HAL
open science

Modélisation numérique du procédé de frittage SPS : contribution à l'homogénéisation des températures et analyse de la dispersion

Youssef Achenani

To cite this version:

Youssef Achenani. Modélisation numérique du procédé de frittage SPS : contribution à l'homogénéisation des températures et analyse de la dispersion. Matériaux. École Mohammadia d'Ingénieurs, Rabat (Maroc), 2018. Français. NNT : . tel-01980011v2

HAL Id: tel-01980011

https://hal.science/tel-01980011v2

Submitted on 20 Mar 2019

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.

Université Mohammed V de Rabat

École Mohammadia d'Ingénieurs

THÈSE

Présentée devant

L'École Mohammadia d'Ingénieurs

Pour obtenir

Le grade de Docteur

Spécialité : Sciences et Ingénierie des Matériaux

Par

Youssef ACHENANI

Titre :

Modélisation numérique du procédé de frittage SPS : contribution à l'homogénéisation des températures et analyse de la dispersion

Soutenue le Mardi 17 Juillet 2018 devant la commission d'examen composée de :

M. Abdelkhalek CHEDDADI	Professeur, EMI	Directeur de thèse
M. Jérôme CHEVALIER	Professeur, INSA-Lyon	Rapporteur
M. Gilbert FANTOZZI	Professeur, INSA-Lyon	Examinateur
M. Mohammed MLIHA TOUATI	Professeur, EMI	Rapporteur
Mme Helen REVERON	Chargée de recherche, CNRS-France	Examinatrice
Mme Malika SAÂDAOUI	Professeur, EMI	Directrice de thèse
M. Mohammed TOUHAMI OUAZZANI	Professeur, EMI	Président et rapporteur

THÈSE

Année universitaire : 2017/2018

Cher lecteur, chère lectrice

Je vous souhaite une bonne lecture !

Au nom de Dieu le Clément et le Miséricordieux

Le Dieu Tout-Puissant dit :

﴾ Et t'a enseigné ce que tu ne savais pas. Ainsi, la sollicitude du Seigneur à ton égard a été immense ﴿

Dieu Tout-Puissant a dit la vérité

[Sourate Les Femmes (An-Nisâ'), Verset 113, Le Saint Coran]

“Ce sont rarement les réponses qui apportent la vérité, mais l’enchainement des questions.”

[La Fée carabine, Roman]

✍ Daniel Pennac, Écrivain

A la mémoire de mon père et ma sœur

A ma famille

Remerciements

*Les travaux présentés dans cette thèse de doctorat ont été menés à l'École Mohammadia d'Ingénieurs (EMI) au sein du l'Équipe de Recherche en **MO**délisation des **S**ystèmes **É**nergétiques, des **M**atériaux et Structures **M**écaniques, et des **P**rocédés **I**ndustriels (**MOSEM2PI**), en collaboration avec le Laboratoire **MATE**riaux : **I**ngénierie et **S**cience (**MATEIS**) de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon (INSA-Lyon).*

*En premier lieu, je tiens à exprimer toute ma reconnaissance aux professeurs Malika **SAÂDAOUI** et Abdelkhalek **CHEDDADI** de m'avoir offert l'opportunité de réaliser cette thèse et de m'avoir accompagné durant ces années. Je les remercie également pour leur disponibilité et leurs conseils. Je leur suis éminemment reconnaissant de m'avoir fait bénéficier de leur expérience et de leurs compétences tout au long de ce travail. Aucun mot ne pourra jamais exprimer ma reconnaissance pour leur soutien.*

*Je tiens à remercier vivement M. Gilbert **FANTOZZI**, professeur émérite à l'INSA de Lyon, pour sa précieuse aide concernant la partie expérimentale, ainsi que pour les discussions fructueuses que nous avons eues.*

*Je voudrais également remercier M. Jérôme **CHEVALIER**, professeur à l'INSA de Lyon et directeur du Laboratoire MATEIS, M. Mohammed **MLIHA TOUATI** et M. Mohammed **TOUHAMI OUAZZANI**, professeurs à l'EMI d'avoir accepté de relire cette thèse et d'être rapporteurs de ce travail. Je tiens aussi à remercier Mme Helen **REVERON**, chargée de recherche au CNRS-France, d'avoir examiné ce manuscrit.*

Un grand Merci à l'ensemble de l'équipe MOSEM2PI, professeurs et thésards qui ont contribué, chacun à sa manière, à rendre agréable, mon passage au Laboratoire.

Pour terminer, merci à ma famille de m'avoir poussé jusque-là.

Nomenclature

Grandeurs

c_p	Chaleur spécifique (J/kg °C)
$\vec{E} = -\vec{\nabla}U$	Champ électrique (V/m)
h_c	Coefficient d'échange thermique par convection (W/m^2 °C)
k_r	Conductivité thermique suivant la direction radiale (W/m °C)
k_z	Conductivité thermique suivant la direction axiale (W/m °C)
I_{RMS}	Courant électrique efficace (A)
z	Coordonnée axiale (mm)
r	Coordonnée radiale (mm)
d^-	Décalage de la matrice vers le bas (mm)
d^+	Décalage de la matrice vers le haut (mm)
$\vec{J} = \sigma_e \vec{E}$	Densité de courant électrique (A/m^2)
i_r	Densité de courant suivant la direction radiale (A/m^2)
i_z	Densité de courant suivant la direction axiale (A/m^2)
q_c	Densité de flux conducto-convectif (W/m^2)
q_r	Densité de flux de chaleur par rayonnement (W/m^2)
d_f	Distance focale entre le pyromètre axial et le point visé (m)
th	Épaisseur de l'échantillon (mm)
J_{el}	Flux électrique à travers l'interface piston-spacer (A/m^2)
q_{th}	Flux thermique à travers l'interface piston-spacer (W/m^2)
K_P	Gain de proportionnalité du correcteur PID (A/°C)
K_I	Gain d'intégration du correcteur PID (A/s °C)
K_D	Gain de dérivation du correcteur PID (s A/°C)
H_f	Hauteur du feutre (mm)
U	Potentiel électrique (V)
$\dot{q}_J = \vec{J}.\vec{E}$	Quantité de chaleur par unité de temps et par unité de volume (W/m^3)
$R_c^{él}$	Résistance de contact électrique (Ω)

R_c^{th}	Résistance de contact thermique (°C/W)
S_c	Surface de contact apparente (m^2)
T_a	Température à la surface d'absorption (= 27 °C, température de la paroi intérieure de l'enceinte refroidie) (°C)
T_e	Température à la surface d'émission (°C)
T	Température (°C)
t	Temps (s)
T_{se}	Température à la surface horizontale de l'électrode (°C)
T_A	Température au point A (°C)
T_B	Température au point B (°C)
T_{S1}	Température au spacer du haut (°C)
T_{S2}	Température au spacer du bas (°C)
T_S	Température de frittage (= 1300 °C)
T_w	Température de l'eau de refroidissement (°C)
T_{ss}	Température de la surface horizontale du spacer (°C)

Symboles grecs

φ_{max}	Angle de déviation du faisceau lumineux du pyromètre axial (Degré)
σ_c	Conductance de contact électrique (S/m^2)
σ_e	Conductivité électrique (S/m)
k	Conductivité thermique (W/m °C)
σ	Constante de Stefan-Boltzmann (W/m^2 $°C^4$)
φ_c	Densité de flux thermique transférée par convection (W/m^2)
ρ	Densité volumique (kg/m^3)
ϕ	Diamètre de l'échantillon (mm)
ΔT_{ij}	Différence de température dans l'échantillon (°C)
ΔT_{AB}	Différence de température entre les points A et B (°C)
ΔT_{max}	Différence de température maximale dans l'échantillon (°C)
$\Delta T_{max,\ ij}$	Différence de température maximale entre les positions i et j (°C)
δ	Éloignement du point de la régulation de température (mm)
ε	Émissivité de la matrice

Indices

max	Maximal
min	Minimal
i, j	Points de l'échantillon
A, B	Points de mesure de température

Sigles et acronymes

PI2	Isolation Partielle avec deux morceaux
PI1	Isolation Partielle avec un morceau
TI	Isolation Totale
PID	Proportionnel-Intégral-Dérivé
SPS	Spark Plasma Sintering

Liste des figures

Fig. 1.1 : Principales étapes d'élaboration d'une céramique.

Fig. 1.2 : Schématisation de différents types de frittage sous charge.

Fig. 1.3 : Schéma du frittage impulsif à décharge d'étincelles breveté par Inoue en 1967. (1) Résistance (2) Batterie de condensateurs (3) Batterie (4) Transformateur primaire (5) Interrupteur (6) Batterie DC [Grasso 2009a].

Fig. 1.4 : Représentation des machines SPS Syntex d'après [Manière 2017] (a) et (FCT Systeme d'après [Langer 2011] (b).

Fig. 1.5 : Nombre de documents publiés sur le procédé SPS. Statistiques recueillis auprès de la base de données ScienceDirect (relevé en avril 2018) en utilisant le mot-clé (a) « Spark plasma sintering » et (b) « Modeling of spark plasma sintering ».

Fig. 1.6 : Potentiels d'économie d'énergie de la technologie pour le Frittage SPS [FAST Ceramics].

Fig. 1.7 : Schéma du dispositif de frittage SPS.

Fig. 1.8 : Microstructures au centre et au bord d'un échantillon de TiAl fritté (a, b) à 1250 °C sur FCT HPD 125, (d, e) à 1300 °C sur SYNTEX 9.40 et (c, f) distribution radiale de la température dans l'ensemble échantillon et matrice [Voisin 2013].

Fig. 1.9 : Points de mesure de la température dans différents équipements de frittage.

Fig. 1.10 : Domaine d'étude et conditions aux limites considérées par le modèle de [Raichenko 1989].

Fig. 1.11 : Domaine du procédé SPS modélisé par [Yoneya 2001]. Distribution de la température dans un échantillon en graphite et en cuivre, respectivement.

Fig. 1.12 : Géométrie considérée pour simuler les phénomènes thermiques et électriques. Les points (•) indiquent l'emplacement des thermocouples dans l'échantillon, les pistons et la matrice [Matsugi 2003a].

Fig. 1.13 : Distribution radiale de température dans l'ensemble : échantillon/matrice [Govea-Alcaide 2014].

Fig. 1.14 : (a) Distribution de la densité de courant au long de l'axe vertical (Oz) de l'ensemble du système SPS, (b) Distribution radiale de la densité de courant pour

un échantillon non conducteur (alumine) et conducteur (cuivre). Le profil radial est calculé au long de la ligne centrale de l'ensemble : échantillon/matrice. L'épaisseur de l'échantillon est de 3 mm; le diamètre de l'échantillon est de 19 mm. Tension appliquée = 5 V [Anselmi-Tamburini 2005].

Fig. 1.15 : Distribution de la température à l'intérieur des échantillons : Al_2O_3 et Cu. Température en degré Kelvin [Muñoz 2010].

Fig. 1.16 : Effet de la conductivité électrique sur les gradients thermiques à l'intérieur de l'échantillon à une température de frittage de 1500 °C [Vanmeensel 2005].

Fig. 1.17 : Répartition de la température le long de la direction radiale pour différents diamètres d'échantillons d'oxyde de zinc dopé à l'aluminium [Chen 2015].

Fig. 1.18 : (a) Effet de la température de frittage et du diamètre sur la densité d'échantillons et (b) micrographies d'une céramique AZO consolidée à une température de 1200 °C avec un temps de maintien de (b) 3 et (c) 30 minutes [Chen 2015].

Fig. 1.19 : Différentes géométries d'échantillons frittés par SPS.

Fig. 1.20 : Exemple d'une géométrie complexe (a) distribution de température (b) et microstructure à différents endroits (c) d'une pièce de TiAl frittée par le procédé SPS [Voisin 2013].

Fig. 1.21 : Température maximale (astérisque) et température minimale (carré) dans un échantillon d'alumine en fonction de l'épaisseur de la matrice [Vanherck 2015].

Fig. 1.22 : Alternative du design des pistons [Giuntini 2015, 2016].

Fig. 1.23 : Différents assemblages de l'outillage SPS utilisés pour déterminer les résistances thermiques et électriques. 1 et 2 : Piston, 3 : Matrice et 4 : Spacer et 6 : Monobloc en graphite [Wei 2015].

Fig. 1.24 : Différents assemblages de feutre utilisés lors de la densification [Réau 2008].

Fig. 1.25 : (a) Dissymétrie de température entre le piston supérieur et inférieur, (b) Différence de transparence optique entre les deux surfaces supérieure et inférieure de la zéolite [Gu 2015].

Fig. 2.1 : Dispositif expérimental de frittage SPS et paramètres de densification: (a) photographie de l'ensemble de l'outillage SPS, (b) illustration de la configuration SPS avec les emplacements de mesure de la température (points A, B, S_1 et S_2) et (c) cycle thermique de frittage et courbe de déplacement de retrait pendant la densification SPS.

Fig. 2.2 : Contrôle de température avec une boucle de rétroaction à l'aide d'un régulateur PID à l'intérieur de la machine SPS.

Fig. 2.3 : Conditions aux limites appliquées au modèle MEF.

Fig. 2.4 : Flux thermique et électrique à travers le contact imparfait au niveau de l'interface : piston/spacer [Zavaliangos 2004].

Fig. 2.5 : Comparaison des données simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour le diamètre ϕ20 sans échantillon : (a) température T_B à la position B définie dans la Fig. 2.1a et b courant électrique efficace (I_{RMS}).

Fig. 2.6 : Comparaison des températures simulées (Sim) et expérimentales (Exp) au niveau des spacers du haut (T_{S_1}) et du bas (T_{S_2}) pour les conditions aux limites thermiques: (a) symétriques et (b) asymétrique.

Fig. 2.7 : Comparaison des données simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour un échantillon de diamètre ϕ20 (th = 2,5 mm) : (a) valeurs du courant électrique efficace (I_{RMS}) et (b) températures T_A et T_B respectivement aux positions A et B.

Fig. 2.8 : Champ de température avec des lignes isothermes à la température de maintien pour les conditions aux limites thermiques symétriques (a, b) et asymétriques (c, d) pour les échantillons (th = 2,5 mm) ϕ20 (a, c) et ϕ40 (b, d).

Fig. 3.1 : Points de référence dans l'échantillon.

Fig. 3.2 : Schématisation des pistons creux (a) et plein (b) utilisé pendant les expériences SPS et emplacement des pyromètres axial A et radial B.

Fig. 3.3 : Cartographies et distribution radiale de température dans l'échantillon (th = 2,5 mm) dans les cas du piston creux et plein de diamètre ϕ20 mm.

Fig. 3.4 : Distribution des lignes de courant dans l'ensemble de l'outillage SPS pour les diamètres (a) ϕ20 et (b) ϕ40 pour une épaisseur, th = 10 mm.

Fig. 3.5 : Effet de l'épaisseur sur la densité de courant électrique (a, b) et distribution de température radiale (c, d) pour les échantillons ϕ20 (a, c) et ϕ40 (b, d). Les symboles pleins correspondent à la température mesurée à la position B dans la matrice.

Fig. 3.6 : Différence de température simulée ΔT_{32} en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour les diamètres ϕ20 et 40 mm. Les symboles pleins correspondent aux différences de température expérimentale ΔT_{AB} pour des échantillons d'épaisseurs finales, th = 2,5 mm.

Fig. 3.7 : Distribution de la température au long de la ligne central axiale 3–5 pour différentes épaisseurs de l'échantillon, th. Comparaison des conditions aux limites thermiques symétrique (Sym) et asymétrique (Asym) pour l'échantillon (a) ϕ20 et (b) ϕ40.

Fig. 3.8 : Comparaison de la différence de température axiale maximale, $\Delta T_{max,35}$ (lignes continues) et la différence de température radiale centrale ΔT_{12} (lignes discontinues).

Fig. 3.9 : Effet de la température de frittage sur la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon pour les deux configurations: avec ou sans isolation thermique.

Fig. 3.10 : Distribution radiale de température dans un échantillon (ϕ20, th = 2,5 mm) pour différentes feuilles de contact : Papyex, molybdène et tantale.

Fig. 3.11 : Effet des déplacements de la matrice vers la bas (d^-) et vers le haut (d^+) sur la distribution de température suivant la ligne centrale radiale 1–2 (a) et la ligne centrale axiale 3–5 (b) pour un échantillon ϕ40 (th = 10 mm). La ligne discontinue correspond à un emplacement centré de la matrice par rapport à l'échantillon.

Fig. 3.12 : Différentes configurations de l'isolation de la matrice : (a) isolation totale (TI), (b) isolation partielle avec un morceau de feutre (PI1) et (c) isolation partielle avec 2 morceaux de feutre (PI2).

Fig. 3.13 : Effet de l'isolation totale de la matrice (feutre de graphite de 48 mm de hauteur et 10 mm d'épaisseur) sur la distribution de la température au long de la ligne centrale radiale 1–2 (épaisseur de l'échantillon, th = 10 mm).

Fig. 3.14 : Comparaison des champs de température dans différentes configurations : avec ou sans isolation de la matrice pour les échantillons de diamètre ϕ20 (a, b) et ϕ40 (c, d) et faisant 10 mm d'épaisseur.

Fig. 3.15 : Influence de l'épaisseur du feutre en graphite sur la différence de température maximale au sein de l'échantillon dans le cas d'une isolation totale.

Fig. 3.16 : Effet de la hauteur du feutre sur les températures maximale et minimale au long de la ligne centrale radiale 1–2 (échantillon ϕ40, th = 10 mm).

Fig. 3.17 : Effet de la hauteur du feutre sur la différence de température maximale ($\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$) au long des surfaces de l'échantillon centrale, supérieure et inférieure

(lignes 1–2, 3–4 et 5–6 respectivement).

Fig. 3.18 : Comparaison des champs de température pour différentes configurations d'isolation de la matrice : (a) sans isolation; (b) isolation totale; (c) isolation partielle PI2 avec H_f = 36 mm; (d) isolation partielle PI1 avec H_f = 24 mm; (e) isolation partielle PI1 avec H_f = 18 mm et (f) isolation partielle PI1 avec H_f = 18 mm et déplacement vers le haut de la matrice d^+ = 2 mm. $\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$ est la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon et $\Delta T_{max,35}$ est la différence de température maximale au long de la ligne centrale axiale 3–5.

Fig. 3.19 : Effet de la hauteur du feutre sur la différence de température maximale au long de la ligne centrale radiale (1-2) pour différents diamètres de l'échantillon et différentes épaisseurs de la matrice.

Fig. 3.20 : Configurations considérés pour le frittage d'une pièce en forme T. (a) [Matsugi 2003b], (b) [Mondalek 2011], (c) configuration proposée avec anneau en graphite (d) dimensions finales considérées.

Fig. 3.21 : Distribution de température dans le cas de la configuration (c) avec ou sans isolation. $\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$ est la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon.

Fig. 4.1 : Schéma du dispositif SPS montrant l'emplacement des pyromètres axial et radial.

Fig. 4.2 : Cycle thermique utilisé pour le refroidissement symétrique pour les deux diamètres ϕ20 mm et ϕ40 mm.

Fig. 4.3 : Points de régulation de température considérés dans les simulations (le point visé A, choisi comme référence, et quatre positions notées A' ou A'' définies par leur éloignement vertical, δ, du point A) et points de référence dans l'échantillon.

Fig. 4.4 : Influence d'un désalignement du pyromètre axial sur la déviation de température pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b). Les symboles correspondent aux températures simulées à la position B en fonction du déplacement, δ, du point de contrôle par rapport au point visé A. Les flèches horizontales correspondent aux températures expérimentales enregistrées par le pyromètre horizontal à la position B (Tableau 4.1).

Fig. 4.5 : Décentrage de la matrice et différentes positions considérées.

Fig. 4.6 : Effet d'un déplacement vers le bas ou vers le haut de la matrice sur la déviation de température à la position B pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b). Les

symboles correspondent à des températures simulées à la position B (T_B) et les flèches horizontales correspondent aux températures expérimentales enregistrées à la même position (Tableau 4.1).

Fig. 4.7 : Comparaison des champs de température pour l'échantillon ϕ20 pour différentes configurations : (a) configuration de référence correspondant au pyromètre aligné et à la matrice centrée, (b) désalignement maximal du pyromètre considéré (δ = 10 mm), (c) décalage de 3 mm vers le bas de la matrice et (d) erreurs cumulées des configurations (b) et (c).

Fig. 4.8 : Comparaison des champs de température pour l'échantillon ϕ40 pour différentes configurations : (a) configuration de référence correspondant au pyromètre aligné et à la matrice centrée, (b) désalignement maximal du pyromètre considéré (δ = 10 mm), (c) décalage de 3 mm vers le bas de la matrice et (d) erreurs cumulées des configurations (b) et (c).

Fig. 4.9 : Influence d'un désalignement du pyromètre axial sur la distribution de température sur la ligne centrale radiale de l'échantillon (ligne 1–2) et dans la matrice, pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b).

Fig. 4.10 : Influence d'un décalage de la matrice sur la distribution de température sur la ligne 1–2 et dans la matrice pour ϕ20 mm (a) et ϕ40 mm (b). La ligne en gras correspond à un emplacement centré, les lignes en couleur rouge et bleue correspondent respectivement aux déplacements vers le haut et vers le bas (1 à 5,5 mm).

Fig. 4.11 : Distribution de la température sur la ligne centrale axiale de l'échantillon (3–5) pour un déplacement de la matrice de 3 mm vers le bas (d^-) ou vers le haut (d^+).

Fig. 4.12 : Points de régulation de température en utilisant un pyromètre axial (A) ou radial (B).

Fig. 4.13 : Effet du point de contrôle de la température sur le profil de température radiale (ligne 1–2) pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b) d'une épaisseur, th = 2,5 mm.

Liste des tableaux

Tableau 3.1 : Paramètres étudiés. Les conditions utilisées dans les expériences sont en caractères gras et les autres paramètres ont été numériquement analysés.

Tableau 3.2 : Comparaison des températures simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour le piston creux et plein ϕ20 (th = 2,5 mm).

Tableau 3.3 : Comparaison des valeurs simulées (Sim) et expérimentales (Exp) de la température à la position B (T_B) et du courant (I_{RMS}), au palier du frittage pour différentes feuilles de contact. Echantillon ϕ20, th = 2,5 mm.

Tableau 3.4 : Différence maximale de température dans la pièce en forme T dans le cas de différentes configurations (a), (b) et (c) avec ou sans isolation thermique.

Tableau 4.1 : Températures enregistrées à la position B, T_B, et leurs déviation par rapport à la consigne au palier du cycle de frittage (T_S = 1300 °C).

Tableau 4.2 : Température au point A et gradients thermiques radiaux et axiaux générés dans l'échantillon ϕ40 mm.

Tableau A_1 : Propriétés thermoélectriques du graphite de nuance 2333, du feutre de graphite et des feuilles de contact (Papyex®, Molybdène, Tantale).

Tableau A_2 : Propriétés thermoélectriques de l'alumine.

