



HAL
open science

Modélisation 2D de la formation d'oxyde dans les CMCs à matrice auto-cicatrisante

Grégory Perrot, Virginie Dréan, Guillaume Couégnat, Mario Ricchiuto,
Gérard Vignoles

► **To cite this version:**

Grégory Perrot, Virginie Dréan, Guillaume Couégnat, Mario Ricchiuto, Gérard Vignoles. Modélisation 2D de la formation d'oxyde dans les CMCs à matrice auto-cicatrisante. CFM 2013 - 21ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2013, Bordeaux, France. hal-03439878

HAL Id: hal-03439878

<https://hal.science/hal-03439878>

Submitted on 22 Nov 2021

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.

Modélisation 2D de la formation d'oxyde dans les CMCs à matrice auto-cicatrisante

G. PERROT^{a,b}, V. DREAN^b, G. COUEGNAT^a, M. RICCHIUTO^b, G. L. VIGNOLES^a

a. Laboratoire des Composites Thermo-Structuraux (LCTS), Domaine Universitaire, 3 allée de la Boétie, 33600 Pessac

b. INRIA Sud-Ouest, 200 avenue de la Vieille Tour, 33405 Talence

Résumé

L'ajout de couches de type B_xC dans les composites à matrice céramique (CMC) auto-cicatrisants permet d'en renforcer la durée de vie par la création d'un oxyde liquide B_xO_y lors de la fissuration du matériau au dessus de $450^\circ C$. Cet oxyde liquide va boucher la fissure et ainsi former une barrière à l'oxydation. Afin de mieux prédire la durée de vie du matériau, une modélisation de l'oxydation est nécessaire. Des outils numériques 0D et 1D permettent déjà de décrire l'évolution de la concentration d'oxygène à travers une fissure et d'en déduire une première estimation de la durée de vie en considérant la rupture de la fibre la plus faible. La stratégie de modélisation proposée ici est une modélisation 2D par éléments finis de la formation de l'oxyde dans la fissure. Le maillage est obtenu à partir d'une image de coupe transverse d'un fil contenant une fissure. La modélisation permet d'obtenir les valeurs de concentration en oxygène dans toute la fissure, consommation de pyrocarbone entourant les fibres, quantité d'oxyde formé et temps d'apparition du bouchon. En plus des moyennes, on a aussi une estimation de la dispersion de ces valeurs grâce au caractère 2D de la simulation sur images.

Abstract

The addition of B_xC type layers in self-healing ceramic matrix composites (CMC) can reinforce their lifetime by the creation of a liquid oxide B_xO_y during the cracking of the material above $450^\circ C$. This liquid oxide will plug the crack and form a barrier to oxidation. To better predict the lifetime of the material, a modeling of the oxidation is required. 0D and 1D numerical tools can already describe the evolution of the oxygen concentration through a crack and deduce a first estimation of the lifetime considering the rupture of the weakest fiber. The modeling strategy proposed here is a 2D finite element modeling of the formation of the oxide in the crack. The mesh is obtained from an image of a transverse section of a yarn containing a crack. The model provides the values of oxygen concentration everywhere in the crack, consumption of pyrocarbon surrounding the fibers, amount of oxide formed and time of appearance of the plug. Besides averages values, we also get an estimation of the dispersion of these values thanks to the 2D nature of the image-based simulation.

Mots clefs : Modélisation, auto-cicatrisant, oxydation, cicatrisation, éléments finis

1 Introduction

Les propriétés mécaniques des matériaux composites à matrice céramique dans des conditions d'oxydation sont intéressantes pour des applications dans le domaine de la propulsion aéronautique civile [1]. Afin d'augmenter cette résistance à l'oxydation, des couches composées de bore (B_xC) sont ajoutés à des couches de carbure de silicium (SiC) pour former une matrice qui va protéger les fibres de l'oxydation en cas de fissure. En effet, les couches de B_xC vont produire, lorsqu'elles sont exposées à l'oxygène, un oxyde liquide de type B_2O_3 qui va venir s'étaler dans la fissure et après un certain temps former un bouchon d'oxyde qui va empêcher l'oxygène de parvenir jusqu'aux fibres. Une modélisation de l'oxydation est nécessaire pour évaluer l'influence du bouchon d'oxyde sur la corrosion des fibres. Des codes de calcul 0D [2] et 1D [3] ont été développés afin d'observer la concentration d'oxygène atteignant les fibres pour en déduire une approximation de la durée de vie du matériau.

