmentée de 10 % est de 960°C, soit 80°C de différence. Ceci est en accord avec la figure 6, où les écarts en courant étaient importants, mettant en évidence que la conductivité électrique du dispositif était trop basse. L'utilisation de la chaleur spécifique du graphite issue d'une autre publication [11] permet de montrer que l'erreur sur ce paramètre peut atteindre 25 %, ce qui change de façon non négligeable la valeur de la température au niveau du thermocouple T1. Cette étude montre ainsi l'influence importante des paramètres électrothermiques du graphite sur les températures mesurées. Finalement, en faisant varier l'ensemble des paramètres, il n'est pas constaté de palier à température constante numériquement, comme mesuré expérimentalement. PAVIA a montré que ce phénomène est provoqué par la non-prise en compte de l'évolution de la température de l'enceinte en fonction du temps [2]. La prise en compte de ce phénomène est en cours d'implémentation dans le modèle numérique implémenté sous SYSWELD®.

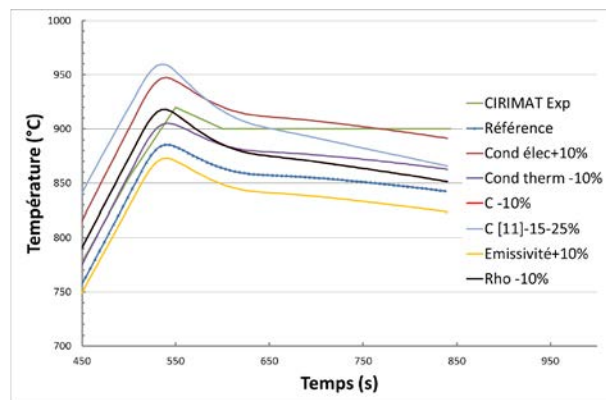


Fig. 7. Influence des paramètres thermiques et électriques du graphite sur la température obtenue par simulation numérique sous SYSWELD® au niveau du thermocouple T1

5. Conclusions et perspectives

5.1. Conclusions

Une simulation numérique électrothermique par éléments finis du frittage SPS d'un échantillon d'alumine sous le logiciel SYSWELD[®] a été développée. Le modèle permet d'obtenir la distribution des températures et du courant en fonction du temps. Ces données ont été comparées aux valeurs mesurées expérimentalement par le laboratoire CIRIMAT sur la machine SPS, et celles obtenues par le modèle numérique développé par le CIRIMAT sous le logiciel COMSOL[®]. Les températures et courants efficaces obtenus numériquement par les deux modèles sont similaires. Un écart entre les résultats expérimentaux et numériques est cependant constaté. Une étude de sensibilité sur les paramètres électriques et thermiques du graphite a mis en évidence que la conductivité électrique joue un rôle important sur les valeurs de température au niveau de la matrice, mais cette étude n'explique pas totalement l'écart étant donné qu'aucun palier à température constante n'est observé numériquement. Une explication possible est la non-prise en compte de l'évolution de la température de l'enceinte en fonction du temps.

5.2. Perspectives : développement d'un modèle mécanique

Un modèle mécanique est en cours d'implémentation sous le logiciel SYSWELD[®], et s'ajoutera à la partie électrothermique. La loi de comportement implémentée dans le modèle est élasto-viscoplastique. La loi utilisée est de type Norton-Hoff et est représentée par l'équation suivante :

$$\dot{\epsilon}_{eq}^{vp} = A \sigma_{eq}^n \quad (5)$$

Où $\dot{\epsilon}_{eq}^{vp}$ est la vitesse de déformation équivalente, A et n sont des paramètres viscoplastiques dépendant du matériau, et σ_{eq} est la contrainte équivalente. Pour tenir compte de l'évolution de la densité de l'échantillon d'alumine durant l'essai, le critère de Green a été utilisé. La contrainte équivalente de Green σ_{eq} dépend de la contrainte de cisaillement q et de la pression hydrostatique p :

$$\sigma_{eq} = \sqrt{9fp^2 + cq^2} \quad (6)$$

Les coefficients f et c sont des constantes qui dépendent de la densité du matériau. L'implémentation de la loi de comportement dans le logiciel SYSWELD[®] permettra ainsi d'obtenir l'évolution de la densification de l'alumine lors du frittage SPS.