Abstract

Spark Plasma Sintering (SPS) is a novel hot consolidation technique of materials, which combines the effects of pulsed electrical current and uniaxial pressure. Compared to other conventional methods, SPS offers exceptional benefits, including rapid heating rate and reduced sintering temperature and holding time, which allow to limit grain growth and to improve final properties of materials. The major limitations of the SPS sintering are related to the lack of knowledge of the real temperature of the sample and to the appearance of thermal gradients, which lead to the heterogeneity of the microstructure and consequently to that of the properties of sintered materials.

In this study, a series of SPS experiments under temperature control mode of alumina, as a good representative of non-conductive materials were performed. Their results were used to develop a finite element model with limited assumptions, using thermal-electrical coupling phenomena involved in the process. Particular attention was given to the influence of some experimental parameters which are mentioned but rarely investigated in the literature, in particular the dissymmetry of the water cooling system and the thermal insulation of the die.

Simulations based on the developed model have shown that a partial thermal insulation of the die (using a felt insulator) is more effective to homogenize the temperature inside the sample, than the total insulation of the die, commonly used. Moreover, this model shows that it is possible to optimize the temperature distribution in the sample, based on a controlled die shift with an optimal thermal insulation by varying the thickness and the height of the felt.

Moreover, the built model has allowed us to identify two potential sources of error at the origin of the temperature dispersion during the SPS experiments, namely a misalignment of the axial pyrometer used to the control temperature and a shift of the die relatively to the sample. These two sources of error have a significant impact on the deviation of the temperature from the imposed setpoint and on the axial thermal gradient generated in the sample. Their cumulative effects are accentuated in the case of large samples.

Keywords: Spark Plasma Sintering, Finite element modeling, Temperature heterogeneities, Temperature dispersion

Résumé

Le procédé de frittage SPS (Spark Plasma Sintering) est une technique de consolidation des matériaux par compactage rapide de poudres. Son principe est basé sur l'application d'une pression uniaxiale associée à un courant pulsé qui génère un taux de chauffage rapide. La possibilité d'appliquer des températures relativement basses (comparées à celles des procédés conventionnels) avec des durées de chauffage très courtes, permet de limiter le grossissement des grains et d'améliorer les propriétés finales des matériaux. Les limitations majeures du frittage SPS sont liées, d'une part, à la méconnaissance de la température réelle de l'échantillon et d'autre part, à l'apparition de gradients thermiques, qui conduisent à l'hétérogénéité de la microstructure et par conséquent à celle des propriétés du matériau fritté.

Dans cette étude, des expériences de frittage SPS ont été réalisées, dans le cas de l'alumine, choisie comme modèle représentatif pour les matériaux non-conducteurs. Leurs résultats ont été utilisés pour développer un modèle par éléments finis, couplant les phénomènes thermiques et électriques impliqués dans ce procédé. Des simulations numériques ont été réalisées pour analyser l'effet de plusieurs paramètres sur la distribution de température dans l'échantillon, relatifs soit à l'échantillon (dimensions et forme, conductivité thermique et électrique) soit à la procédure expérimentale (feuilles de contact, design et dimensions de l'outillage SPS, emplacement de la matrice par rapport à l'échantillon, isolation thermique, et les points de mesures de la température). Une attention particulière a été accordée à l'influence de certains paramètres expérimentaux qui sont évoqués mais rarement analysés dans la littérature, notamment la dissymétrie du refroidissement du système SPS et l'isolation thermique de la matrice.

Les simulations basées sur le modèle développé ont montré qu'une isolation thermique partielle de la matrice (en utilisant un feutre isolant) est plus efficace pour homogénéiser la température dans l'échantillon, que l'isolation totale de la matrice, couramment utilisée. Par ailleurs, le modèle montre qu'il est possible d'optimiser la distribution de température dans l'échantillon, en combinant un décalage contrôlé de la matrice avec une isolation thermique optimale en jouant sur l'épaisseur et la hauteur du feutre.

Par ailleurs, le modèle construit nous a permis d'identifier deux sources potentielles d'erreur à l'origine de la dispersion de la température lors des expériences SPS, à savoir un désalignement du pyromètre axial de régulation et un décalage de la matrice par rapport à l'échantillon. Ces deux sources d'erreur ont un impact important sur la déviation de la température par rapport à la consigne imposée et sur le gradient thermique axial engendré dans l'échantillon. Leurs effets qui peuvent se cumuler sont accentués dans le cas d'échantillons de grandes dimensions.

Mots-clés : Frittage SPS, Modélisation par éléments finis, Hétérogénéités de température, Dispersion de température

Table des matières

Introduction générale _____ *1*

Chapitre 1 : Étude bibliographique

Introduction _____ *3*

1-Frittage conventionnel _____ *4*

2-Frittage SPS _____ *5*

2.1-Historique _____ *5*

2.2-Principe du procédé SPS _____ *9*

2.3-Contrôle de température et limitations _____ *10*

3-Modélisation du procédé SPS _____ *12*

3.1-Évolution des modèles numériques _____ *13*

3.2-Couplage thermoélectrique _____ *16*

4-Principaux paramètres influençant le procédé SPS _____ *17*

4.1-Effet de la conductivité du matériau _____ *18*

4.2-Effet des dimensions et de la géométrie de l'échantillon _____ *20*

4.3-Géométrie et dimensions de l'outillage SPS _____ *25*

4.4-Conditions aux limites et résistances de contact _____ *27*

4.5-Conditions opératoires _____ *29*

4.6-Isolation thermique _____ *30*

4.7-Asymétrie axiale de l'équipement _____ *31*

Conclusions _____ *33*

Chapitre 2 : Procédure expérimentale et modélisation numérique du procédé SPS

Introduction _____ *34*

1-Procédure expérimentale et mesures de température _____ *35*

2-Modélisation du couplage thermique et électrique _____ *37*

3-Conditions initiales et aux limites _____ *37*

4-Résistances de contact et propriétés des matériaux 39
5-Validation expérimentale du modèle numérique 42
Conclusions 48

Chapitre 3 : Étude paramétrique et optimisation de la distribution de température dans l'échantillon lors du procédé SPS

Introduction 49
1-Étude paramétrique 50
1.1-Stratégie et paramètres étudiés 50
1.2-Effet de la forme du piston 51
1.3-Effet des dimensions de l'échantillon 55
1.3.1-Distribution radiale de température 55
1.3.2-Distribution axiale de température 61
1.4-Effet de la température de frittage 63
1.5-Effet des feuilles de contact 64
2-Optimisation de la distribution de température 66
2.1-Effet de la position de la matrice 66
2.2-Effet de l'isolation thermique de la matrice 69
2.2.1-Isolation totale et épaisseur optimale 70
2.2.2-Isolation partielle 74
2.3-Configuration optimale 76
2.3.1-Combinaison de deux effets : isolation partielle et décalage de la matrice 76
2.3.2-Influence du diamètre de l'échantillon 79
3-Application à une pièce en forme de T 80
Conclusions 82

Chapitre 4 : Simulation de la dispersion de la température lors du frittage SPS : Influence de la procédure expérimentale

Introduction 84
1-Procédure expérimentale et dispersion des températures 85
2-Modélisation de la dispersion de température 86
2.1-Effet d'un désalignement du pyromètre axial 87

2.2-Effet d'un décalage de la matrice 91
2.3-Effet de la dispersion sur la distribution de la température 93
2.4-Effet de la dispersion sur les gradients thermiques 97
3-Utilisation d'un pyromètre de régulation radiale 101
Conclusions 103
Conclusion générale et perspectives 105
Références 108
Annexe 116

Introduction générale

La densification des matériaux par frittage SPS (Spark Plasma Sintering) suscite un grand intérêt de la recherche tant pour les sciences fondamentales que pour les applications industrielles. Le principe de ce procédé de consolidation est basé sur la combinaison d'un chauffage par effet Joule et l'application d'une force uniaxiale au matériau sous forme de poudre. La principale caractéristique du SPS par rapport aux autres techniques de frittage conventionnelles est la vitesse élevée de montée en température et le temps de traitement réduit, qui permettent d'éviter le grossissement du grain et ainsi, d'améliorer les propriétés mécaniques ou physiques des produits finaux. Une attention croissante est portée à cette technique de frittage, qui a été appliquée à une variété de matériaux avancés dans un large éventail de domaines d'applications.

La recherche dans le domaine des matériaux céramiques est pluridisciplinaire et s'appuie pour une grande part sur le développement d'une nouvelle génération des matériaux offrant des propriétés finales performantes dans de nombreux domaines comme le biomédical (prothèses de têtes fémorales, implants et prothèses dentaires), l'énergie (combustibles nucléaires, pile à combustibles et échangeurs de chaleurs), les applications structurales (réfractaires et outils de coupe), le transport (roulements à billes, isolants, freins, bougies d'allumage, support de catalyseurs), les composants électroniques (condensateurs et substrats-boitiers), la défense (protection balistique : vitres blindées, gilet pare-balles).

Au vu des résultats remarquables obtenus, en ce qui concerne la consolidation des poudres via la technologie SPS, ce procédé ouvre à l'industrie des perspectives extrêmement larges pour la fabrication de nouveaux matériaux, le principal inconvénient qui limite l'utilisation de ce procédé est l'apparition de gradients de température dans le matériau, qui conduisent à une hétérogénéité de sa microstructure et par conséquent à celle de ses propriétés. Parmi les autres limitations de ce procédé on peut citer la restriction à des formes simples et à de petites dimensions d'échantillons, la méconnaissance de la température réelle de l'échantillon, un courant intense et des pertes d'énergies importantes.

Afin de mieux comprendre le procédé de frittage assisté par un courant pulsé, de nombreux modèles prédictifs à l'échelle macroscopique sur la distribution du courant, de la température et des contraintes mécaniques subies par le matériau ont été développés sans

passer par des expériences coûteuses. C'est dans ce contexte que s'inscrit ce travail de thèse qui est une contribution à la compréhension de l'origine des gradients thermiques induits lors du procédé SPS et à leur minimisation. A cet effet, un modèle a été construit, à l'aide du logiciel commercial COMSOL Multiphysics® dans le but de simuler la distribution de température dans l'ensemble du système SPS, afin d'analyser l'influence de certains paramètres expérimentaux qui sont évoqués mais rarement analysés dans la littérature, notamment la dissymétrie du refroidissement du système SPS et l'isolation thermique de la matrice.

Dans la présente étude, nous nous intéressons à l'alumine, qui est un matériau largement étudié, à la fois dans le frittage conventionnel et le frittage SPS et pratiquement usité dans de nombreuses applications industrielles en raison de ses propriétés et de son prix modéré, faisant de l'alumine un bon matériau représentatif pour d'autres céramiques non conductrices.

Ce mémoire est structuré comme suit :

Le premier chapitre du manuscrit est consacré à une étude bibliographique sur le procédé SPS, incluant l'évolution des modèles numériques et leurs apports pour décrire l'évolution de la température lors du frittage.

Le second chapitre porte sur le dispositif expérimental SPS utilisé et sa modélisation numérique.

Le troisième chapitre est consacré à la simulation de l'effet de différents paramètres liés à la géométrie et aux conditions expérimentales afin d'optimiser la distribution de température dans le matériau.

Le dernier chapitre met en évidence l'influence de la procédure expérimentale sur la dispersion de la température lors du frittage SPS et son impact sur la distribution de température dans l'échantillon.

Enfin, le manuscrit se termine par la présentation de conclusions et perspectives qu'ouvre ce travail.

Chapitre 1

Étude bibliographique

Ce chapitre présente les différentes étapes d'élaboration d'une céramique, le principe du frittage SPS, son historique et son évolution. Ensuite, nous nous intéresserons à l'apport et l'intérêt de la modélisation numérique qui a joué un rôle essentiel, dans la compréhension du procédé SPS et son optimisation. Un état de l'art des modèles numériques est présenté en discutant les principaux paramètres expérimentaux influençant la distribution de la température dans le procédé SPS.

1-Frittage conventionnel

Le frittage est une étape déterminante dans le cycle d'élaboration des matériaux céramiques, qui correspond à leur consolidation thermique, à partir d'un compact pulvérulent préalablement mis en forme (Fig. 1.1).

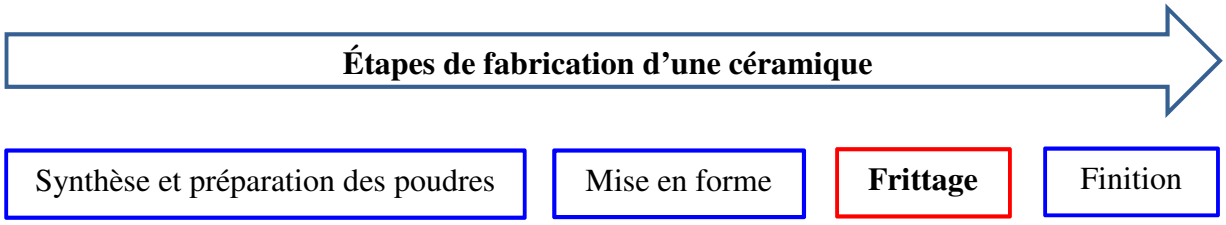


Fig. 1.1 : Principales étapes d'élaboration d'une céramique.

D'un point de vue technologique, il existe plusieurs méthodes de frittage qui s'adaptent en fonction de la réalisation souhaitée. On distingue le frittage naturel effectué sans contrainte mécanique (chauffage uniquement), du frittage sous charge effectué en appliquant une pression extérieure simultanément au chauffage. Ce dernier est particulièrement utilisé pour les matériaux difficiles à fritter ou pour obtenir des densités proches de la densité théorique.

La figure (1.2) présente les deux types de frittage sous charge les plus couramment utilisés: la compression à chaud (Hot Pressing, HP) et la compression isostatique à chaud (Hot Isostatic Pressing, HIP). Le HIP, se distingue par le fait que la pression est appliquée de manière isostatique à la poudre via un gaz neutre injecté dans l'enceinte, conférant au matériau densifié une structure finale isotrope, homogène ainsi que des propriétés mécaniques améliorées.

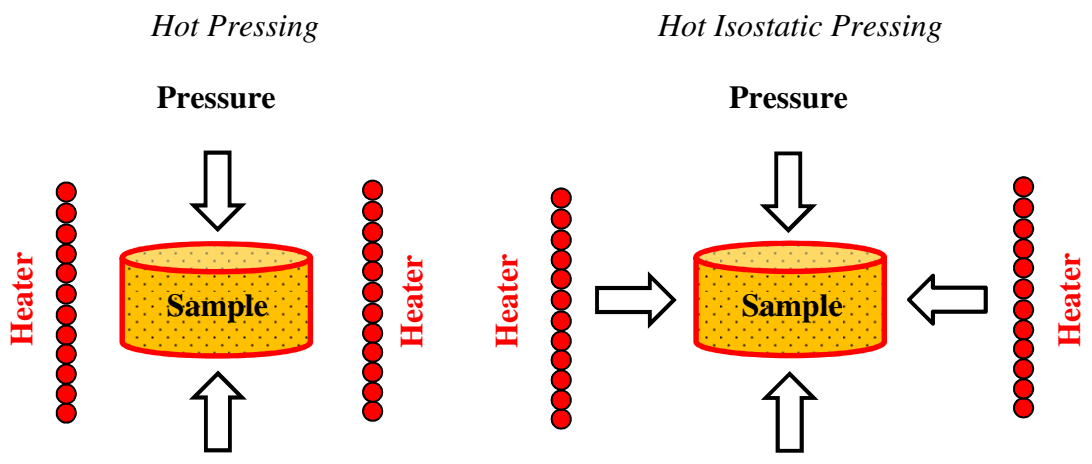


Fig. 1.2 : Schématisation de différents types de frittage sous charge.

Parallèlement aux techniques conventionnelles, de nouvelles techniques de frittage sont actuellement en développement telles le frittage par micro-onde [Agrawal 2006], le frittage SPS (Spark Plasma Sintering) [Orrù 2009] et le frittage FS (Flash Sintering) [Dancer 2016, Olevsky 2018a]. Les deux derniers sont basés sur un chauffage par effet Joule par application d'un courant électrique.

2-Frittage SPS

2.1-Historique

Grasso *et al.* [Grasso 2009a] ont souligné que le frittage via l'utilisation du courant électrique comme paramètre auxiliaire, remonte à 1906 avec le brevet déposé par Bloxam et s'est imposé dans le domaine de la recherche à partir de 1966, avec le brevet de Inoue sur le frittage des métaux et des céramiques. La société Sodick Co. Ltd. a ensuite développé en 1980 le Plasma Activated Sintering (PAS) avant qu'en 1990 la société Coal Mining Co. Ltd. développe le Spark Plasma Sintering (SPS) en utilisant le même design conçu par Inoue (Fig. 1.3).

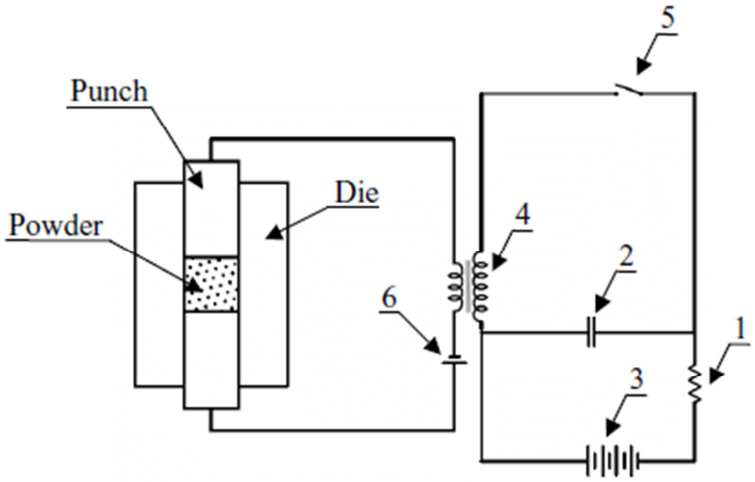


Fig. 1.3 : Schéma du frittage impulsif à décharge d'étincelles breveté par Inoue en 1967. (1) Résistance (2) Batterie de condensateurs (3) Batterie (4) Transformateur primaire (5) Interrupteur (6) Batterie DC [Grasso 2009a].

Aujourd'hui, plusieurs fabricants de machines SPS proposent leurs appareils pour des applications en laboratoire ou industrielles, les plus connus étant SPS Syntex Inc. (anciennement SPS Sumitomo) au Japon depuis 1991, FCT (Fine Ceramics Technologies), FCT (Fine Ceramics Technologies) Systeme GmbH en Allemagne depuis 2003, Thermal Technology LLc aux États-Unis depuis 2008 et Eltek Co. en Corée du sud. La figure (1.4) représente les machines SPS Syntex et FCT Systeme utilisée dans cette étude. Bien que les deux appareils SPS reposent sur le même principe de fonctionnement, la comparaison directe des mesures s'accompagne de certaines difficultés [Olevsky 2018b]. Ils diffèrent également dans la forme géométrique des pistons (pleins pour Syntex et creux pour FCT) et des entretoises ou spacers (cylindriques pour Syntex et coniques pour FCT).

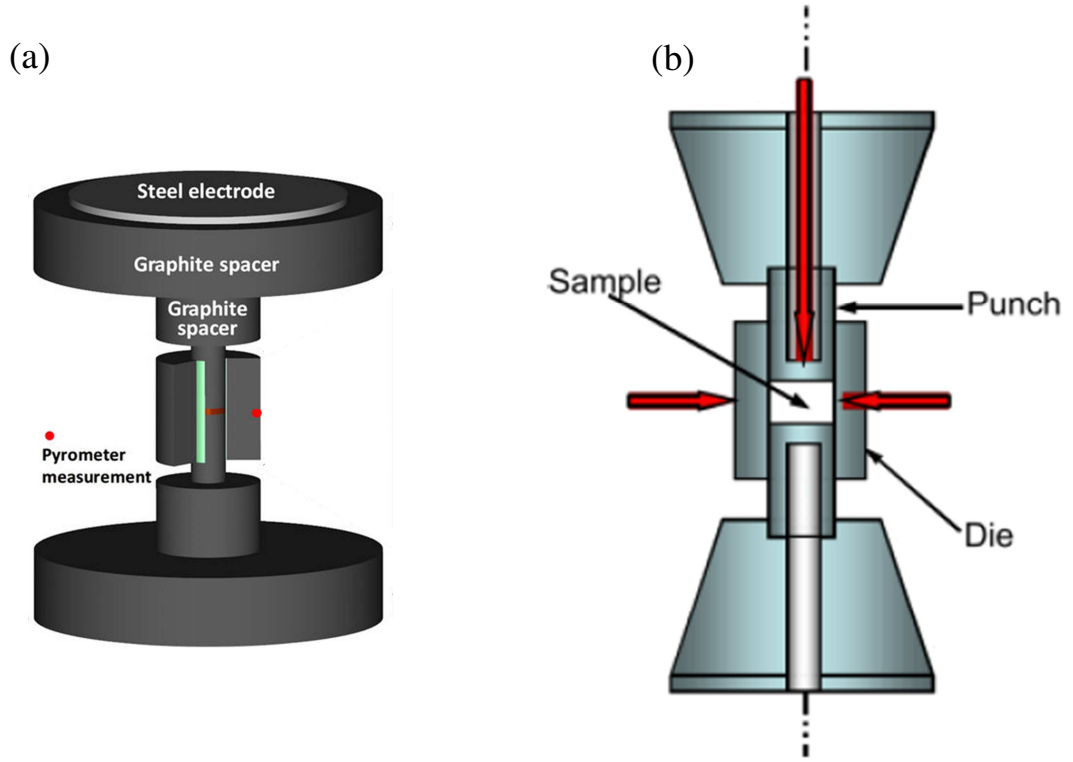


Fig. 1.4 : Représentation des machines (a) SPS Syntex d'après [Manière 2017] et (b) FCT Systeme d'après [Langer 2011].

La technique SPS a largement fait ses preuves ces vingt dernières années dans le domaine de la consolidation des poudres, en raison de ses nombreux avantages technologiques et économiques par rapport aux procédés de frittage conventionnels. Un taux de chauffage rapide, un abaissement de température de frittage et un temps de maintien court permettent d'éviter la croissance du grain et d'améliorer les propriétés mécaniques et physiques des matériaux densifiés. Ainsi, une attention croissante est portée à cette technologie, qui a été appliquée à une large variété de matériaux avancés dans différents domaines d'applications [Orrù 2009, Suárez 2013, Guillon 2014].

L'intérêt suscité par la technologie SPS se traduit par le nombre croissant de documents publiés sur cette technique (Fig. 1.5). Une grande partie des travaux de recherche réalisés sont de nature expérimentale, mais de plus en plus de travaux portent sur la modélisation numérique : près de 11000 publications depuis l'année 1994 (jusqu'en avril 2018) dont le nombre portant sur la modélisation représente 51,3 % (5632 publications).