Le modèle 1D de [3] propose une représentation simplifiée de la géométrie des différentes couches de matrice et du bouchon d'oxyde formé à basse température en se basant sur les travaux effectués au

LCTS [4]. Les résultats obtenus montrent que la prise en compte des mécanismes physico-chimiques est nécessaire pour pouvoir prédire le comportement et la durée de vie de ces matériaux. Dans cette optique, un code 2D a été développé [5] pour modéliser l'oxydation dans une fissure et suivre la concentration en oxygène dans la fissure, qui est le paramètre responsable de la corrosion des fibres et donc de leur rupture.

2 Modélisation des mécanismes d'oxydation-cicatrisation

Afin de décrire la formation de la couche d'oxyde protectrice, les paramètres suivants sont intégrés dans la simulation : diffusion d'oxygène, conversion de carbure de bore en oxyde liquide et consommation de carbone autour des fibres. Les hypothèses retenues pour cette modélisation sont les suivantes : couches de SiC considérées comme inertes aux températures envisagées ($T < 700^\circ\text{C}$), couche de B_xC réactive avec l'oxygène pour former du B_2O_3 , interphase de pyrocarbone entre les fibres et la matrice, réactive à l'oxygène, et enfin, les fibres sont considérées comme impénétrables. La formation de B_2O_3 est très expansive, ce qui permet de venir boucher complètement la fissure.

La dernière hypothèse concerne l'oxyde formé lors de la réaction, qui est supposé suffisamment visqueux pour que son étalement soit négligeable par rapport à sa croissance verticale, ce qui est représenté sur la figure 1.

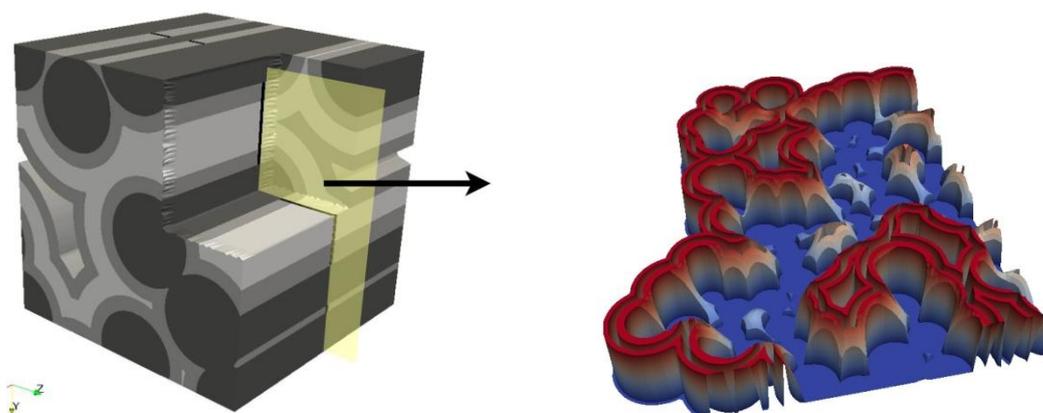
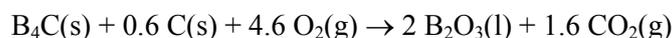
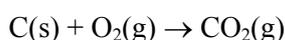


FIG. 1 – Vue d'un morceau de fil comportant une fissure (plan jaune) et grossissement de la moitié de la fissure, bouchon complètement formé (hauteur de liquide grossie 10x pour une meilleure lisibilité)

Les différentes équations choisies pour représenter les phénomènes physiques cités précédemment sont : la première loi de Fick pour la diffusion de l'oxygène dans l'air avec un coefficient de diffusion noté D^G , et dans le fluide, mais avec un coefficient de diffusion D^L différent, environ 10^5 fois plus faible. Les réactions chimiques sont (en prenant $x = 4/1,6$ dans B_xC , qui devient $\text{B}_4\text{C} + 0,6\text{C}$):