6. Références bibliographiques

- [1] A. Cincotti, A. M. Locci, R. Orrù, et G. Cao, "Modeling of SPS apparatus: Temperature, current and strain distribution with no powders", *AICHE Journal*, vol. 53, no 3, p. 703-719, 2007.
- [2] A. Pavia, PhD thesis, Université de Toulouse, 2012.
- [3] A. Zavaliangos, J. Zhang, M. Krammer, et J. R. Groza, "Temperature evolution during field activated sintering", *Materials Science and Engineering: A*, vol. 379, no 1-2, p. 218-228, 2004.
- [4] B. McWilliams et A. Zavaliangos, "Multi-phenomena simulation of electric field assisted sintering", *Journal of Materials Science*, vol. 43, no 14, p. 5031-5035, 2008.
- [5] C. Estournès, D. Oquab, S. Selezneff, M. Boidot, D. Monceau, D. Grossin, C. Drouet, Chung U-Chan, F. Roulland, C. Elissalde, M. Maglione, R. Chaim, Ph. Miele, J. Gurt-Santanach, G. Chevallier, A. Weibel, A. Peigney, Ch. Laurent. "Shaping of nanostructured materials or coatings through Spark Plasma Sintering", *Materials Science Forum Vols. 706-709*, T. Chandra, M. Ionescu and D. Mantovani, page 24-page 30, 2012.
- [6] C. Wolff, S. Mercier, H. Couque, et A. Molinari, "Modeling of conventional hot compaction and Spark Plasma Sintering based on modified micromechanical models of porous materials", *Mechanics of Materials*, vol. 49, no 0, p. 72-91, 2012.
- [7] G. Molénat, L. Durand, J. Galy, et A. Couret, "Temperature Control in Spark Plasma Sintering: An FEM Approach", *Journal of Metallurgy*, vol. 2010, p. 1-9, 2010.
- [8] J. B. Allen et C. Walter, "Numerical Simulation of the Temperature and Stress Field Evolution Applied to the Field Assisted Sintering Technique", *ISRN Materials Science*, vol. 2012, p. 1-9, 2012.

- [9] K. Vanmeensel, A. Laptev, J. Hennicke, J. Vleugels, et O. Van der Biest, "Modelling of the temperature distribution during field assisted sintering", *Acta Materialia*, vol. 53, no 16, p. 4379-4388, 2005.
- [10] R. Orrù, R. Licheri, A.M. Locci, A. Cincotti, G. Cao. "Consolidation/synthesis of materials by electric current activated/assisted sintering", *Materials Science and Engineering R* 63, F. So, page 127–page 287, 2009.
- [11] U. Anselmi-Tamburini, S. Gennari, J. E. Garay, et Z. A. Munir, "Fundamental investigations on the spark plasma sintering/synthesis process: II. Modeling of current and temperature distributions", *Materials Science and Engineering: A*, vol. 394, no 1-2, p. 139-148, 2005.
- [12] W. Yucheng et F. Zhengyi, "Study of temperature field in spark plasma sintering", *Materials Science and Engineering: B*, vol. 90, no 1-2, p. 34-37, 2002.
- [13] X. Wang, S. R. Casolco, G. Xu, et J. E. Garay, "Finite element modeling of electric current-activated sintering: The effect of coupled electrical potential, temperature and stress", *Acta Materialia*, vol. 55, no 10, p. 3611-3622, 2007.
- [14] Y. Song, Y. Li, Z. Zhou, Y. Lai, et Y. Ye, "A multi-field coupled FEM model for one-step-forming process of spark plasma sintering considering local densification of powder material", *Journal of Materials Science*, vol. 46, no 17, p. 5645-5656, 2011.
- [15] Z.A. Munir, D.V. Quach, M. Ohyanagi. "Electric Current Activation of Sintering: A Review of the Pulsed Electric Current Sintering Process", *Journal of the American Ceramic Society* 94(1), David J. Green, John Halloran, David W. Johnson Jr, Lisa Klein, page 1-page 19, 2011.