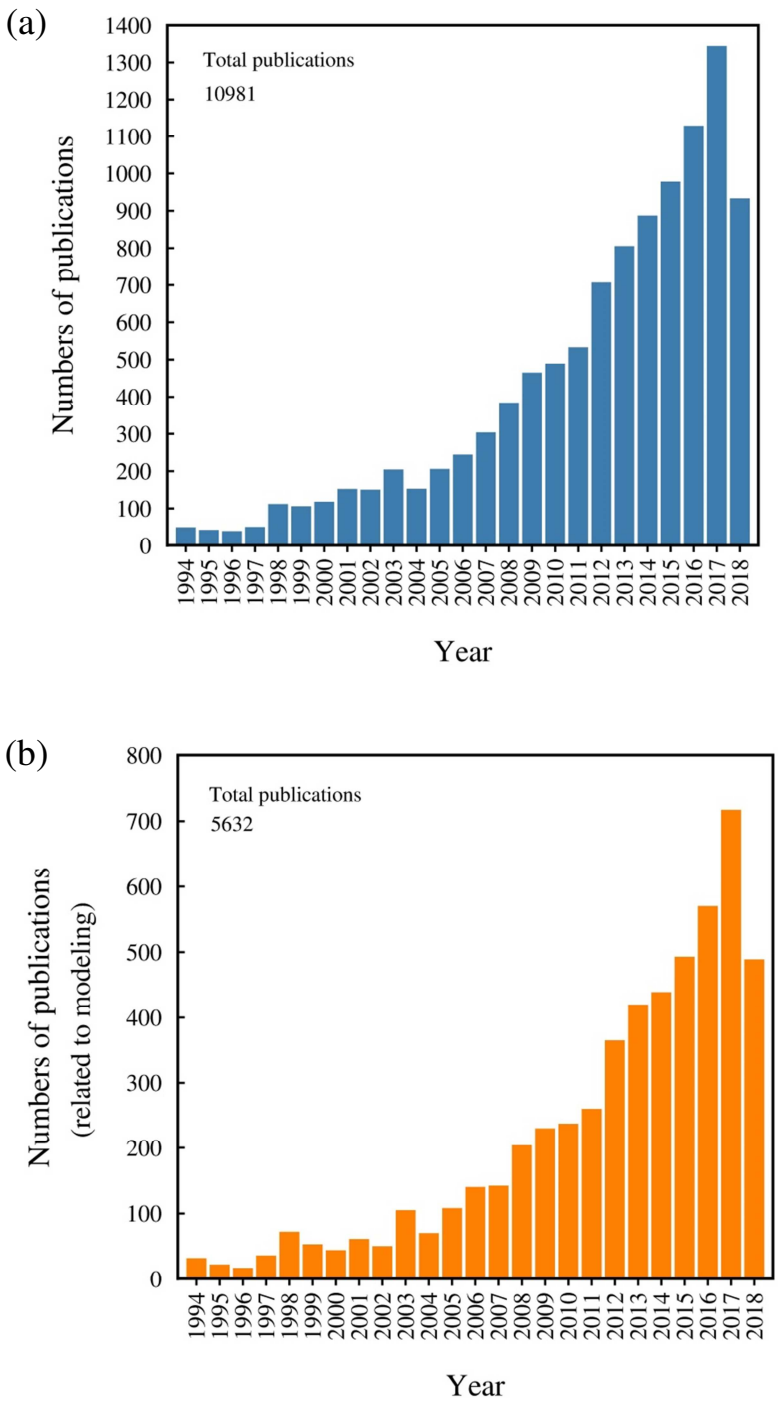


Fig. 1.5 : Nombre de documents publiés sur le procédé SPS. Statistiques recueillis auprès de la base de données ScienceDirect (relevé en avril 2018) en utilisant le mot-clé (a) « Spark plasma sintering » et (b) « Modeling of spark plasma sintering ».

En 2010, à l'Université du Colorado, une autre utilisation du courant électrique, appelée le Flash Sintering (FS), apparaît et consiste à forcer le courant à circuler à travers l'échantillon sans utiliser la matrice en graphite [Cologna 2010]. Depuis sa première parution, plusieurs travaux [Grasso 2014 2016, Yu 2017, Todd 2017, Tatarko 2017, McKinnon 2017]

ont été conduits sur le frittage des céramiques via cette technologie qui présente un grand intérêt en termes de consommation énergétique (durée et température de frittage), comme illustré sur la figure (1.6). Mais inversement en matière de maîtrise des conditions de frittage.

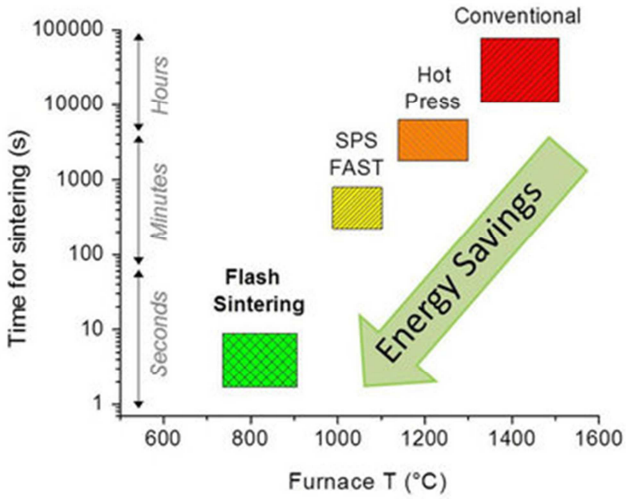


Fig. 1.6 : Potentiels d'économie d'énergie de la technologie pour le frittage SPS [FAST Ceramics].

2.2-Principe du procédé SPS

Le frittage SPS (Spark Plasma Sintering) est aussi connu dans la littérature par différents noms tels que le Field Assisted Sintering Technique (FAST) ou Pulsed Electric Current Sintering (PECS). Son principe de fonctionnement consiste à allier les effets d'un courant électrique continu pulsé (on-off) et d'une pression uniaxiale pour densifier des matériaux pulvérulents [Orrù 2009, Zapatasolvas 2015].

L'ensemble de l'outillage (Fig. 1.7) est connecté en série, de l'électrode supérieure à celle inférieure situées aux extrémités de l'équipement SPS. Les spacers, les pistons et la matrice sont généralement fabriqués en graphite et fournissent un chauffage par effet Joule à l'échantillon chargé au milieu de la matrice. L'intérieur de la matrice est recouvert avec des feuilles en graphite (Papyex) afin de limiter toute réaction avec l'échantillon, mais également de faciliter le démoulage. Une couche de feutre est placée autour de la matrice qui permet de limiter les pertes de chaleur par rayonnement. Un système de refroidissement à eau permet d'évacuer la chaleur aux bornes des électrodes.

La technologie SPS s'apparente au pressage à chaud mais sa particularité par rapport aux autres procédés conventionnels, réside dans le fait que la source de chaleur n'est pas

externe mais qu'un courant électrique appliqué via des électrodes passe à travers la matrice de la presse et, également à travers l'échantillon, sous forme de poudre, lorsque celui-ci est conducteur (Fig. 1.7).

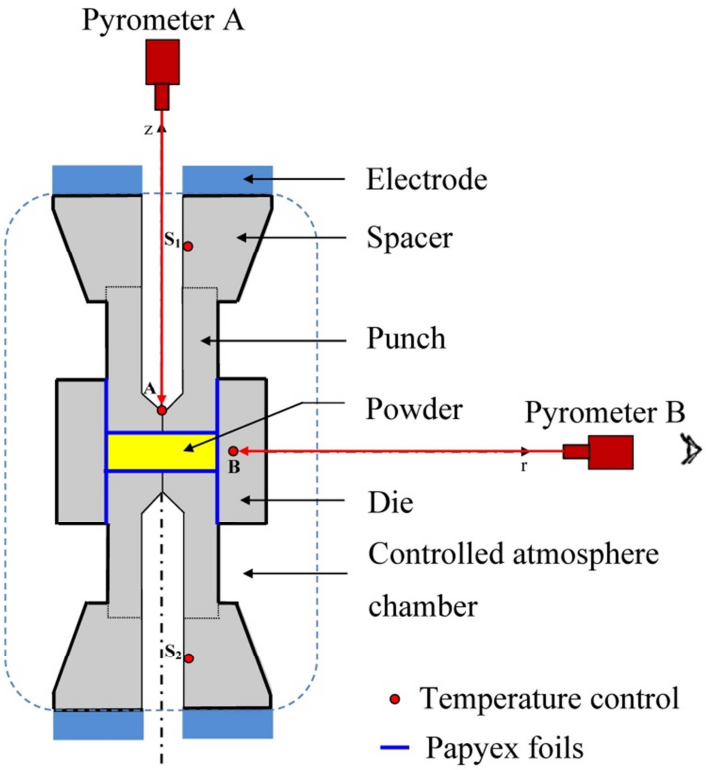


Fig. 1.7 : Schéma du dispositif de frittage SPS.

La matrice et l'ensemble des pistons agissent en tant que source de chauffage ce qui permet d'obtenir des vitesses de montée en température élevées. Contrairement au cas du frittage à chaud, l'échantillon est chauffé de l'extérieur vers l'intérieur par conduction thermique à partir de la matrice. La matrice, à son tour, est chauffée par un rayonnement thermique provenant des éléments chauffants du four et/ou de la convection forcée de gaz chauds.

2.3-Contrôle de température et limitations

Le principal inconvénient du procédé SPS est lié à la génération de gradients de température, qui conduisent à une hétérogénéité de la microstructure du matériau fritté comme on peut le voir sur la figure (1.8), qui montre la différence des microstructures entre le centre et au bord d'échantillons de TiAl, frittés en utilisant les deux machines FCT et Syntex.

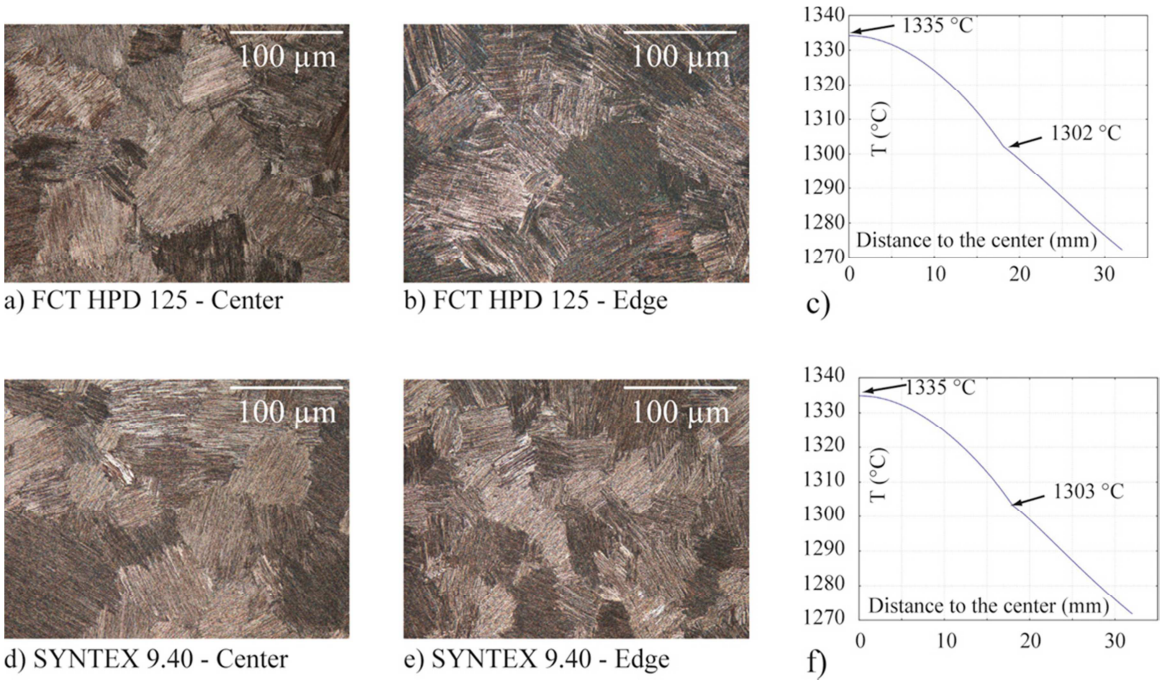


Fig. 1.8 : Microstructures au centre et au bord d'un échantillon de TiAl fritté (a, b) à 1250 °C sur FCT HPD 125, (d, e) à 1300 °C sur SYNTEX 9.40 et (c, f) distribution radiale de la température dans l'ensemble échantillon et matrice [Voisin 2013].

Un autre inconvénient majeur du procédé SPS est la difficulté de connaitre avec précision la température au niveau de l'échantillon. Généralement, l'évolution de la température de frittage est contrôlée en temps réel soit avec un thermocouple ou avec un pyromètre optique dont la précision et la position sont décisifs pour la qualité de la mesure. Au début du développement de la technologie SPS, la mesure de la température s'est faite à la surface ou au cœur de la matrice comme c'est le cas de la machine SPS Syntex [Grasso 2009b].

L'amélioration du design de l'équipement SPS a permis plus de précision en mesurant la température près de l'échantillon et une comparaison plus réaliste avec les procédés conventionnels. Dans le cas de la machine FCT, Vanmeensel *et al.* [Vanmeensel 2005] ont utilisé un pyromètre axial focalisé dans la partie basse du trou percé dans le piston supérieur, comme illustré sur la figure (1.9). Cette figure compare les différents points de mesures de température pour le procédé HP et les deux principaux fournisseurs pour les appareils SPS (SPS Syntex-Japon, FCT Systeme-Allemagne).

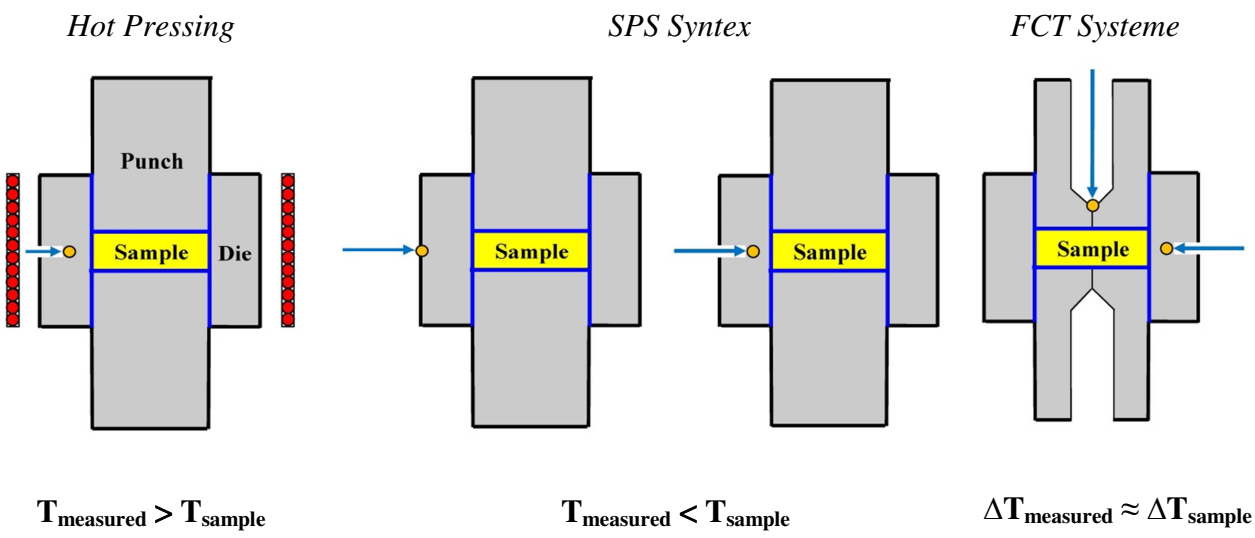


Fig. 1.9 : Points de mesure de la température dans différents équipements de frittage.

De nombreux travaux de recherche sur le frittage SPS combinant à la fois la modélisation numérique et l'expérience ont mis en évidence un écart entre la température modélisée et celle mesurée qui pourrait être dû à l'incertitude sur les vraies valeurs mesurées [Anselmi-Tamburini 2005, Räthel 2009, Olevsky 2012, Voisin 2013, Mani 2015, Morin 2016]. En effet, une étude récente menée par Gremillard *et al.* [Gremillard 2017] a évoqué la difficulté des expériences et a montré qu'il est difficile de savoir si les résultats fournis par les expériences sont les plus précis ou ceux de la simulation numérique.

D'autres inconvénients peuvent s'ajouter et sont relatifs au coût plus important que le frittage classique, à la consommation d'énergie requise pour la densification des matériaux de grandes dimensions c'est-à-dire un courant intense et des pertes d'énergies importantes, la restriction aux petites dimensions et une technique plutôt réservée à la fabrication des pièces à haute valeur ajoutée.

3-Modélisation du procédé SPS

Durant plusieurs décennies, le traitement thermique SPS a ressemblé à une boite noire, rendant difficile la maîtrise des champs de température, de courant et de pression. Aujourd'hui, la modélisation numérique a apporté des réponses à certaines problématiques rencontrées et a contribué à sa compréhension et à l'optimisation de ses conditions expérimentales.

3.1-Évolution des modèles numériques

La première modélisation analytique a été menée par Raichenko *et al.* [Raichenko 1989] en 1989. Ces auteurs ont résolu analytiquement l'équation de la chaleur en une dimension (1D) suivant la direction axiale (Oz), sur l'ensemble : piston/échantillon/piston sans matrice (Fig. 1.10).

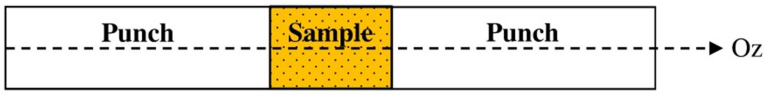


Fig. 1.10 : Domaine d'étude et conditions aux limites considérées par le modèle de [Raichenko 1989].

En 2001, Yoneya *et al.* [Yoneya 2001] ont présenté un modèle simple axisymétrique, en régime stationnaire limitée aux éléments entourant l'échantillon (Fig. 1.11). Ce modèle a permis d'avoir une idée générale sur la distribution de température dans le domaine étudié.

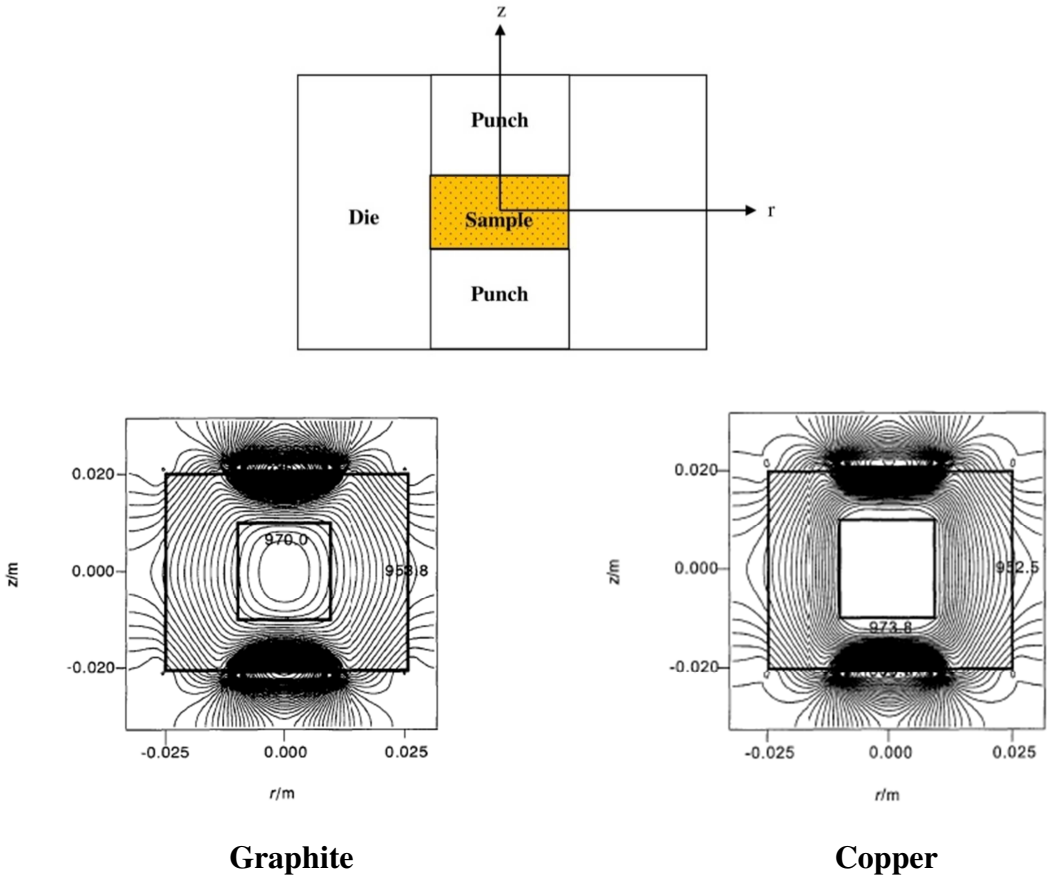


Fig. 1.11 : Domaine du procédé SPS modélisé par [Yoneya 2001]. Distribution de la température dans un échantillon en graphite et en cuivre, respectivement.

Yucheng *et al.* [Yucheng 2002] ont considéré le même domaine que celui étudié par Yoneya *et al.* [Yoneya 2001] dans un régime stationnaire pour le frittage de l'échantillon, TiB_2/BN. Une solution est obtenue en deux dimensions (2D), en coordonnées cylindriques r et z en tenant compte de l'axisymétrie, comme le produit de la solution de deux problèmes 1D. Un gradient de température de l'ordre de 350 °C a été obtenu entre le centre de l'échantillon et sa bordure pour une température de frittage de 1700 °C. Cependant, les résultats expérimentaux ont montré qu'il y a une différence de température encore plus élevée (450 °C) entre les deux points considérés, via deux thermocouples placés dans les trous percés dans le piston supérieure et la matrice.

En 2003, Matsugi *et al.* [Matsugi 2003a] ont proposé une simulation numérique du procédé SPS, en utilisant la méthode des différences finies à l'état stationnaire, sur deux matériaux, l'un est isolant et l'autre conducteur pour comprendre l'effet de la conductivité électrique sur le champ de température, en prenant en compte une géométrie plus réaliste. En effet le domaine d'étude ne se limite plus aux éléments entourant l'échantillon, mais prend également en compte la totalité des pistons (Fig. 1.12). Les résultats numériques ont été confrontés aux mesures expérimentales fournies par plusieurs thermocouples placés à différents points de l'assemblage. Les auteurs ont montré que les pistons sont considérés comme le foyer des plus hautes températures quelle que soit la nature électrique de l'échantillon (isolant ou conducteur).