Les équations concernant le bilan de masse en oxygène sont moyennées sur la hauteur perpendiculaire à la fissure, ce qui permet de faire apparaître les variables sous forme de hauteurs. Ces hauteurs sont : h_{O_2} la hauteur d'oxygène disponible dans la fissure, h_m la hauteur de B_4C consommé, définie uniquement sur les phases réactives notées Ω_r , les phases inertes étant notées Ω_i comme le détaille la figure 2, les indicateurs de phase pour ces domaines sont notés respectivement ϕ_r et ϕ_i , la hauteur d'oxyde liquide h_L créé par la réaction, qui vérifie la condition $h_L > h_m$ correspondant à l'expansion volumique et qui est définie sur Ω_r également, et h_p la hauteur de pyrocarbone consommé, définie seulement sur l'interface fibre/matrice notée $\delta\Omega_{fi}$. La dernière variable utilisée sera la concentration en oxygène C_{O_2} . Il est donc possible d'écrire les équations sous la forme :

$$\frac{\partial(h_{\text{O}_2}C_{\text{O}_2})}{\partial t} = \nabla \cdot (h_{\text{O}_2}D_{\text{O}_2}C_{\text{O}_2}) - \phi_r \frac{D^L}{4.6 h_L} C_{\text{O}_2}, \quad \text{sur } \Omega_r \cup \Omega_i$$

$$\frac{\partial h_{O_2}}{\partial t} = \phi_r (V_{B_4C}^m - 2V_{B_2O_3}^m) \frac{D^L}{4.6 h_L} C_{O_2}, \quad \text{sur } \Omega_r$$

$$\frac{\partial h_L}{\partial t} = \phi_r \frac{2V_{B_2O_3}^m D^L}{4.6 h_L} C_{O_2}, \quad \text{sur } \Omega_r$$

$$\frac{\partial h_p}{\partial t} = \frac{V_{Pyc}^m D^L}{4.6 h_L} C_{O_2}, \quad \text{sur } \delta\Omega_{fi}$$

Avec D_{O_2} le coefficient de diffusion de l'oxygène fonction de l'espace (il vaut D^L en phase liquide ou D^G en phase gazeuse), et les volumes molaires des différents constituants notés V^m .

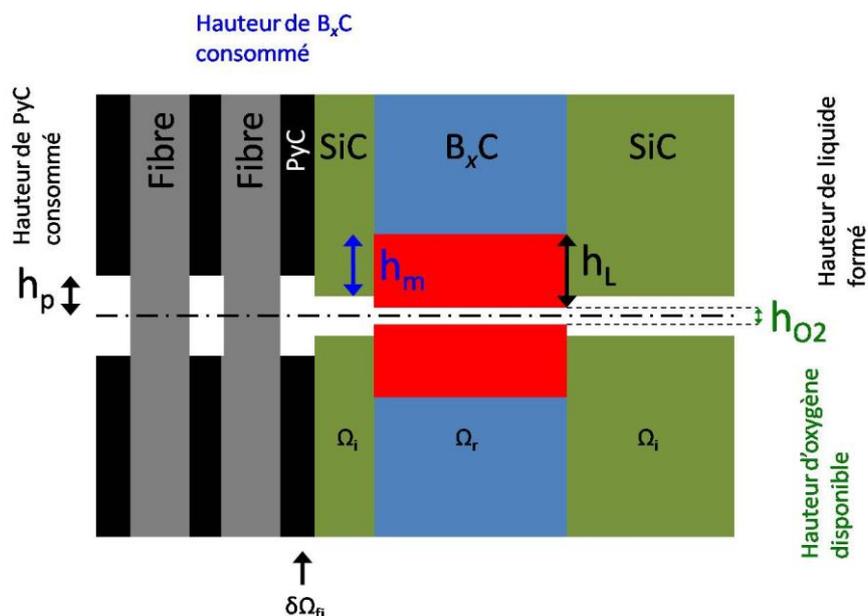


FIG. 2 – Représentation schématique de la cicatrification d'une fissure en faisant apparaître les différentes hauteurs intervenant dans les équations, ainsi que les différents domaines

Le système d'équations ainsi défini est complété par des conditions aux limites de Dirichlet (Concentration imposée) ou de von Neumann (flux molaire imposé), puis résolu grâce à une modélisation par éléments finis sur un maillage non structuré construit à partir d'images réelles du matériau. Après une analyse dimensionnelle des équations, il est possible de découpler l'équation de diffusion de l'oxygène de celles sur les différentes hauteurs ; en effet, la diffusion de l'oxygène gazeux est beaucoup plus rapide que tous les autres phénomènes impliqués. La stratégie de résolution choisie fait alors intervenir la méthode d'Euler sur des éléments finis de Lagrange de type P1 pour l'équation de la concentration en O₂, avec l'utilisation d'un solveur de systèmes creux permettant de réduire le temps de calcul. Les équations sur les hauteurs sont quant à elles résolues grâce à la méthode de Newton-Raphson.

3 Résultats et discussion

Les résultats présentés correspondent à un quart de fil contenant environ 50 fibres, pour un matériau composé des couches entourant les fibres suivantes : PyC/SiC/B_xC/SiC/B_xC/SiC. Des conditions de symétrie sont appliquées sur les zones où le matériau atteint le bord de l'image, et une condition de von Neumann est appliquée sur les zones en contact avec le domaine extérieur. Les pores sont également considérés comme sources d'oxygène extérieures. La figure 3 montre les résultats obtenus pour le début de formation du bouchon à $t = 112s$.

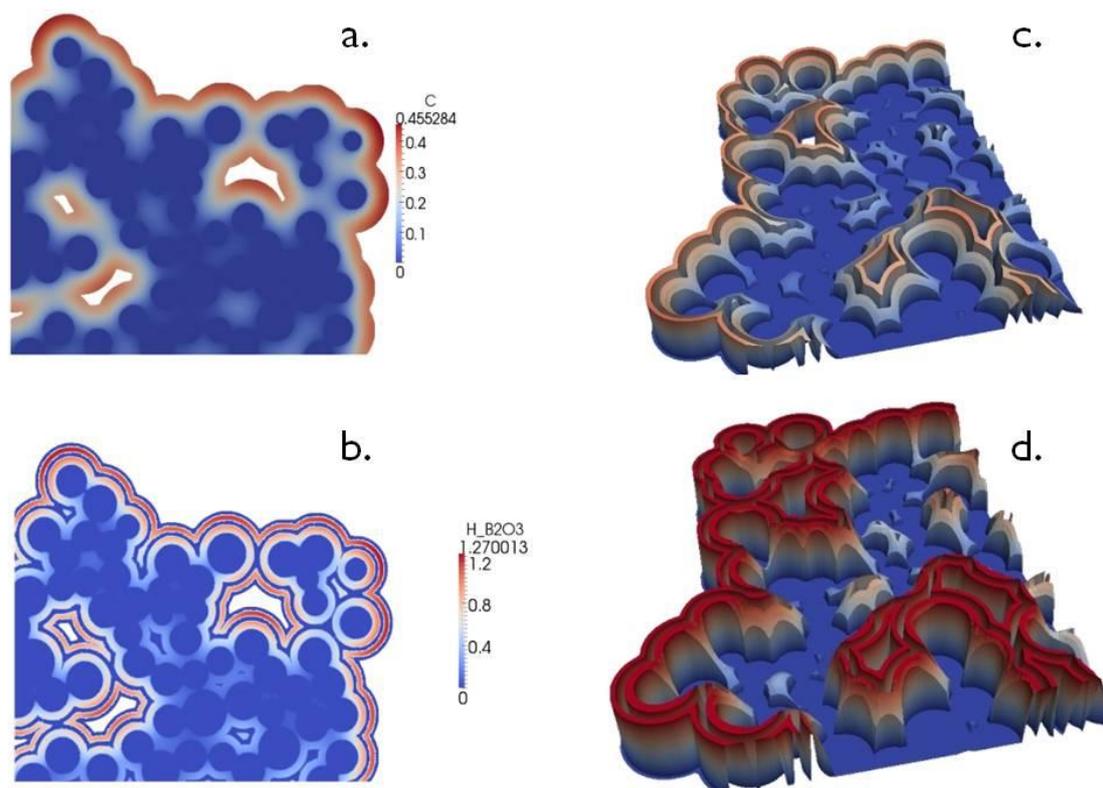


FIG. 3 – Visualisation des résultats du phénomène d'oxydation dans une fissure. a. Concentration en oxygène normée (par rapport à l'air ambiant) pour $t = 112s$, b. Hauteur de liquide formé normalisée par rapport à la demi-hauteur de fissure à $t = 112s$, c. Idem b. mais en élévation, d. Hauteur de liquide formé lorsque le bouchage de la fissure est complet (élévation).