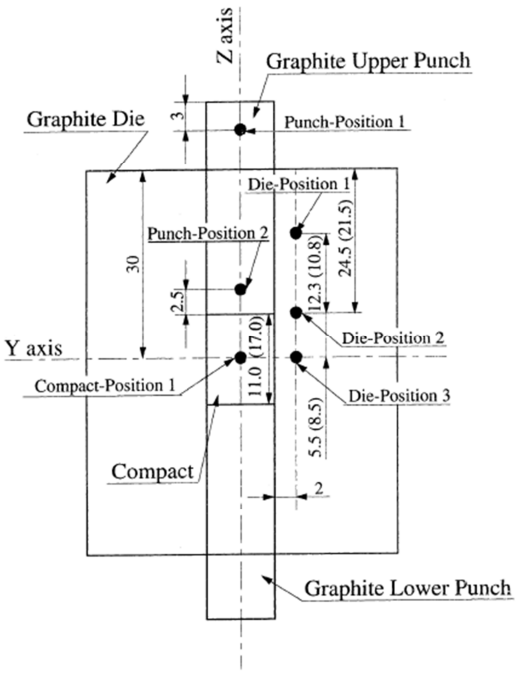


Fig. 1.12 : Géométrie considérée pour simuler les phénomènes thermiques et électriques. Les points (•) indiquent l'emplacement des thermocouples dans l'échantillon, les pistons et la matrice [Matsugi 2003a].

Dans la même année Wang *et al.* [Wang 2003] ont étudié l'évolution du champ de température dans un régime transitoire sur un échantillon de nitrure de bore (BN) électriquement isolant. Ils ont simulé un domaine d'étude similaire à celui modélisé par [Matsugi 2003a] en utilisant le logiciel basé sur la méthode des éléments finis, ANSYS. Les contacts thermiques et électriques dans les différentes interfaces sont considérés parfaits et une différence de potentiel électrique de 3 V a été appliquée aux extrémités des pistons.

A partir des années 2000, la modélisation numérique du procédé SPS commence à évoluer pour tenir compte des différents phénomènes physiques régissant le frittage des matériaux, particulièrement le couplage thermoélectrique [Anselmi-Tamburini 2005, Vanmeensel 2005, Tiwari 2009, Räthel 2009, Molénat 2010, Junting 2012, Wei 2012, Allen 2012, Voisin 2013, Pavia 2013, Chen 2015, Vanherck 2015, Li 2015, Gu 2015]. Certains travaux ont intégré l'effet de la dilatation thermique et de la pression dans leurs simulations pour étudier la distribution des contraintes [Wang 2007, Cincotti 2007, McWilliams 2008, Antou 2009, Muñoz 2010, Gremillard 2017], ou une loi de densification [Maizza 2009, Wang 2010, Song 2011a, Mondalek 2011, Wolff 2012, Olevsky 2012, Manière 2016].

3.2-Couplage thermoélectrique

Les modèles actuels du procédé SPS sont basés sur le couplage des phénomènes thermiques et électriques, en tenant compte de l'effet Joule généré. La température est calculée en utilisant l'équation de conservation de l'énergie (Éq. (1)) et celle de la charge électrique (Éq. (2)) qui s'écrivent :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla.\left(-k\vec{\nabla}T\right) = \dot{q}_J \qquad (1)$$

$$\nabla.\vec{J} = 0 \qquad (2)$$

Avec, $\dot{q}_J = \vec{J}.\vec{E}$ la quantité de chaleur par unité de temps et par unité de volume, $\vec{J} = \sigma_e\vec{E}$ la densité du courant électrique, $\vec{E} = -\vec{\nabla}U$ le champ électrique dérivant du potentiel U, σ_e la conductivité électrique du matériau, ρ la densité volumique, c_p la chaleur spécifique, k la conductivité thermique, T la température et t le temps.

-Les conditions aux limites électriques appliquées aux frontières du domaine d'étude sont généralement un potentiel [Molénat 2010] ou un courant électrique [Pavia 2013] imposé à la surface supérieure du dispositif.

-Les conditions aux limites thermiques prennent en compte le refroidissement à l'eau aux frontières du système SPS. Elles s'expriment soit par l'application de la condition de Dirichlet sur la température (Éq. (3)) ou bien par l'application de la condition de Neumann sur un flux convectif au niveau des bornes des électrodes de la machine (Éq. (4)) :

$$T = Cte \qquad (3)$$

$$\varphi_c = h_c(T_{se} - T_w) \qquad (4)$$

Avec, h_c le coefficient d'échange thermique par convection, T_{se} la température de la surface horizontale de l'électrode, T_w la température de l'eau de refroidissement, et φ_c la densité de flux thermique transféré par convection de l'électrode vers l'eau.

-Les surfaces verticales du dispositif subissent des pertes par rayonnement selon l'équation (5) :

$$q_r = \sigma\varepsilon\left(T_e^4 - T_a^4\right) \qquad (5)$$

Avec, σ la constante de Stefan-Boltzmann, ε l'émissivité de la matrice, T la température à la surface d'émission (surface latérale de la matrice), et T_a la température de la surface d'absorption (la paroi interne de l'enceinte refroidie).

En 2004, Zhang et Zavaliangos sont les premiers à développer un modèle en éléments finis tenant compte des phénomènes thermiques et électriques dans l'ensemble du système SPS [Zhang 2004, Zavaliangos 2004]. Les auteurs ont pu montrer clairement (et vérifier expérimentalement) qu'il existe un gradient important entre le centre de l'échantillon et la surface de la matrice, en concluant que la valeur de la température au centre de l'échantillon est généralement plus élevée que celle à la surface de la matrice. Le même résultat a été obtenu par [Govea-Alcaide 2014] lors du frittage d'un matériau supraconducteur (Bi-2223), comme on peut le voir par la distribution radiale de la température, représentée sur la figure (1.13).

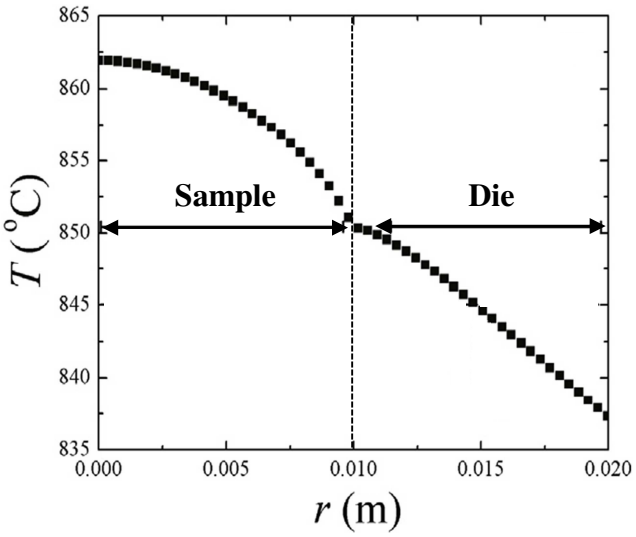


Fig. 1.13 : Distribution radiale de température dans l'ensemble : échantillon/matrice [Govea-Alcaide 2014].

4-Principaux paramètres influençant le procédé SPS

La distribution du champ thermique dans le procédé SPS dépend d'un grand nombre de paramètres, liés soit au matériau fritté (conductivité et géométrie), soit à la procédure expérimentale. Sans passer par l'exécution d'expériences coûteuses, la modélisation numérique permet de prédire leur influence pour homogénéiser le champ de température dans l'échantillon.

4.1-Effet de la conductivité du matériau

La distribution radiale et axiale du courant est différente selon la nature électrique du matériau fritté (isolant ou conducteur), comme le montre la figure (1.14). Dans le cas d'un conducteur électrique, la partie principale du courant circule à travers l'échantillon tandis que le courant est obligé de circuler à travers la matrice dans le cas d'un isolant électrique. Dans ce dernier cas, le chauffage par effet Joule dans la matrice compense les pertes de chaleur dues au rayonnement provenant de la surface latérale de la matrice. Anselmi-Tamburini *et al.* [Anselmi-Tamburini 2005] ont reporté qu'aucun courant ne peut traverser l'échantillon si la conductivité est inférieure à 10^3 S/m.

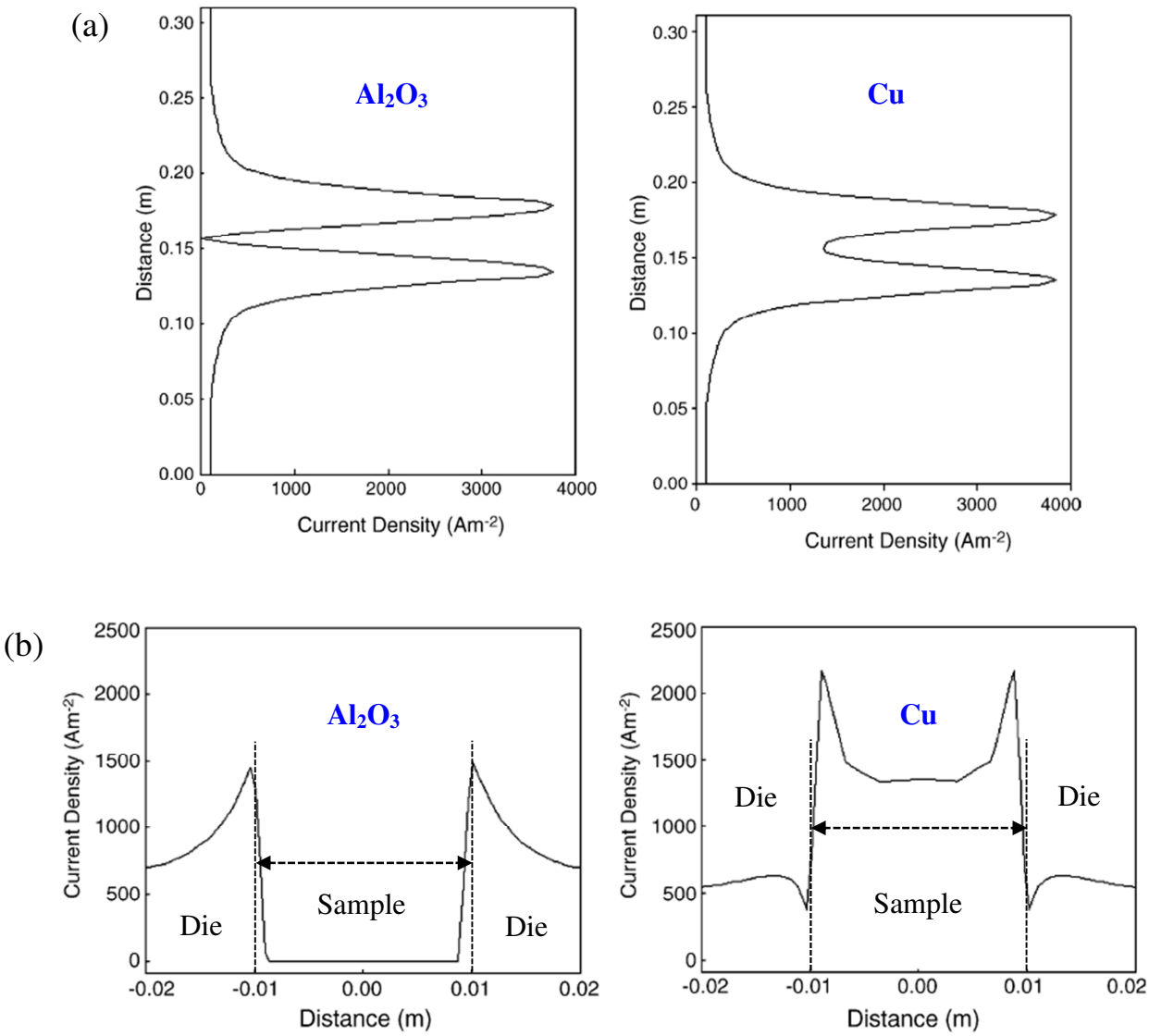


Fig. 1.14 : (a) Distribution de la densité de courant au long de l'axe vertical (Oz) de l'ensemble du système SPS, (b) Distribution radiale de la densité de courant pour un

échantillon non conducteur (alumine) et conducteur (cuivre). Le profil radial est calculé au long de la ligne centrale de l'ensemble : échantillon/matrice. L'épaisseur de l'échantillon est de 3 mm; le diamètre de l'échantillon est de 19 mm. Tension appliquée = 5 V [Anselmi-Tamburini 2005].

Muñoz et Anselmi-Tamburini en 2010 ont proposé un modèle numérique sur le frittage de deux matériaux (alumine et cuivre) à une température de frittage de 1027 °C avec un taux de chauffage élevé (200 °C/min). Leurs résultats ont montré qu'il existe un gradient de température le long de la direction radiale dans l'alumine, contrairement au cuivre où le champ thermique est homogène (Fig. 1.15). Tiwari *et al.* [Tiwari 2009] ont montré que le gradient de température dans le matériau est fortement sensible à la fois à la conductivité thermique de l'échantillon et à la puissance injectée dans l'appareillage SPS.

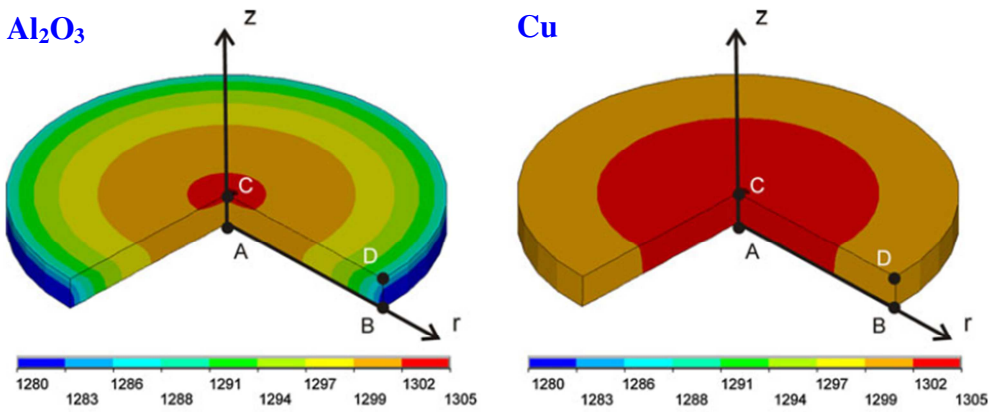


Fig. 1.15 : Distribution de la température à l'intérieur des échantillons : Al_2O_3 et Cu. Température en degré Kelvin [Muñoz 2010].

Vanmeensel *et al.* [Vanmeensel 2005] ont comparé le gradient de température radial à l'intérieur d'un échantillon, conducteur (TiN) et non-conducteur (3Y-ZrO_2) dans une configuration sans isolation thermique (Fig. 1.16). La différence de gradient thermique est due aux propriétés électriques de l'échantillon. Cependant, comme l'échantillon est petit par rapport à l'outillage et que le graphite a une bonne conductivité thermique, la chaleur est rapidement transférée à l'échantillon 3Y-ZrO_2. En plus de cela, à haute température la zircone Y-TZP devient généralement un bon conducteur ionique, ce qui donne une distribution de température plus homogène à l'intérieur de l'échantillon 3Y-ZrO_2.

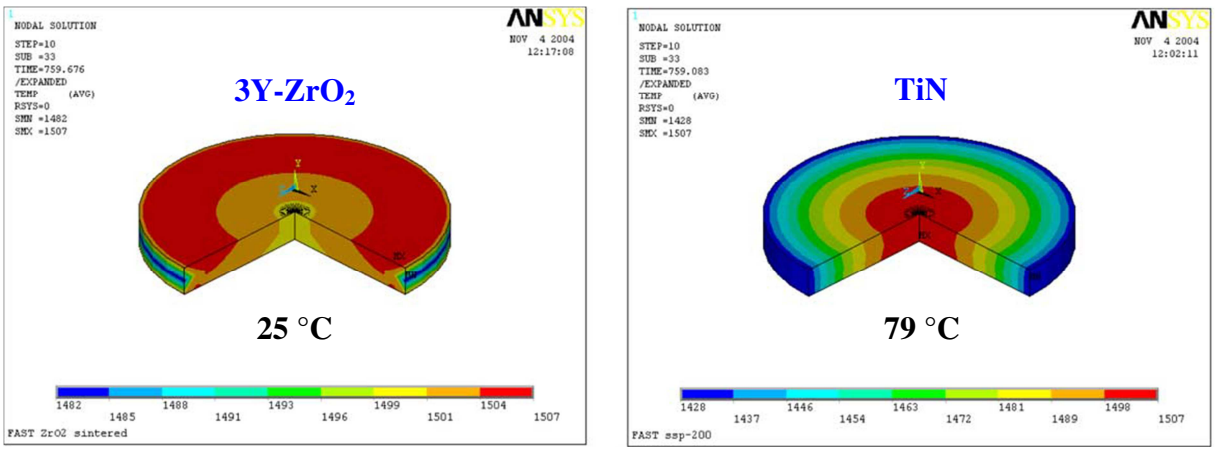


Fig. 1.16 : Effet de la conductivité électrique sur les gradients thermiques à l'intérieur de l'échantillon à une température de frittage de 1500 °C [Vanmeensel 2005].

En 2014, Guillon *et al.* [Guillon 2014] ont étudié le frittage (en utilisant un feutre en graphite) de deux échantillons de nature électrique différente : un est électriquement isolant (Si_3N_4) et l'autre est conducteur (TiN). Les résultats obtenus ont montré que la valeur et la direction du gradient de température dans l'échantillon et la matrice dépendent fortement du caractère électrique des matériaux densifiés. Pour les matériaux conducteurs, la température à la surface de la matrice est inférieure à celle de l'échantillon. Pour les matériaux isolants, une situation inverse est généralement observée.

4.2-Effet des dimensions et de la géométrie de l'échantillon

Quelle que soit la nature électrique de l'échantillon, l'homogénéité thermique ainsi que les propriétés finales obtenues dépendent fortement de sa forme géométrique et de ses dimensions. Chen *et al.* [Chen 2015] ont fritté différents diamètres d'un échantillon d'oxyde de zinc dopé à l'aluminium (AZO) par SPS dans les mêmes conditions. Leurs résultats mettent en évidence que le gradient de température est plus important quand le diamètre de l'échantillon augmente (Fig. 1.17), ce qui conduit à une diminution de la densité comme on peut le voir sur la figure (1.18) qui montre également l'effet de la température de frittage sur la densité et l'hétérogénéité de la microstructure (évolution entre le centre et le bord de l'échantillon) due au gradient thermique engendré.

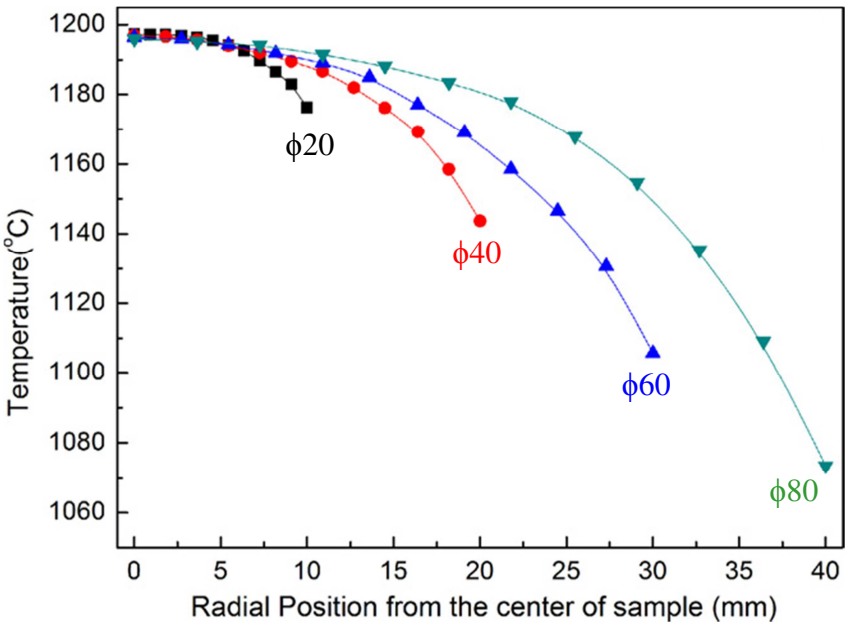


Fig. 1.17 : Répartition de la température le long de la direction radiale pour différents diamètres d'échantillons d'oxyde de zinc dopé à l'aluminium [Chen 2015].

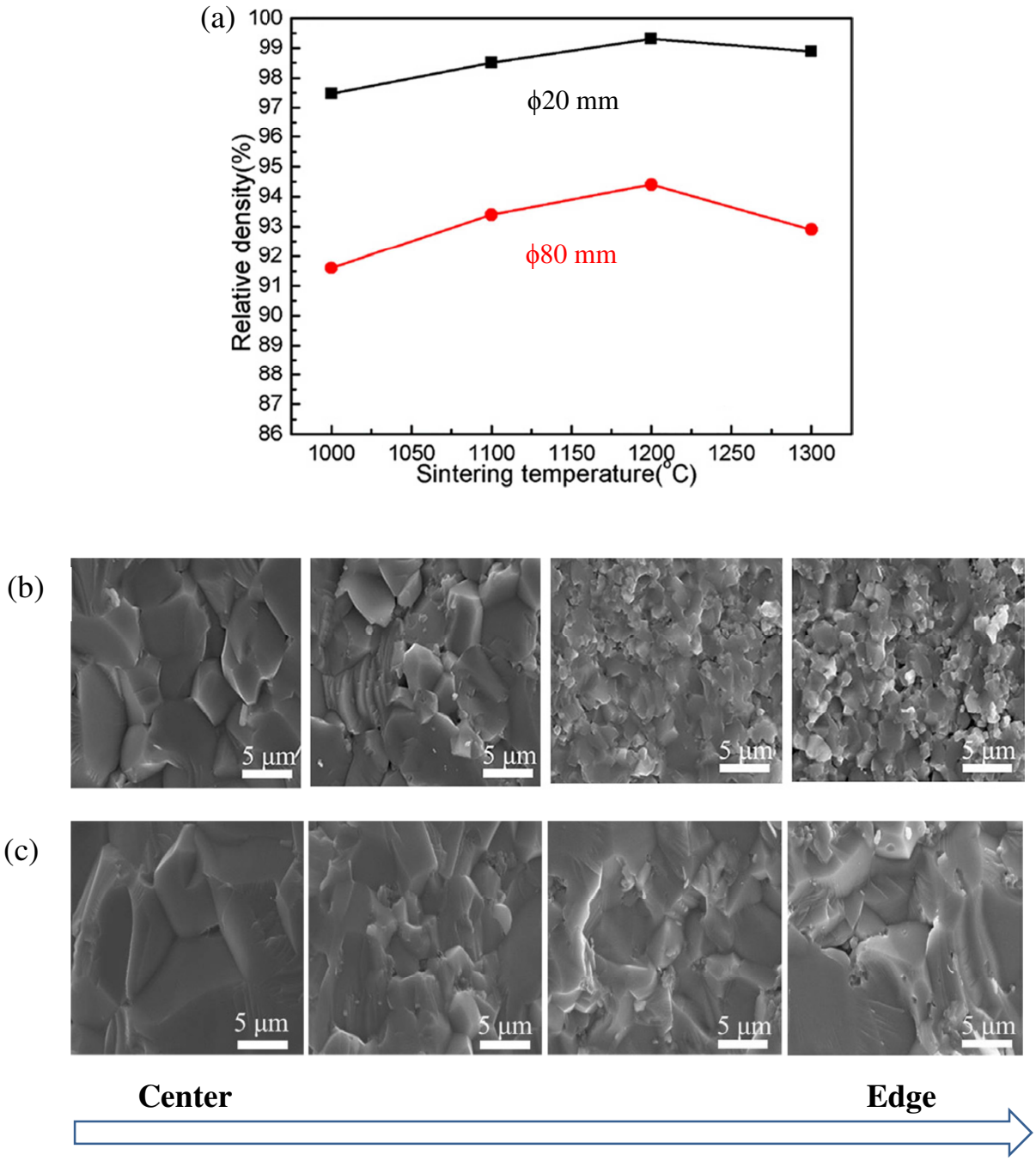


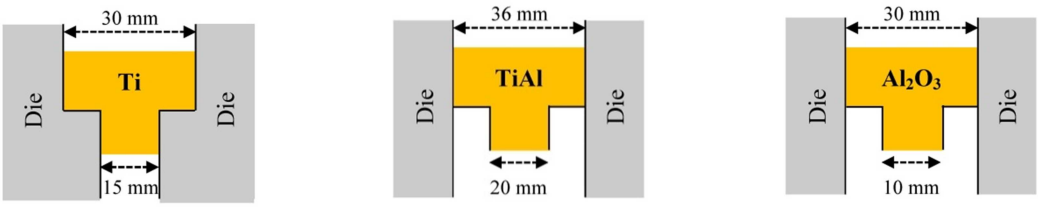
Fig. 1.18 : (a) Effet de la température de frittage et du diamètre sur la densité d'échantillons et (b) micrographies d'une céramique AZO consolidée à une température de 1200 °C avec un temps de maintien de (b) 3 et (c) 30 minutes [Chen 2015].

Des échantillons de formes complexes, non cylindriques (Fig. 1.19) ont été frittés en utilisant différents matériaux. En premier lieu, on trouve le travail de Matsugi *et al.* [Matsugi 2003b] qui ont analysé la répartition du champ de température dans une géométrie possédant deux niveaux différents (forme T) dans le cas d'un échantillon conducteur. Selon les auteurs le piston inférieur de section réduite présente une résistivité électrique plus élevée et chauffe

davantage, ce qui entraine une dissymétrie axiale de la température. Cette étude a également montré que la répartition de température est sensible à la géométrie des éléments entourant l'échantillon (pistons et matrice). En outre, McWilliams [McWilliams 2008] a étudié la densification du matériau (tungstène et graphite) avec deux géométries différentes : cylindrique et conique (convexe et concave). Il a été montré que l'introduction de l'effet géométrique sur les lignes de courant et les champs de contraintes internes se couplent aux gradients de température pour altérer l'évolution de la cinétique de densification de l'échantillon et sont déterminants pour l'homogénéité microstructurale et la qualité finale de la pièce. Dans le cas d'un échantillon de géométrie conique, il existe une répartition non uniforme des contraintes dans l'échantillon sous l'application d'une charge externe, en plus de l'effet géométrique sur la distribution du courant électrique.

En 2010, Garcia *et al.* [Garcia 2010] ont étudié le frittage de l'alumine avec deux géométries différentes en utilisant deux formes différentes de la matrice : cylindrique et cubique. Ils ont conclu que la répartition de la température est plus homogène dans le cas d'une géométrie cylindrique par rapport à la géométrie cubique. Une année après Mondalek *et al.* [Mondalek 2011] ont considéré la même forme que celle utilisée par [Matsugi 2003b] sauf que la matrice a une section uniforme. Afin que l'auteur [Manière 2015] arrive à optimiser au mieux la consolidation d'une géométrie en forme T trouée.

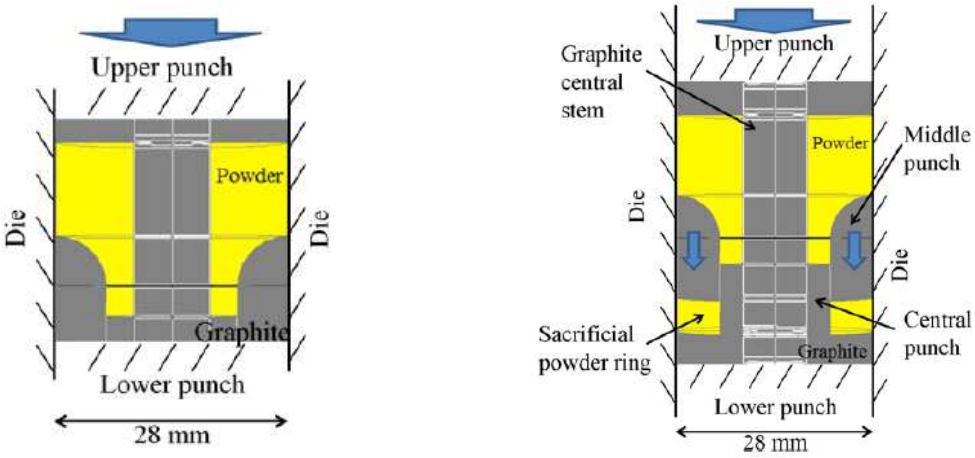
Matsugi 2003b *Mondalek 2011* *Manière 2015a*



Forme T

Manière 2016a

Classical configuration *Optimized configuration*



Forme T trouée

Fig. 1.19 : Différentes géométries d'échantillons frittés par SPS.

Voisin *et al.* [Voisin 2013] ont étudié la maîtrise de la température lors de la densification d'une pièce de TiAl de forme complexe comme illustré dans la figure (1.20a). Les observations microscopiques ont confirmé l'hétérogénéité de la microstructure (Fig. 1.20c) due à la non uniformité du champ thermique dans l'échantillon telle qu'elle est prédite par les modèles en éléments finis (Fig. 1.20b).

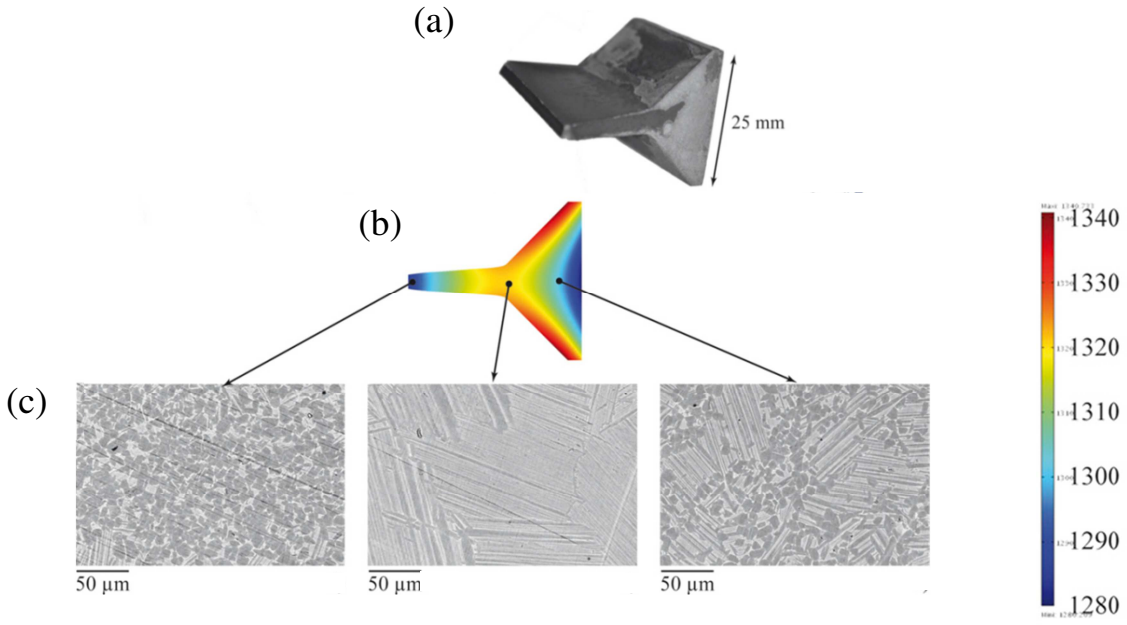


Fig. 1.20 : Exemple d'une géométrie complexe (a) distribution de température (b) et microstructure à différents endroits (c) d'une pièce de TiAl frittée par le procédé SPS [Voisin 2013].

4.3-Géométrie et dimensions de l'outillage SPS

La géométrie de l'ensemble de l'outillage est un facteur influençant de manière prépondérante la distribution de température mais surtout la consommation énergétique du système SPS, comme cela a été montré par [McWilliams 2006, Zapatasolvas 2015]. Giuntini *et al.* [Giuntini 2013a] ont montré qu'une forme cylindrique d'entretoises (spacers) en plusieurs disques en série est plus efficace pour diminuer la température maximale de la partie surchauffée (piston supérieur/spacer) qu'une forme conique. De plus, les entretoises cylindriques sont plus simples à fabriquer et la variation du nombre et du diamètre des disques permet d'adapter l'outillage pour la fabrication d'échantillons de différentes tailles.

Les gradients thermiques pourraient être réduits en augmentant la hauteur et/ou le diamètre de la matrice, mais cela induit une augmentation de la consommation électrique du système SPS [McWilliams 2006]. En utilisant des simulations numériques, Vanherck *et al.* [Vanherck 2015] ont montré que l'épaisseur de la matrice peut être optimisée pour réduire les gradients dans le cas d'une alumine (Fig. 1.21).

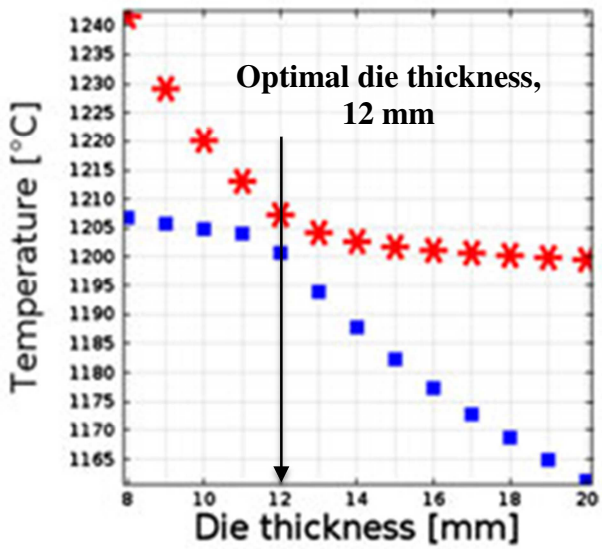
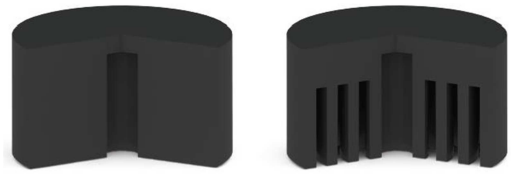


Fig. 1.21 : Température maximale (astérisque) et température minimale (carré) dans un échantillon d'alumine en fonction de l'épaisseur de la matrice [Vanherck 2015].

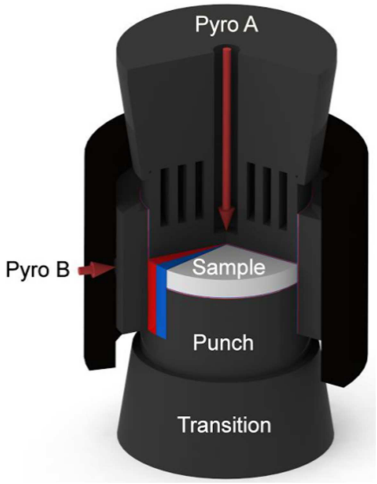
Olevsky *et al.* [Olevsky 2012] ont analysé l'effet d'échelle sur les deux montages FCT Systeme et SPS Syntex et ils ont constaté qu'il est possible d'inverser les gradients de température dans l'échantillon (centre de l'échantillon plus chaud que sa périphérie ou vice versa) en fonction des dimensions de l'échantillon ou de l'outillage.

D'autres formes non cylindriques de piston ont été utilisées pour optimiser la distribution de température, notamment la forme T [Giuntini 2013b, Cui 2016]. Giuntini *et al.* [Giuntini 2015 2016] ont utilisé un nouveau design pour les pistons (Fig. 1.22), qui consiste à percer des trous et des anneaux dans ces derniers dans l'objectif d'homogénéiser la température de l'échantillon lors de la consolidation d'une poudre de nitrure de silicium (Si_3N_4).

Photographies du nouveau design des pistons : avec des trous (à gauche) et des anneaux (à droite)



Comparaison entre le piston classique et le piston optimisé à 3 anneaux



Configuration SPS avec un piston optimisé à 3 anneaux

Fig. 1.22 : Alternative du design des pistons [Giuntini 2015 2016].

4.4-Conditions aux limites et résistances de contact

Anselmi-Tamburini *et al.* [Anselmi-Tamburini 2005] et Cincotti *et al.* [Cincotti 2007] ont souligné l'importance de considérer la valeur efficace RMS (Root Mean Squared) de l'entrée de courant pulsé pour évaluer l'effet Joule. Alors que les premières simulations ont considéré un potentiel ou un courant électrique appliqué constant, Muñoz et Anselmi-Tamburini [Muñoz 2010] et Wang *et al.* [Wang 2010] ont introduit un module de régulation PID (Proportionnelle-Intégrale-Dérivée) pour une meilleure reproduction du cycle expérimental de frittage en température.

En ce qui concerne les conditions aux limites électriques, Wolff [Wolff 2011] a souligné qu'on peut utiliser soit un courant soit une tension. Dans ce travail, puisque la tension n'est pas mesurée aux bornes du domaine modélisé (limité entre les extrémités des entretoises), il est préférable d'appliquer un courant. En effet, ce dernier est conservé le long de la colonne SPS puisque les électrodes sont connectées en série avec l'outillage.

Pour les conditions aux limites thermiques tenant compte du rayonnement de toutes les surfaces externes du système SPS, qui obéissent à la loi de Planck, différentes valeurs d'émissivité de la matrice en graphite ont été considérées entre $\varepsilon = 0{,}7$ et 1,0. D'autre part, certains auteurs ont considéré les échanges radiatifs entre la surface externe de la matrice et la

paroi de l'enceinte refroidie à l'eau [Bulat 2014 2016, Vanherck 2015], tenant compte des facteurs de forme entre les deux surfaces. Dans la modélisation numérique, pour reproduire l'utilisation d'une couche en feutre de graphite enroulée autour de la matrice durant les expériences, un coefficient d'émissivité de 0 ($\varepsilon = 0$, cas d'une paroi adiabatique) peut être utilisé pour inhiber les pertes par rayonnement de la paroi latérale de la matrice [Muñoz 2013].

Les résistances de contact thermiques et électriques ont souvent été négligées dans la modélisation numérique. Certains auteurs ont développé des méthodes d'étalonnage en utilisant différents assemblages expérimentaux pour les déterminer [Zhang 2004, Zavaliangos 2004, Vanmeensel 2005, Maizza 2009, Giuntini 2013a, Wei 2015, Manière 2016b], comme le montre la Fig. 1.23. Ces résistances de contact sont influencées par la pression appliquée dans les expériences SPS, comme cela a été souligné dans différents travaux [Anselmi-Tamburini 2005, Grasso 2009b, Manière 2015b, Wei 2015]. Les résistances de contact verticales sont beaucoup plus grandes que celles horizontales [Zavaliangos 2004, Vanmeensel 2005, Maizza 2009] et constituent des facteurs cruciaux pour obtenir la valeur réelle du courant électrique pendant le frittage SPS [Lee 2018].

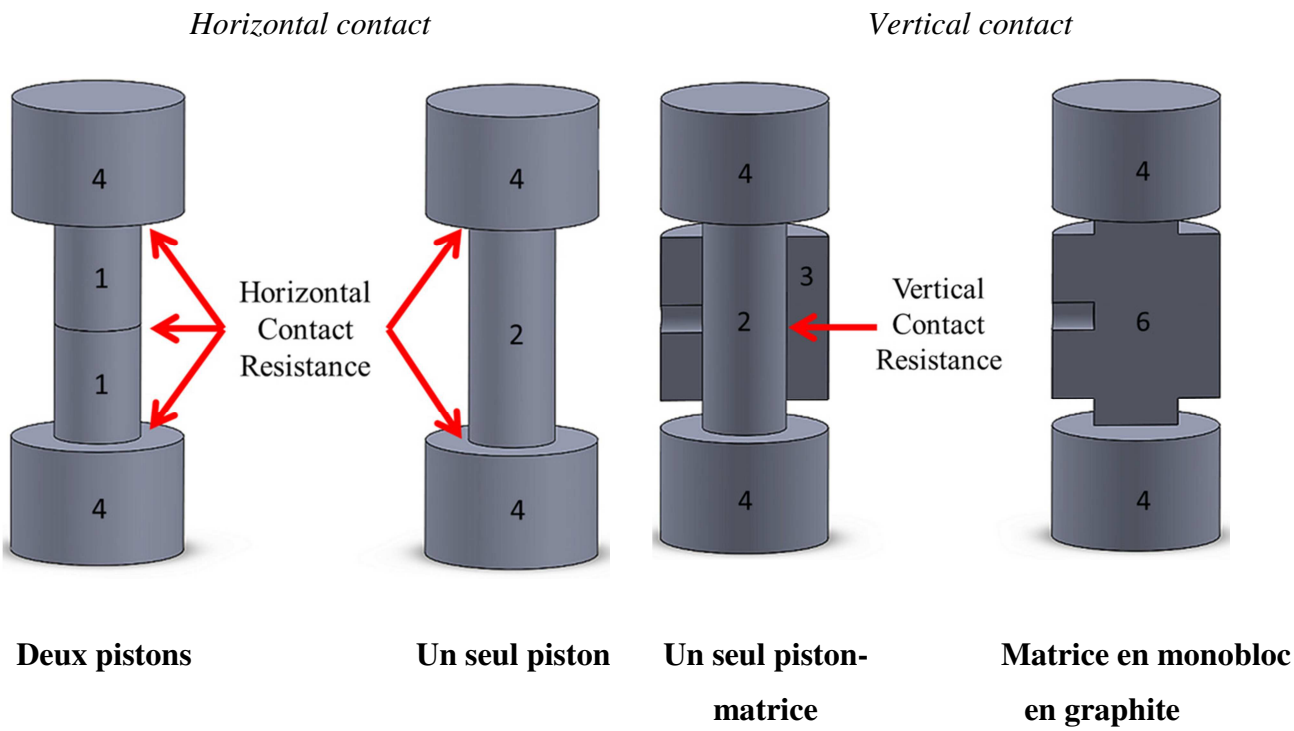


Fig. 1.23 : Différents assemblages de l'outillage SPS utilisés pour déterminer les résistances thermiques et électriques. 1 et 2 : Piston, 3 : Matrice et 4 : Spacer et 6 : Monobloc en graphite [Wei 2015].

Giuntini *et al.* [Giuntini 2013a] ont mené une étude numérique mais appuyée par des mesures expérimentales, dans laquelle ils ont montré que le fait de ne pas introduire les résistances de contact ne permet pas de reproduire la dissymétrie de la température axiale dans le système SPS, comme l'ont obtenue [Maizza 2009, Mondalek 2011, Song 2011a], bien que la température la plus élevée est atteinte au niveau du piston supérieur. Les résistances de contact horizontales entre les entretoises génèrent des températures plus élevées et sont considérées comme un obstacle devant le transfert de chaleur vers l'échantillon, en particulier dans l'interface échantillon/piston [Räthel 2009, Song 2011b].

Wei *et al.* [Wei 2015] ont combiné des expériences à la simulation par éléments finis pour vérifier le rôle de la résistance des contacts électriques dans l'évolution de la température. Les auteurs ont conclu à la nécessité et l'importance de tenir compte de la résistance électrique aux différentes interfaces de contact lors de l'analyse du traitement SPS. Les auteurs ont par ailleurs montré que l'effet de la résistance thermique est beaucoup plus faible que celui du contact électrique.

4.5-Conditions opératoires

Grâce à un paramétrage libre piloté par un automate, les installations de SPS permettent de créer différentes formes de courant continu pulsé, y compris du courant continu permanent et le cycle de frittage en température voulu. La température de frittage, le taux de chauffage, le temps de maintien, la séquence d'impulsions et la pression sont les principales caractéristiques du procédé SPS à contrôler et sont déterminants pour obtenir des résultats de frittage optimaux, en termes de densification, de la croissance des grains [Shen 2002, Anselmi-Tamburini 2004] et de propriétés mécaniques des matériaux.

Il a été montré dans la littérature que des vitesses de chauffage très élevés pouvant être appliqués avec cette technologie peuvent conduire à l'apparition de gradients thermiques importants dans l'échantillon, ce qui entraine des propriétés finales et une microstructure inhomogènes dans le cas d'échantillons de grandes dimensions [McWilliams 2006, Olevsky 2012, Muñoz 2013, Chen 2015]. Wang *et al.* [Wang 2010] ont étudié l'effet des vitesses de chauffage (50, 100 et 200 °C/min) sur le frittage d'une alumine avec différents diamètres (ϕ = 12, 20, 36 et 50 mm) et ont conclu que les vitesses optimales pour minimiser les gradients dépend des dimensions de l'échantillon.

4.6-Isolation thermique

Une pratique assez courante des utilisateurs de la technique SPS, consiste à isoler la matrice à l'aide d'un feutre en graphite pour réduire les pertes de chaleur par rayonnement. Cependant, aucune recherche n'a clairement identifié ou quantifié l'effet de cette isolation sur l'homogénéité du champ de température dans l'échantillon.

Pour des échantillons électriquement isolants et de petites dimensions d'un composite ZrO_2/TiN (60/40). Vanmeensel *et al.* [Vanmeensel 2007] ont souligné l'efficacité d'un feutre poreux en carbone qui permet de réduire considérablement le gradient thermique (de 147 °C sans feutre à 32 °C avec feutre pour une température de frittage de 1500 °C).

Dans le cas des matériaux isolants, le feutre transforme la matrice en zone chaude à côté des pistons. Par conséquent, l'excès de chaleur de la matrice doit être dissipé à travers les pistons (cas de la machine FCT Systeme), ce qui implique que l'écart de température est inversé par rapport aux matériaux conducteurs, la température plus élevée est atteinte dans la périphérie de l'échantillon et la plus basse à son cœur [Wang 2003, Muñoz 2013, Vanherck 2015, Naimi 2013].

Réau *et al.* [Réau 2008] ont étudié l'effet de recouvrement de la matrice par une couche de feutre pour trois types d'assemblages, comme présenté dans la figure (1.24). Ils ont montré que dans le cas d'une matrice latéralement recouverte par une couche de feutre (assemblage N°3), l'échantillon présente une densité élevée comparée aux autres assemblages, où la matrice est totalement recouverte (assemblage N°2) ou totalement recouverte avec en plus une seconde couche en périphérie (assemblage N°1). Les auteurs ont signalé que la puissance injectée par la machine a une forte influence sur la densité finale des échantillons.