La figure 3a met en évidence la consommation d'oxygène par les différents constituants. Les couches de pyrocarbone étant de fortes consommatrices d'oxygène, on observe un fort gradient de concentration entre les zones riches en fibres et l'extérieur du domaine qui est source d'oxygène. Certaines zones éloignées des bords ont cependant une concentration en O_2 plus élevée que d'autres zones plus proches de l'extérieur. Ceci peut être expliqué par la répartition des fibres qui permet dans certains cas un meilleur accès pour l'oxygène aux zones éloignées des bords, alors que les autres zones sont complètement coupées de tout apport d'oxygène en provenance de l'extérieur du matériau. Les figures 3b et 3c représentent la formation d'oxyde dans les phases réactives. En accord avec la distribution d'oxygène de la figure 3a, l'oxyde se forme en majorité dans les zones les plus pourvues en oxygène, ce qui correspond aux zones proches de l'extérieur ou des pores qui sont considérés ici comme des sources d'oxygène. Les valeurs de cette hauteur sont normalisées par rapport à la demi-hauteur d'ouverture de la fissure (mais ne sont pas représentées à l'échelle). Cependant, la hauteur de liquide est mesurée à partir du niveau du B_xC - comme représenté sur la figure 2 - qui recule au fur et à mesure de l'oxydation, ce qui explique pourquoi la hauteur de liquide peut dépasser la hauteur de la fissure. La figure 3d représente l'état final de la simulation dans lequel le bouchon est formé dans toutes les zones réactives les plus proches des bords, et bloque complètement la diffusion de l'oxygène.

Un des avantages de ces calculs 2D est de pouvoir accéder, en plus des valeurs moyennes déjà évaluables par les modèles 0D et 1D antérieurs, à des distributions de ces valeurs. Par exemple, la figure 4 rapporte l'histogramme des hauteurs de pyrocarbone consommé uniquement sur les bords de fibre directement en regard de l'extérieur ou des pores, c'est-à-dire sur les zones le plus exposées du matériau. On constate qu'il existe une grande dispersion de ces hauteurs, l'écart-type étant de l'ordre de grandeur de 25% de la moyenne. Une telle dispersion provient de la distribution des distances à la ou aux fibres voisines : plus une fibre a de voisines, moins celle-ci recevra d'oxygène ; au contraire, les fibres les plus isolées seront les plus attaquées.

De même, on peut montrer que le temps de bouchage n'a pas une valeur unique, mais qu'il existe un temps de *début* de bouchage et un temps de *fin* de bouchage – et les deux diffèrent de 50% [6]. Cette dispersion se comprend bien à l'examen de la figure 3c, en regardant la hauteur de liquide formé sur les couches les plus externes de matériau cicatrisant.