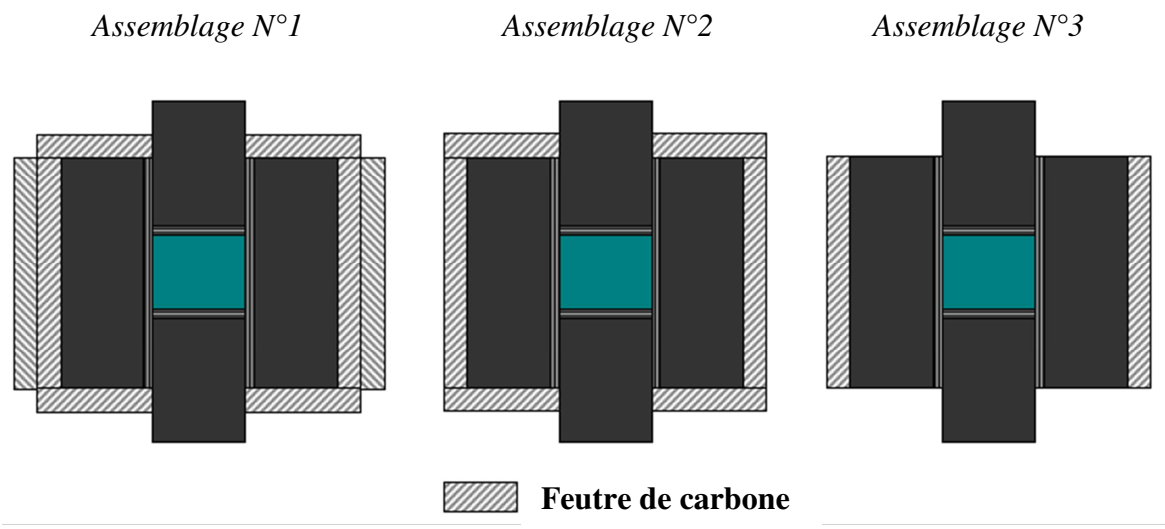


Fig. 1.24 : Différents assemblages de feutre utilisés lors de la densification [Réau 2008].

4.7-Asymétrie axiale de l'équipement

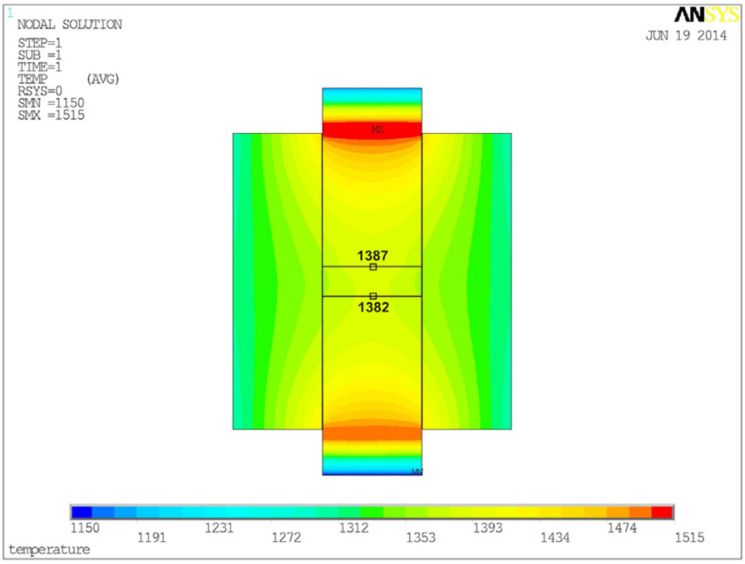
La plupart des modèles numériques considèrent des conditions aux limites thermiques symétriques pour le refroidissement [Muñoz 2010, Wang 2010, Mondalek 2011, Wolff 2012, Muñoz 2013]. Cependant, plusieurs travaux [Wolff, 2011, Junting 2012, Pavia 2013, Gu 2015] ont évoqué la dissymétrie des conditions thermiques dans le montage expérimental du dispositif SPS pour les deux types de machine SPS Syntex (Sumitomo/SPSS-Japon) et FCT Systeme (Allemagne) sans l'étudier profondément.

Les pertes de chaleur par refroidissement pendant le traitement thermique SPS ont été traitées par différentes approches. Certains auteurs définissent simplement un coefficient de convection au niveau des extrémités du dispositif [Vanmeensel 2005], d'autres imposent une température constante [Wang 2010], tandis qu'un circuit de refroidissement par eau simplifié a été utilisé par Cincotti *et al.* [Cincotti 2007]. Dans ce dernier cas, les électrodes en acier inoxydable (AISI 304) ont été modélisées uniquement avec un seul tube, sans tenir compte de l'évacuation de la chaleur dans le circuit de refroidissement réel résultant de la convection forcée de l'eau s'écoulant à l'intérieur des deux tubes percés dans les béliers (Rams). Les auteurs ont également souligné que la symétrie verticale ne peut être supposée en raison de la différence de hauteur des électrodes et les circuits de refroidissement correspondants.

Récemment, Gu *et al.* [Gu 2015] ont vérifié expérimentalement l'effet de la dissymétrie axial du refroidissement sur la transparence de la zéolite. Un gradient de température axial de seulement 5 °C dans l'échantillon (évalué par simulation numérique)

engendre une forte variation de la transparence qui diminue entre la surface supérieure et la surface inférieure de l'échantillon fritté (Fig. 1.25).

(a)



(b)

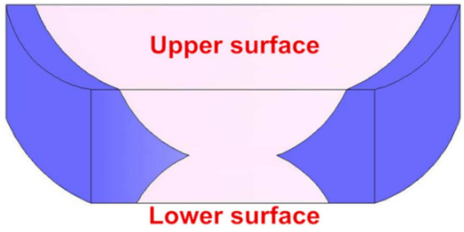


Fig. 1.25 : (a) Dissymétrie de température entre le piston supérieur et inférieur, (b) Différence de transparence optique entre les deux surfaces supérieure et inférieure de la zéolite [Gu 2015].

Aman [Aman 2011] a étudié lors du frittage de l'alumine par SPS, l'influence de différentes configurations symétriques (2 pistons pleins ou creux) et asymétriques (piston plein + piston creux) avec et sans isolation thermique (au feutre de carbone). Il a été montré que des configurations symétriques permettaient de réduire les différences de température, et favorisaient une granulométrie plus fine dans les échantillons frittés. A partir des mesures de densité, il est noté que les matériaux frittés avec les configurations symétriques ont des densités plus élevées (99.1 %) que ceux fritté avec des configurations asymétriques.

Dans une étude menée par Anselmi-Tamburini *et al.* [Anselmi-Tamburini 2005], les auteurs ont remarqué que la position des pistons dans la matrice, si elle n'est pas bien centrée, engendre une dissymétrie axiale et une non-reproductibilité des profils de température. Dans certains cas, cependant, le positionnement asymétrique des pistons pourrait être intentionnellement utilisé pour produire des échantillons avec un gradient axial désiré comme c'est le cas pour les matériaux à gradient de fonction [Hulbert 2008, Belmonte 2010, Decker 2017].

Conclusions

Le procédé SPS présente de nombreux avantages prometteurs par rapport aux procédés de frittage conventionnels. Ses résultats remarquables sont attribués au mécanisme interne de chauffage de l'échantillon, ce qui le qualifie pour être la technologie la plus avancée pour la consolidation des matériaux à partir de poudres.

Les principales limitations de cette technologie sont relatives à l'apparition de gradients thermiques dans l'échantillon, qui peuvent induire une microstructure et des propriétés physiques hétérogènes. Parallèlement à l'amélioration du design des installations, la modélisation numérique à contribué de façon considérable à la compréhension et à l'optimisation des procédures et des paramètres expérimentaux en vue de minimiser les gradients thermiques. Cependant, la plupart des études numériques manquent de validation expérimentale et les résultats dépendent des hypothèses prises en compte. Pa railleurs, il est difficile de prédire le rôle d'un paramètre particulier indépendamment des autres.

L'approche actuellement proposée pour réduire les gradients thermiques consiste à adapter la géométrie et les dimensions de l'outillage SPS (matrice, piston et spacers) aux dimensions des échantillons frittés, ce qui peut s'avérer très couteux. L'effet de certains paramètres n'a pas été systématiquement étudié malgré l'impact important qu'ils peuvent avoir. C'est le cas de l'isolation thermique et de la dispersion de la température. De même, la dissymétrie du refroidissement aux extrémités du dispositif SPS a été évoquée mais n'as pas été prise en compte dans les travaux antérieurs. Dans notre travail, nous nous intéresserons particulièrement à ces paramètres.

Chapitre 2

Procédure expérimentale et modélisation numérique du procédé SPS

Ce chapitre porte sur le dispositif expérimental de frittage SPS utilisé, sa modélisation numérique et sa validation expérimentale. Nous y discutons l'effet de la dissymétrie du refroidissement aux extrémités du montage expérimental sur la distribution de température dans l'échantillon.

1-Procédure expérimentale et mesures de température

Des expériences standard de frittage ont été réalisées au Laboratoire MATEIS de l'INSA de Lyon avec une alumine ultra-pure (BMA-15 Baikowski, > 99,99 %), dans une atmosphère sous-vide en utilisant un dispositif SPS de type FCT HP D25/1 (FCT Systeme GmbH, Allemagne) représenté sur la Fig. 2.1. Il est composé d'une matrice en graphite (d'épaisseur de 10 mm et de hauteur 48 mm) contenant l'échantillon, deux pistons creux (d'une hauteur de 35 mm et de même diamètre que l'échantillon) protégés par des entretoises (spacers) de forme conique (grand diamètre de 80 mm) et deux électrodes refroidies par eau situées aux extrémités supérieure et inférieure de l'appareil. Un trou central de diamètre 10 mm est percé dans chaque élément pour la mesure de la température. Les expériences de frittage ont été réalisées en mode de régulation de température à l'aide d'un pyromètre optique concentré sur le piston supérieur en graphite (position A), à 4 mm au-dessus de l'échantillon, et un Régulateur PID permettant d'ajuster automatiquement le courant électrique. La température est également contrôlée systématiquement à trois autres positions du système (Fig. 2.1) : un pyromètre optique focalisé dans un trou (diamètre de 3 mm) percé au milieu de la matrice mesure la température T_B à 3 mm du bord de l'échantillon (position B) et deux thermocouples de type K mesurent les températures T_{S_1} et T_{S_2} au niveau des spacers du haut et du bas, aux positions S_1 et S_2 respectivement. Les pyromètres optiques ont été étalonnés par le point de fusion du cuivre pur, tel qu'il est utilisé dans les travaux de [Demirskyi 2012, Hu 2014]. Un cycle de température a été imposé avec une vitesse de 100 °C/min permettant d'atteindre une température de 1300 °C maintenue constante pendant de 10 min. En même temps, un cycle de pression a été appliqué à l'échantillon avec une valeur au palier de 73 MPa atteinte avant la température de maintien. Une séquence d'impulsions a été programmée comme suit : 10 ms de courant pulsé (ON) suivi de 5 ms de pause (OFF). Des couches horizontales et verticales de feuille en graphite (Papyex®, Mersen) de 0,4 mm d'épaisseur ont été utilisées en tant qu'interfaces (Fig. 2.1) et dans certaines expériences, elles ont été remplacées par des feuilles de molybdène de 50 µm d'épaisseur dans les interfaces échantillon/piston. Les expériences ont été réalisées avec ou sans isolant thermique en feutre (Graphite felt RVG 4000, Mersen) autour de la matrice. Les échantillons obtenus ont une épaisseur finale de 2,5 mm et deux diamètres différents, 20 et 40 mm.

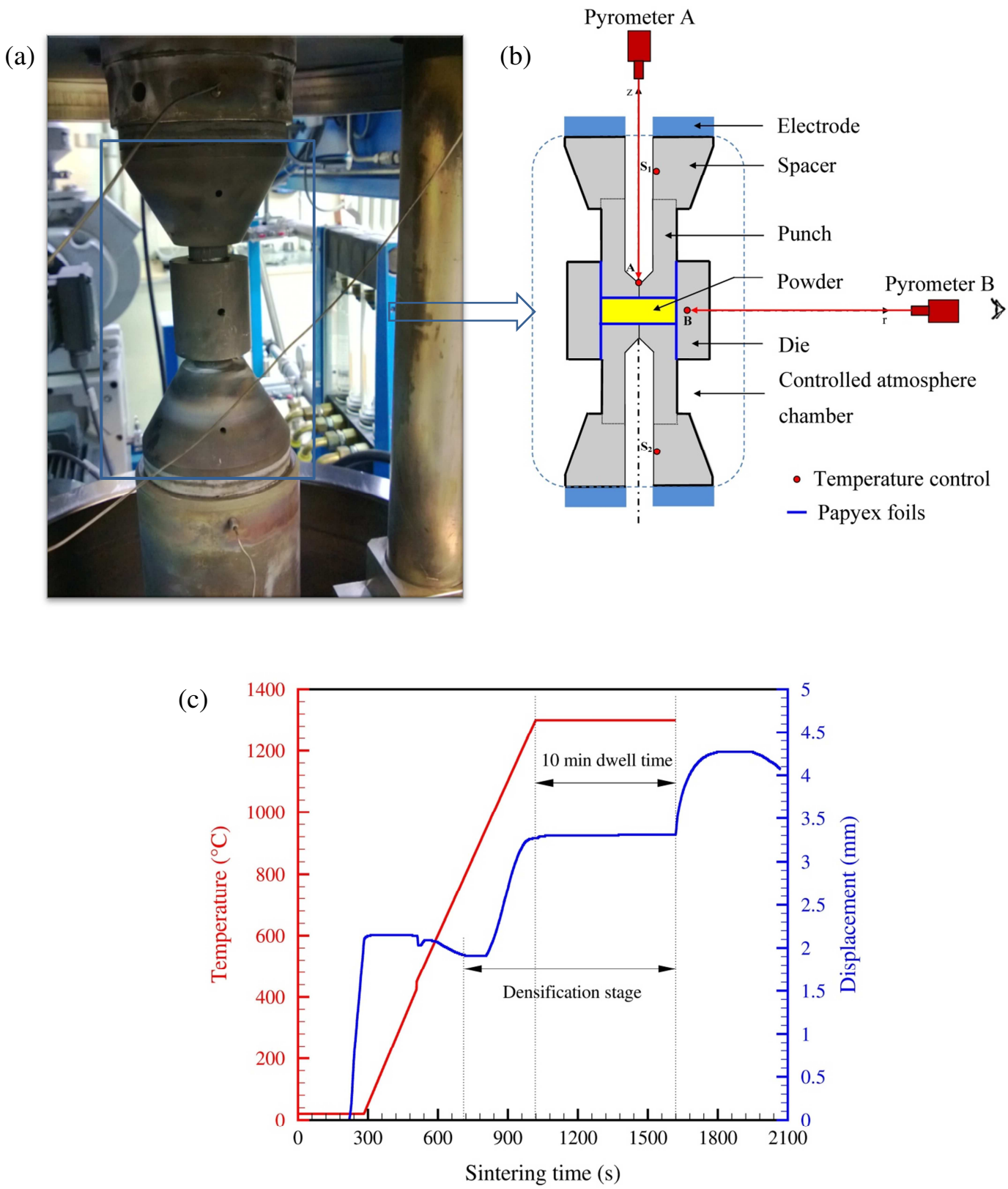


Fig. 2.1 : Dispositif expérimental de frittage SPS et paramètres de densification : (a) photographie de l'ensemble de l'outillage SPS, (b) illustration de la configuration SPS avec

les emplacements de mesure de la température (points A, B, S_1 et S_2) et (c) cycle thermique de frittage de l'alumine et courbe de déplacement de retrait pendant la densification SPS.

2-Modélisation du couplage thermo-électrique

Des simulations par éléments finis ont été réalisées en utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics®, du couplage des phénomènes thermiques et électriques lors du frittage SPS, régi par les équations de conservation de l'énergie et de la charge électrique. En tenant compte de l'axisymétrie du système SPS, nous limiterons notre étude à la moitié seulement de la configuration et à la résolution bidimensionnelle de l'équation de la chaleur (1) donnée en coordonnées cylindriques (r, z), qui décrit la variation de la température, T (r, z, t), en fonction du temps, t.

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(rk_r\frac{\partial T}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(k_z\frac{\partial T}{\partial z}\right) + \dot{q}_i = \rho c_p\frac{\partial T}{\partial t} \qquad (1)$$

Où ρ, c_p, k_r et k_z, représentent respectivement la densité du matériau, sa chaleur spécifique, sa conductivité thermique dans les directions r et z et $\dot{q}_i$ la production de chaleur interne générée par l'effet Joule par unité de temps et par unité de volume.

A partir de la loi locale de conservation de la charge électrique, la distribution du courant est décrite selon la loi de Kirchhoff, exprimée par :

$$\frac{1}{r}\frac{\partial(ri_r)}{\partial r} + \frac{\partial i_z}{\partial z} = 0 \qquad (2)$$

Où i_r et i_z représentent la densité de courant dans les directions r et z, respectivement.

3-Conditions initiales et aux limites

Un courant électrique efficace I_{RMS} est imposé sur la surface supérieure du système, par contre sa surface inférieure est mise à la terre (potentiel électrique nul, U = 0 V) comme il est représenté dans la Fig. 2.3. Pour mieux reproduire le cycle de frittage thermique souhaité, un module PID reproduisant la configuration du correcteur en boucle fermée a été programmé (Fig. 2.2) et intégré dans le logiciel de calcul par éléments finis. L'intensité du courant est calculée en considérant l'erreur, e (t), entre les températures désirées et calculées au point de contrôle A, comme suit :

$$I_{RMS}(t) = K_P \times e(t) + K_I \times \int_0^t e(\tau)d\tau + K_D \times \frac{de(t)}{dt} \qquad (3)$$

$$e(t) = T_{désirée} - T_{calculée}$$

K_P, K_I et K_D sont respectivement les gains de proportionnalité, d'intégration et de dérivation, ajustés pour une réponse de contrôle optimal.

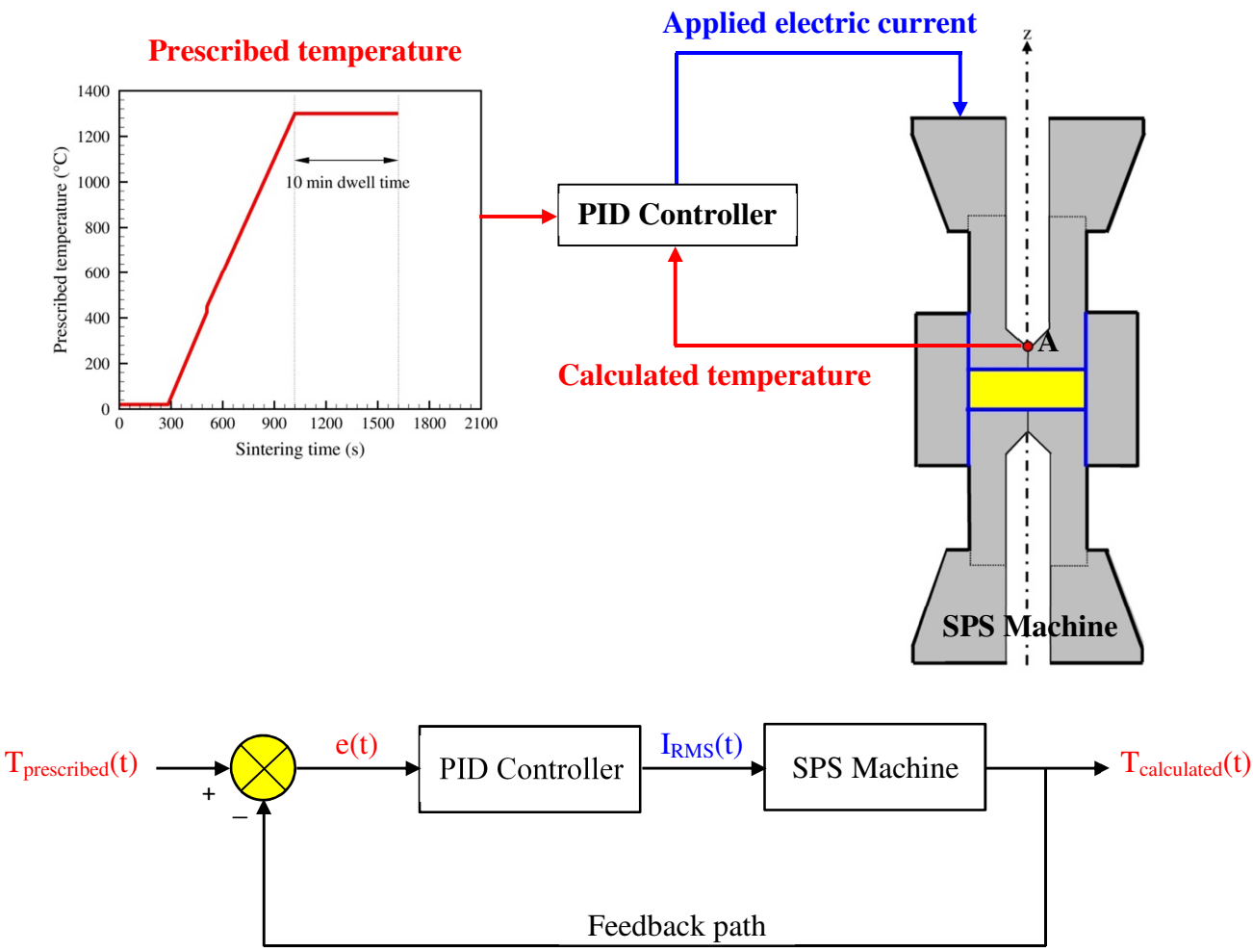


Fig. 2.2 : Contrôle de température avec une boucle de rétroaction à l'aide d'un régulateur PID à l'intérieur de la machine SPS.

La température initiale du système SPS a été maintenue à 27 °C et deux autres conditions sur les pertes thermiques ont été appliquées, comme le résume la Fig. 2.3 :

(i) En raison de l'élimination de la chaleur par refroidissement à l'eau, un flux conducto-convectif, de densité q_c, à travers les surfaces horizontales supérieure et inférieure des spacers a été considéré et s'exprime par :

$$q_c = h_c(T_{ss} - T_w) \qquad (4)$$

Où h_c est le coefficient de transfert de chaleur par convection, T_w la température de l'eau (27 °C) et T_{ss} la température de la surface horizontale du spacer.

Comme les expériences ont été menées dans une atmosphère sous-vide, les surfaces latérales extérieures de l'ensemble de l'outillage subissent des pertes thermiques uniquement par rayonnement selon l'équation suivante :

$$q_r = \sigma\varepsilon\left(T_e^4 - T_a^4\right) \qquad (5)$$

Où q_r est la densité de flux de chaleur par rayonnement, σ la constante de Stefan-Boltzmann, ε l'émissivité des surfaces latérales (0,8 pour le graphite [Vanmeensel 2005] et 0,99 pour le feutre en graphite selon le fournisseur), T_e la température à la surface d'émission (graphite) et T_a la température à la surface d'absorption (= 27 °C, température de la paroi intérieure de l'enceinte refroidie).

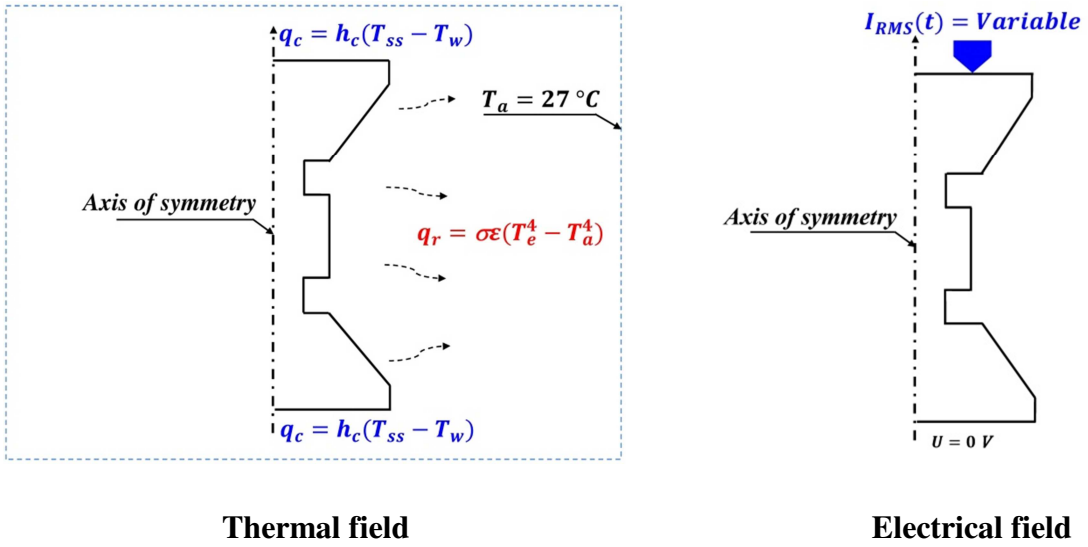


Fig. 2.3 : Conditions aux limites appliquées au modèle MEF.

4-Résistances de contact et propriétés des matériaux

Deux types de contact ont été considérés : ceux introduits par l'utilisation des feuilles de contact (papyex, molybdène et tantale) et des contacts horizontaux au niveau des interfaces piston/spacer (graphite/graphite). Pour ce dernier, les résistances thermique et électrique du contact imparfait ont été introduites, en utilisant les conditions interfaciales de contact graphite/graphite entre les pistons et les spacers, et les flux thermique et électrique (Fig. 2.4) sont respectivement donnés par :

$$q_{th} = k_c(T_S - T_P),\ J_{el} = \sigma_c(U_S - U_P) \qquad (6)$$

Où k_c et σ_c représentent respectivement les conductances de contact thermique et électrique, $(T_S - T_P)$ et $(U_S - U_P)$ sont respectivement la différence de température et de potentiel électrique sur l'interface piston/spacer.

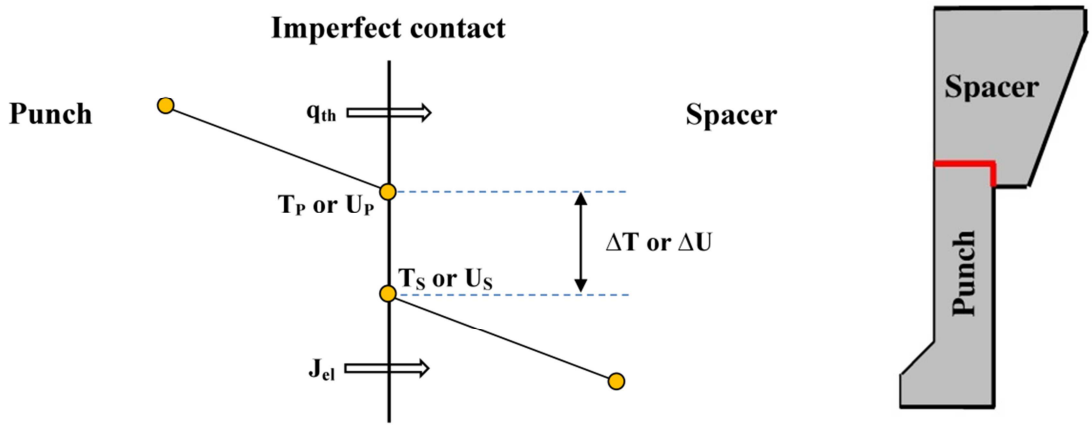


Fig. 2.4 : Flux thermique et électrique à travers le contact imparfait au niveau de l'interface : piston/spacer [Zavaliangos 2004].

Les résistances de contact thermique et électrique R_c^{th} et R_c^{el} sont respectivement définies par :

$$R_c^{th} = \frac{1}{k_c S_c}$$

et

$$R_c^{el} = \frac{1}{\sigma_c S_c}$$

Où S_c est la surface de contact apparente.

Différentes feuilles de contact (papyex, molybdène et tantale) ont été définies dans la géométrie du modèle comme un film mince dont l'épaisseur et les caractéristiques sont utilisées comme données d'entrée dans le modèle. Pour tenir compte de l'anisotropie des feuilles de papyex, les mêmes propriétés électriques et thermiques en plan et à travers l'épaisseur ont été considérées que dans le travail [Wolff 2011].

L'échantillon a été considéré complètement dense et les propriétés d'alumine utilisée sont dépendantes de la température, comme celles du travail [Muñoz 2010]. Par ailleurs, il est

important de noter que la précision des simulations est très sensible aux propriétés du graphite. En particulier, celles fournies par le fabricant (Mersen, Graphite grade 2340) ne dépendent pas de la température et ne permet pas de reproduire les mesures expérimentales, comme soulignée récemment par [Pavia 2013]. Ainsi, nous avons utilisé celles de [Wolff 2011] ce qui a permis une bonne concordance avec le courant électrique efficace et les températures mesurés. L'ensemble des propriétés physiques des matériaux (alumine, graphite grade 2333 et feutre en graphite), des feuilles de contact (papyex, molybdène et tantale) et des données géométriques de l'outillage utilisées dans la simulation du procédé de frittage SPS sont définies dans l'annexe.

5-Validation expérimentale du modèle numérique

Dans un premier temps, nous avons comparé nos résultats numériques avec ceux mesurés durant les expériences sans échantillon.

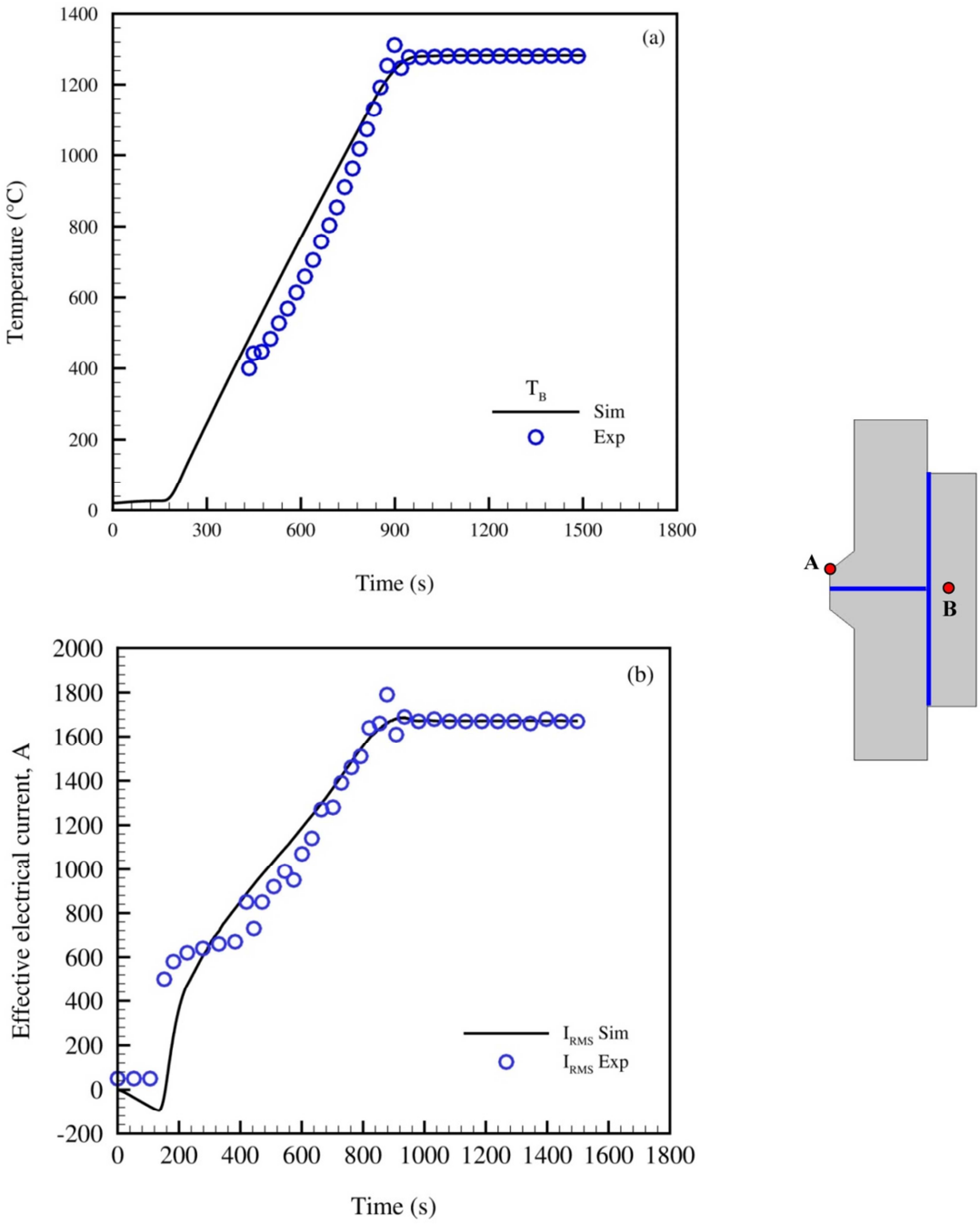


Fig. 2.5 : Comparaison des données simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour le diamètre ϕ20 sans échantillon : (a) température T_B à la position B définie dans la Fig. 2.1b et (b) courant électrique efficace (I_{RMS}).

Comme le montre la figure (2.5), les courbes simulées et mesurées correspondant à deux paramètres : la température, T_B à la position de contrôle et le courant électrique efficace, I_{RMS}, sont en parfait accord. L'écart observé entre la simulation et la mesure (Fig. 2.5a) au début du cycle de frittage est dû au pyromètre optique utilisé pour la mesure, qui ne peut fonctionner qu'au-delà de 400 °C.

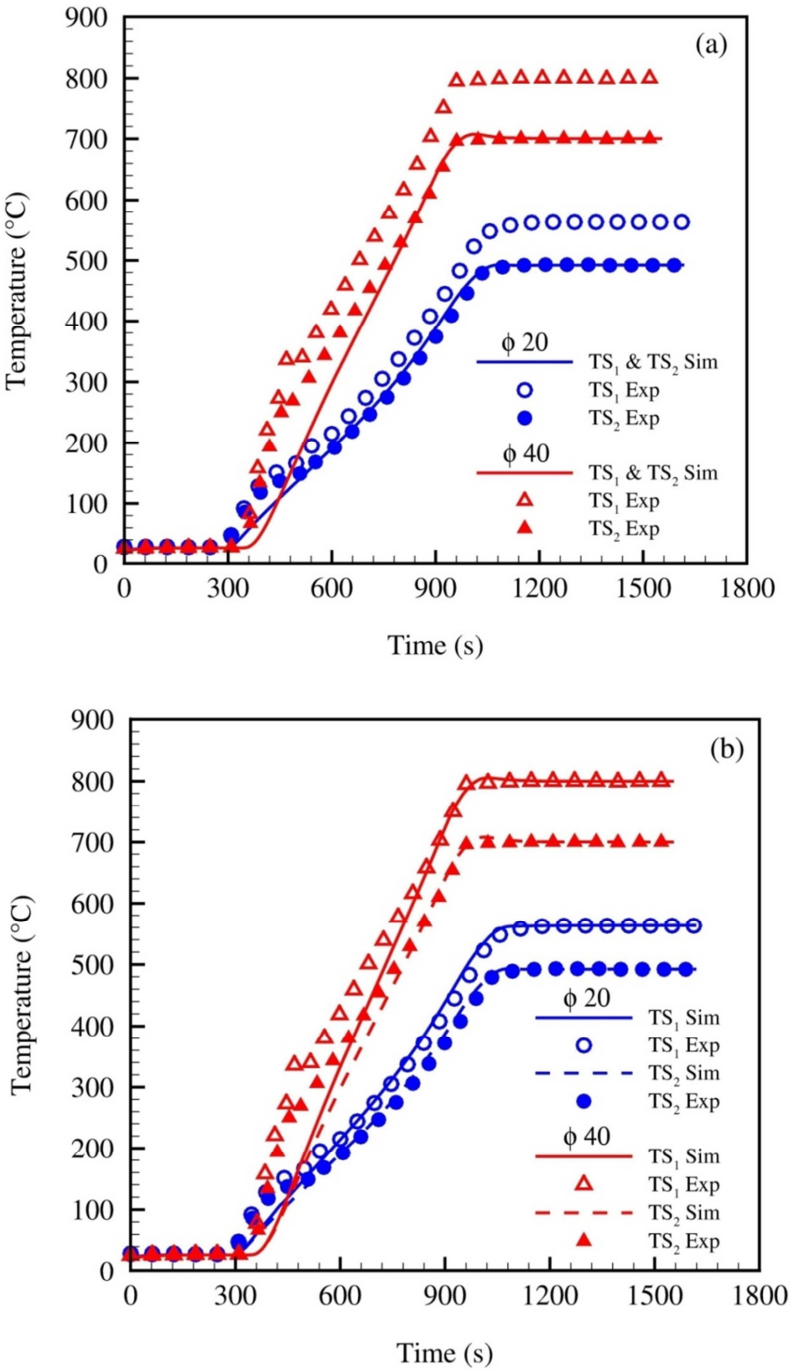
Lors des expériences de frittage, une différence de température (de 70 °C et 100 °C respectivement pour des échantillons de ϕ20 et ϕ40 mm) a été systématiquement mesurée au palier entre les spacers du bas et du haut, avec une température plus élevée pour ces derniers. Une telle différence a également été reportée dans [Pavia 2013] et peut être attribuée à la conception du circuit de refroidissement à eau, qui n'est pas la même dans l'électrode supérieure et inférieure et à une légère asymétrie de l'ensemble de l'outillage SPS au début de l'expérience, ce qui entraîne des conditions de refroidissement asymétriques sur ses parties supérieure et inférieure. Cependant, son impact n'a pas été systématiquement étudié. Dans ce travail, nous avons d'abord considéré les conditions aux limites thermiques symétriques (Éq. (4)) sur les surfaces horizontales supérieure et inférieure, comme généralement supposé dans la littérature, avec h_c = 880 W/m^2 °C [Vanmeensel 2005]. Les résistances thermique et électrique de contact ont été ajustées pour obtenir la meilleure corrélation entre le courant et les températures simulés et mesurés (pour le diamètre ϕ20 mm), atteints pour les coefficients suivants (Éq. (6)) : $k_c = 15 \times 10^3$ W/m^2 °C et $\sigma_c = 2{,}63 \times 10^6$ S/m^2, dont les valeurs sont du même ordre que celles utilisées par d'autres auteurs [Zavaliangos 2004, Maizza 2009, Muñoz 2010, Guintini 2013a].

La variation de température simulée au niveau des spacers (positions S_1 et S_2) est représentée pour les échantillons de ϕ20 mm et ϕ40 mm sur la figure (2.6a). La variation de température mesurée y est également reportée. On peut remarquer que la différence entre les températures mesurées pendant le temps de maintien n'est pas reproduite par la simulation, ce qui donne la même température pour les deux spacers, correspondante à celle du bas. Il est trouvé aussi que la température aux points de contrôle est sensible aux coefficients de convection, comme constaté dans [Rothe 2014]. Pour reproduire les différences de températures expérimentales, les conditions aux limites thermiques asymétriques ont ensuite été considérées en utilisant différentes valeurs pour le coefficient conducto-convectif (h_c dans l'Éq. (4)) pour les surfaces supérieure et inférieure. Nous supposons que le système de refroidissement réel résultant de la convection forcée de l'eau de refroidissement est équivalent aux différentes valeurs du coefficient d'échange convectif indiquées dans le tableau (2.1), le même concept a été utilisé

par [Cincotti 2007]. Ces valeurs ont été ajustées pour les deux diamètres de l'échantillon, de manière à obtenir des températures simulées identiques aux valeurs mesurées dans les spacers (Fig. 2.6b).

Tableau 2.1 : Coefficients d'échanges convectifs pour les conditions aux limites thermiques asymétriques.

Diamètre de l'échantillon, ϕ (mm)	**Coefficient d'échange convectif, h_c (W/m^2 °C)**	
	Spacer du haut	**Spacer du bas**
20	1780	2450
40	1575	2275



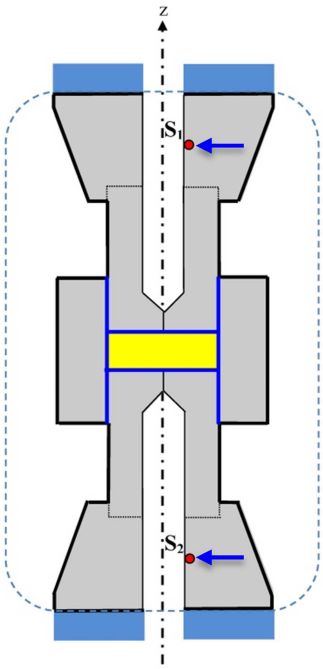


Fig. 2.6 : Comparaison des températures simulées (Sim) et expérimentales (Exp) au niveau des spacers du haut (T_{S_1}) et du bas (T_{S_2}) pour les conditions aux limites thermiques : (a) symétriques et (b) asymétrique.

L'intensité efficace et les évolutions de température résultantes, simulées aux positions A (au-dessus de l'interface échantillon/piston) et B (à droite de interface échantillon/matrice), sont comparées aux données expérimentales pour l'échantillon ϕ20 mm, présentées dans la Fig. 2.7.

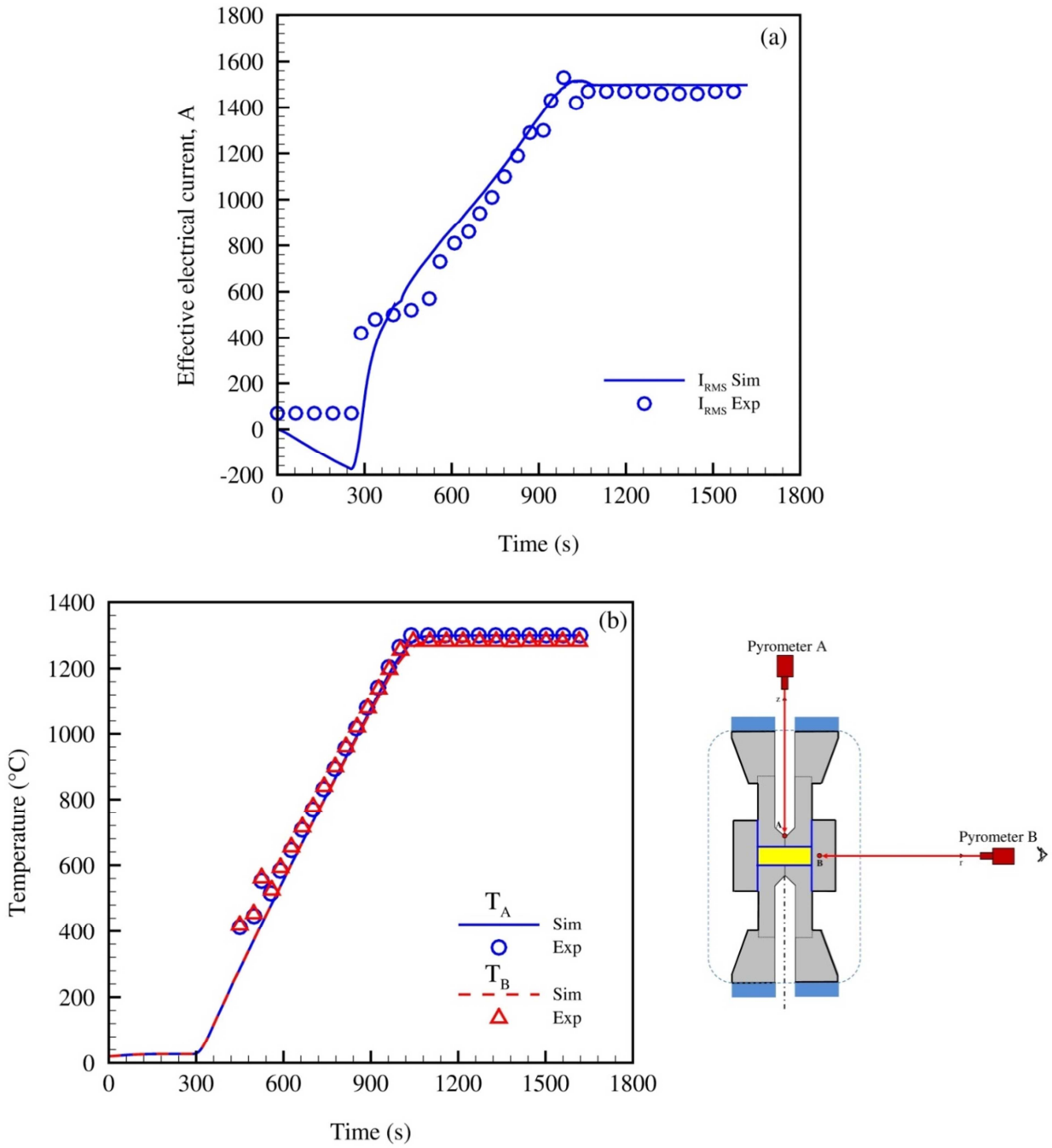


Fig. 2.7 : Comparaison des données simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour un échantillon de diamètre ϕ20 (th = 2.5 mm) : (a) valeurs du courant électrique efficace (I_{RMS}) et (b) températures T_A et T_B respectivement aux positions A et B.

A des températures plus élevées, une très bonne reproduction des mesures expérimentales est obtenue. De plus, pour toutes les expériences réalisées, un très bon accord a été trouvé, comme l'illustre le tableau (2.2) ci-dessous, dans le cas des conditions aux limites asymétriques entre les valeurs simulées et mesurées de la température à la position B et du courant efficace I_{RMS}.

Tableau. 2.2 : Comparaison des valeurs simulées (Sim) et expérimentales (Exp) de la température à la position B (T_B) et du courant (I_{RMS}) à la température de maintien pour les conditions aux limites asymétriques.