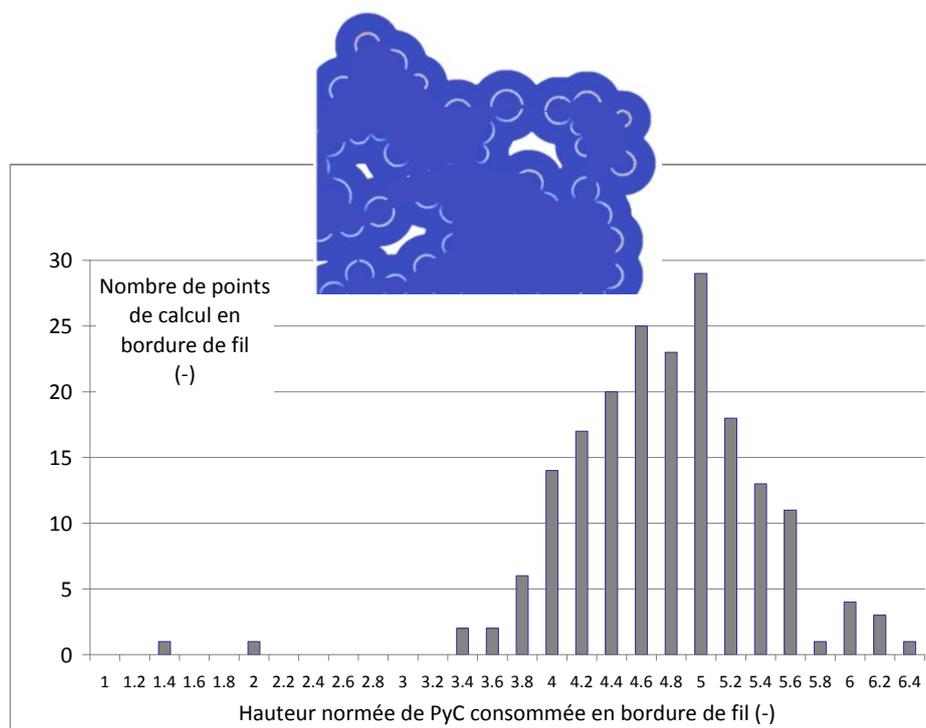


FIG. 4 – Histogramme des hauteurs de pyrocarbone consommée sur les fibres proches de la surface (zones claires dans l'encart).

4 Conclusion et perspectives

Les résultats obtenus grâce à cette formulation sont en accord avec ceux obtenus par les codes 0D et 1D, et permettent d'obtenir des informations sur l'évolution des variables en fonction de la géométrie et de la répartition des fibres. Ils permettent notamment de mettre en évidence un gradient de formation d'oxyde sur une section partant de l'intérieur du matériau vers l'extérieur. Ils permettent de plus de décrire les phénomènes non seulement avec des valeurs moyennes pour les quantités d'intérêt, mais aussi des distributions ; celles-ci sont à relier aux caractéristiques morphologiques des images, ce qui permettra une description plus fine de l'effet de la structure sur les propriétés.

La suite du développement de ce modèle consiste à intégrer l'écoulement de l'oxyde dans la fissure lors de sa formation, ce qui permettra de lever l'hypothèse sur la viscosité importante du fluide, uniquement valide aux très basses températures. De plus, l'écoulement du fluide va venir modifier le temps nécessaire au bouchage de la fissure, ainsi que la formation d'oxyde dans les zones proches. En effet, le fluide risque de s'étaler au dessus d'une autre zone réactive, réduisant ainsi la vitesse de formation d'oxyde, qui est proportionnelle à l'inverse de la hauteur de fluide présent au dessus de la zone réactive. Le second axe de développement consiste à regarder l'évolution de la concentration en oxygène après formation du bouchon sur des temps longs. La diffusion de l'oxygène étant beaucoup plus lente dans l'oxyde, celui-ci va empêcher l'oxygène de passer, mais pendant un certain temps seulement : à long terme l'oxygène pourra de nouveau atteindre les fibres, et il convient alors de quantifier le temps nécessaire pour la reprise de l'oxydation ainsi que la quantité d'oxygène atteignant les fibres et celle consommée par la reprise de la formation du bouchon dans les zones qui n'étaient pas encore bouchées.

Références

- [1] Christin F., Design fabrication and application of thermostructural composites (TSC) like C/C, C/SiC and SiC/SiC composites, *Adv. Eng. Mater.*, 4, 12, 903-912, 2002.
- [2] Cluzel C., Baranger E., Ladevèze P., Mouret A., Mechanical behavior and lifetime modeling of self-healing ceramic matrix composites subjected to thermomechanical loading in air, *Compos. Part A*, 40, 8, 976-984, 2009.
- [3] Rebillat F., Original 1D modeling of composites with complex architectures, *Procs. 5th Intl. Conf on High Temperature Ceramic Matrix Composites (HT-CMC5)*, Seattle, WA, 315-320, 2005
- [4] Quémard L., Rebillat F., Guette A., Tawil H., Louchet-Pouillier C., Self-healing mechanisms of an SiC-fiber reinforced multilayered ceramic matrix, *J. of European Ceramic Society*, 27, 4, 2085, 2007.
- [5] Dréan V., Ricchiuto M., Vignoles G. L., Two-dimensional oxidation modeling of MAC composite materials, *Rapports INRIA*, 7417 & 7418, 2010.
- [6] Dréan V., Perrot G., Couégnat G., Ricchiuto M., Vignoles G. L., Image-based 2D numerical modeling of oxide formation in self-healing CMCs, *Ceram. Eng. Sci. Procs.* 33, 10, 117-125, 2012.