Isolation de la matrice	**Échantillon**	**T_B/°C**		**T_B(Sim)–T_B(Exp)**	**I_{RMS}/A**		**I_{RMS}(Sim)–I_{RMS}(Exp)**
		Sim	**Exp**		**Sim**	**Exp**	
Sans	ϕ20	1282	1282	-	1498	1470	28
	ϕ40	1272	1272	-	3201	3250	–49
Avec	ϕ20	1300	1314	–14	1146	1135	11
	ϕ40	1306	1348	–42	2673	2660	13

La figure (2.8) montre une comparaison des champs de température dans l'échantillon pour des conditions aux limites symétriques et asymétriques. Une asymétrie axiale apparaît dans le cas de conditions aux limites asymétriques, qui seront dorénavant considérées.

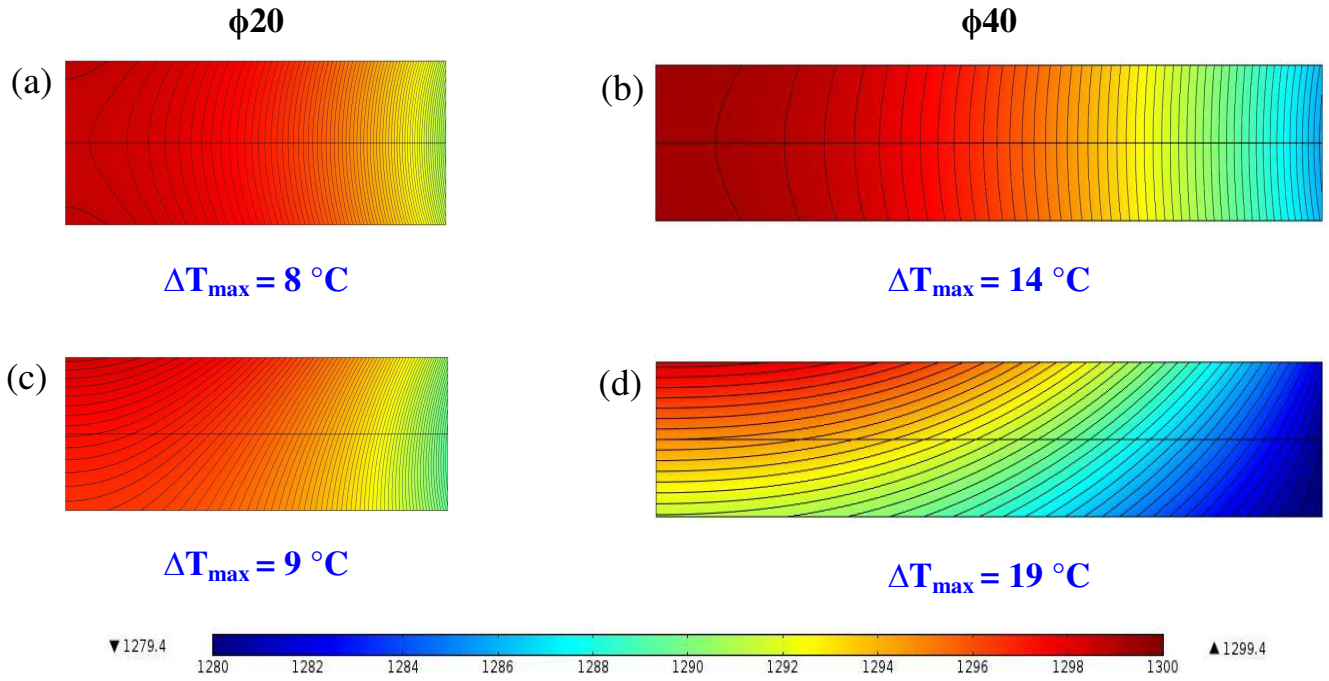


Fig. 2.8 : Champ de température avec des lignes isothermes à la température de maintien pour les conditions aux limites thermiques symétriques (a, b) et asymétriques (c, d) pour les échantillons (th = 2,5 mm) ϕ20 (a, c) et ϕ40 (b, d).

Conclusions

Dans ce chapitre une modélisation numérique a été développée sous COMSOL Multiphysics® tenant compte du couplage des phénomènes thermique et électrique lors des expériences SPS.

Dans un premier temps, des expériences standard de frittage (avec ou sans échantillon d'alumine) ont permis de mettre en lumière certaines particularités inhérentes à la technologie SPS. Nous avons tout d'abord observé une certaine dissymétrie de notre dispositif du point de vue thermique puisque le haut de la colonne est systématiquement plus chaud que le bas. Cela pourrait être attribué au circuit de refroidissement par eau au niveau des électrodes qui n'est pas identique. Par ailleurs, les mesures expérimentales ont également permis de valider le modèle numérique construit avec des approximations limitées.

Chapitre 3

Étude paramétrique et optimisation de la distribution de température dans l'échantillon lors du procédé SPS

Dans le présent chapitre, nous explorons dans un premier temps l'influence de plusieurs paramètres géométriques et expérimentaux en utilisant le modèle développé : les dimensions de l'échantillon, la forme géométrique des pistons, la température de frittage, les feuilles de contact, la position de la matrice par rapport à l'échantillon et son isolation thermique. Les résultats des simulations numériques sont ensuite utilisés pour proposer une méthode simple de minimisation des gradients thermiques. Certains résultats de ce chapitre ont été publiés dans le Journal **Materials and Design** [Achenani 2017a].

1-Étude paramétrique

1.1-Stratégie et paramètres étudiés

En utilisant le modèle développé (cf. chap. 2) une étude paramétrique a été faite pour analyser l'influence de différents paramètres sur la distribution radiale et axiale de température dans l'échantillon fritté. Les paramètres considérés, reportés dans le tableau (3.1), sont liés soit à la géométrie soit aux conditions expérimentales retenues ou modifiées pendant le frittage SPS (cas de décentrage de la matrice) : conditions de refroidissement (asymétrique et symétrique), types de piston (creux ou plein), température de frittage, emplacement de la matrice par rapport à l'échantillon et l'isolation de la matrice (avec ou sans feutre). L'étude porte essentiellement sur des échantillons cylindriques avec des épaisseurs, th, entre = 2,5 et 10 mm, de diamètres, ϕ, entre 20, et 80 mm.

Les valeurs en caractère gras dans le tableau (3.1) ont été utilisées expérimentalement pour valider le modèle, étendu ensuite aux autres cas.

Tableau 3.1 : Paramètres étudiés. Les conditions utilisées dans les expériences sont en caractères gras et les autres paramètres ont été numériquement analysés.

Paramètres		**Plage étudiée**
Géométriques	Dimensions de l'échantillon (mm)	
	Diamètre, ϕ	**20**, **40**, 60, 80
	Épaisseur, th	**2,5**; 5; 10
	Forme du piston	**Creux**, **plein**
	Épaisseur de la matrice (mm)	**10**, 15
Expérimentaux	Isolation thermique de la matrice	**Avec ou sans feutre en graphite**
	Conditions de refroidissement	**Asymétrique**, symétrique
	Temperature de frittage, T_S	**1300 °C**, 1000 à 1600 °C
	Feuilles de contact	**Papyex**, **molybdène**, tantale
	Emplacement de la matrice par rapport à l'échantillon	**Centré** Décentré vers le bas de 1 à 3 mm Décentré vers le haut de 1 à 3 mm

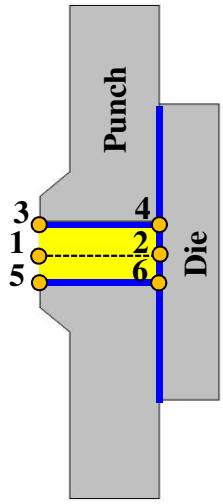


Fig. 3.1 : Points de référence dans l'échantillon.

L'analyse se fera en considérant les écarts de température ΔT_{ij} (i et j variant de 1 à 6) entre différents points de l'échantillon (Fig. 3.1).

1.2-Effet de la forme du piston

Deux formes géométriques du piston, creux et plein, de diamètre ϕ20 mm, comme illustré dans la figure (3.2) ont été utilisées lors des expériences. Dans le premier cas (piston creux), le cycle de chauffage est imposée dans le piston supérieur en graphite, au point A, à 4 mm au-dessus de la surface supérieure de l'échantillon. Dans le deuxième cas (piston plein), le cycle de chauffage est imposé à travers un trou percé à mi-chemin dans la matrice en graphite au point B, situé à 3 mm du bord de l'échantillon.

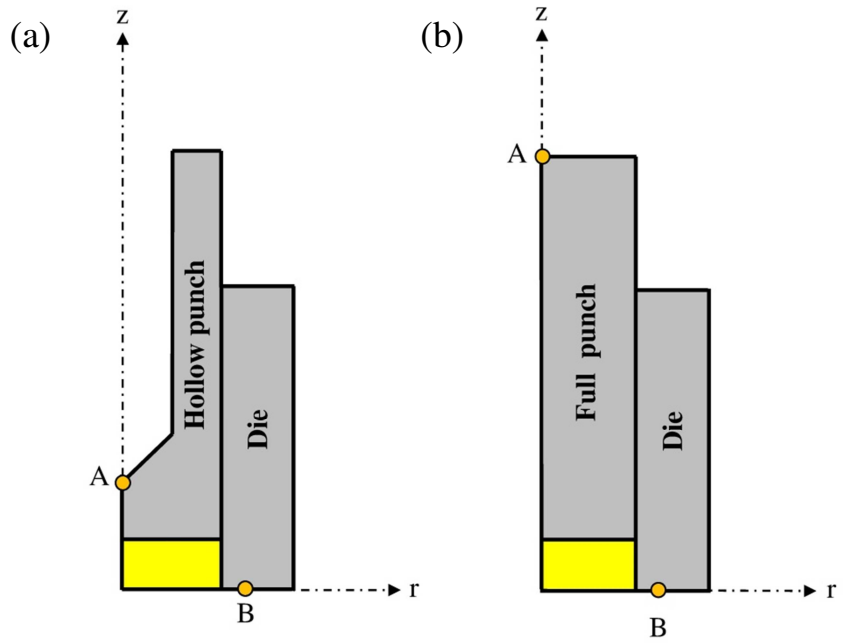


Fig. 3.2 : Schématisation des pistons creux (a) et plein (b) utilisé pendant les expériences SPS et emplacement des pyromètres axial A et radial B.

Le tableau (3.2) regroupe les valeurs simulées et expérimentales des températures aux points de contrôle A et B ainsi que l'écart, ΔT_{AB}, entre ces températures pour les pistons creux et plein, avec ou sans feutre de graphite autour de la matrice. Les températures T_A mesurées dans le cas du piston plein (1258 et 1288 °C respectivement avec ou sans feutre) ne sont pas représentatives de la température réelle atteinte dans l'échantillon. En effet le point A dans ce cas, se trouve loin de la surface supérieure de l'échantillon (à 35 mm). La différence de température, ΔT_{AB} relevée (–42 et –12 °C) dans cette configuration ne représente pas non plus le gradient dans l'échantillon. Par contre, dans le cas du piston creux la différence de température mesurée (14 et 18 °C) fournit au moins une information sur les gradients de température présents dans l'échantillon car les points A (4 mm, de la surface supérieure de l'échantillon) et B (3 mm, du bord de l'échantillon) sont situés à proximité de l'échantillon.

Tableau 3.2 : Comparaison des températures simulées (Sim) et expérimentales (Exp) pour le piston creux et plein ϕ20 (th = 2,5 mm).

Types de piston	**Piston creux**				**Piston plein**			
Matrice	**T_B/°C**		**ΔT_{AB}/°C**		**T_A/°C**		**ΔT_{AB}/°C**	
	Sim	**Exp**	**Sim**	**Exp**	**Sim**	**Exp**	**Sim**	**Exp**
Sans feutre	1282	1282	18	18	1288	1288	−12	−12
Avec feutre	1300	1314	-	−14	1249	1258	−51	−42

Dans la Fig. 3.3a, les cartographies de température illustrent l'effet de la géométrie du piston et le point de contrôle de température sur la distribution de température dans l'ensemble : échantillon/piston/matrice. Dans le cas du piston creux, à partir de la distribution radiale de température représentée sur la figure (3.3b), la température au centre de l'échantillon (1297 °C) est proche de la température de consigne (1300 °C), à l'opposé de celle obtenue dans le cas du piston plein. Dans ce dernier cas, la température au centre de l'échantillon (1310 °C) dépasse celle de la consigne de 10 °C. Alors que, le gradient thermique radial (Fig. 3.3b) est presque le même (de l'ordre 8 °C pour les deux types de pistons).

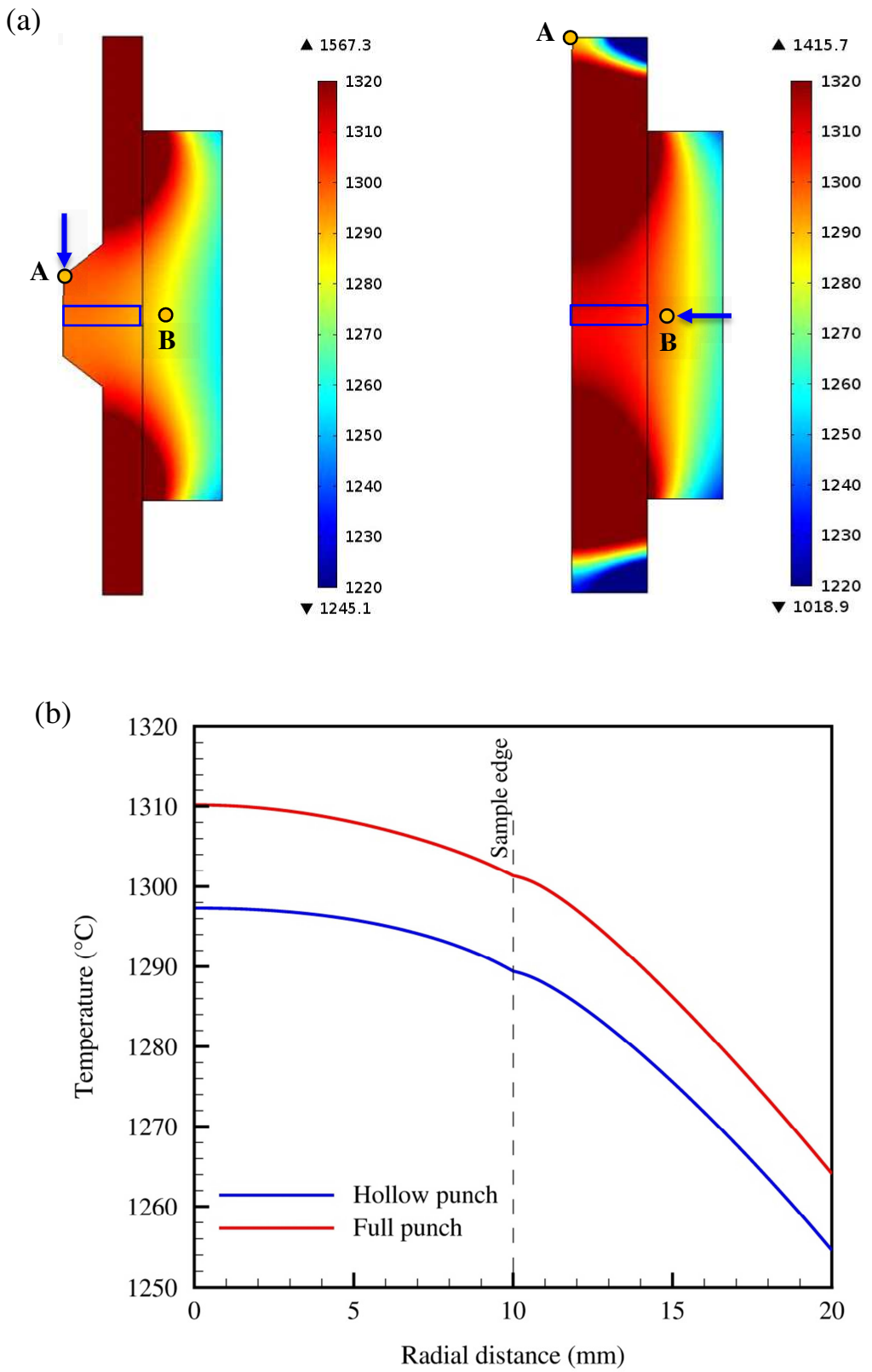


Fig. 3.3 : Cartographies et distribution radiale de température dans l'échantillon (th = 2,5 mm) dans les cas du piston creux et plein de diamètre ϕ20 mm.

En général, il faut noter que les pistons sont considérés comme le foyer des plus hautes températures dans le système SPS. En outre, la chaleur générée par effet Joule dépend de la distribution du courant, qui dépend à son tour de la géométrie des pistons.

D'après les expériences, le courant produit dans le cas du piston plein ((I_{RMS} ~1700 A) est plus important que celui du piston creux (I_{RMS} ~1500 A). Il en résulte donc un chauffage plus intense dans le cas de la configuration utilisant le piston plein, ce qui justifie cette différence de profil de température radial (Fig. 3.3).

1.3-Effet des dimensions de l'échantillon

1.3.1-Distribution radiale de température

Les variations de la densité de courant électrique et de la température simulées, au long de la direction radiale entre le centre de l'échantillon (point 1) et le bord de la matrice, sont représentées en fonction de l'épaisseur dans la Fig. 3.5 pour les échantillons ϕ20 et ϕ40 mm. Un accord parfait entre la simulation et la température mesurée au point B (symboles pleins) pour les échantillons de faible épaisseur (th = 2,5 mm), est constaté. Les résultats confirment la transition entre l'échantillon et la matrice pour les matériaux non conducteurs. Dans ce cas, le courant ne traverse pas l'échantillon, comme on peut le voir sur la Fig. 3.4a et b, mais circule autour de celui-ci, présentant un pic au niveau de l'interface échantillon/matrice, suivi d'une diminution progressive à la périphérie de la matrice (Fig. 3.5a et b). La température est maximale au centre de l'échantillon et diminue vers la périphérie de la matrice (Fig. 3.5c et d), avec une augmentation de la pente à l'interface échantillon/matrice, plus accentuée pour le grand diamètre et liée à la conductivité thermique supérieure de la matrice. Il est à noter que ce profil radial n'est pas général : une température plus élevée au bord de l'échantillon que celle de son centre a été reportée dans le cas d'un matériau conducteur [Wang 2003, Olevsky 2012, Muñoz 2013], en fonction des conditions expérimentales, des dimensions de l'échantillon et de l'outillage. De plus, la température maximale atteinte au centre de l'échantillon dépend fortement de la conductivité thermique du compact par rapport à celle de la matrice. Par conséquent, la différence de température radiale dans l'échantillon [Tiwari 2009].

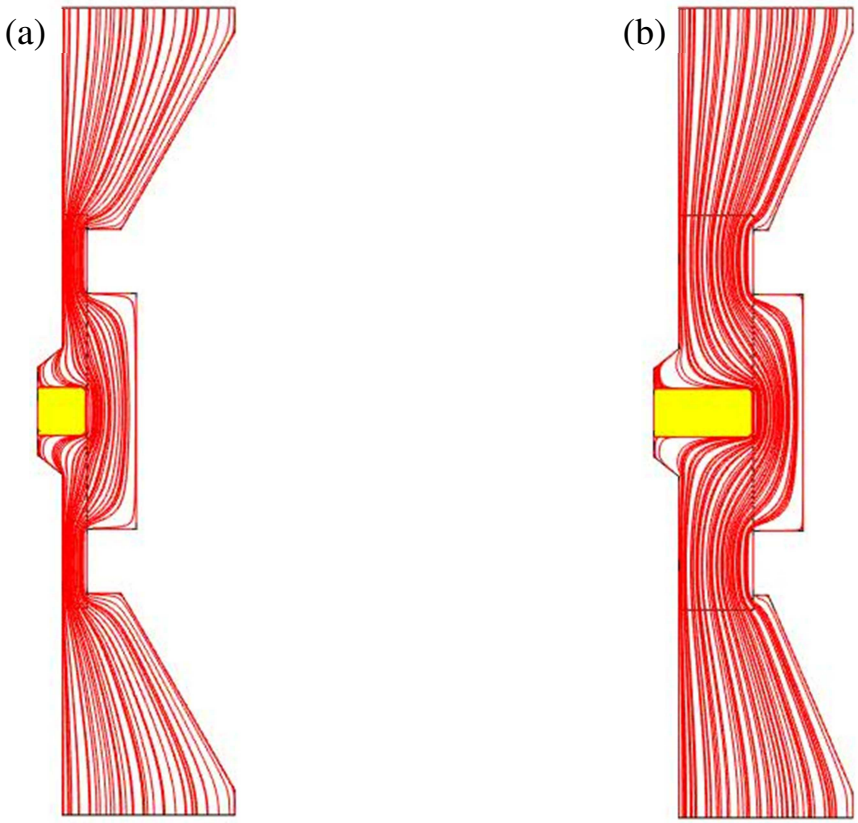
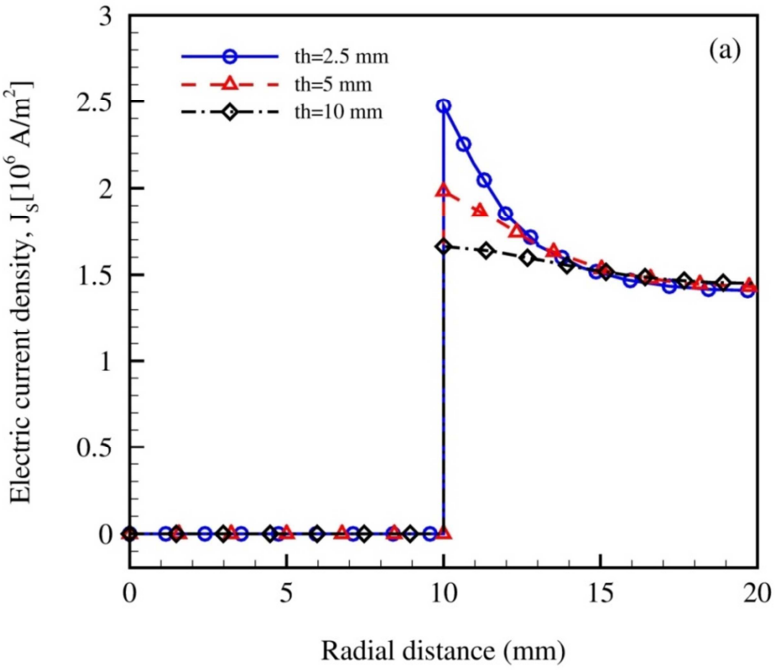
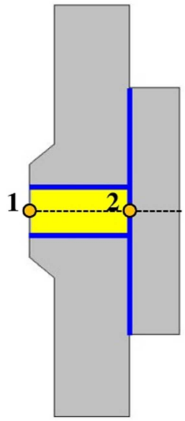
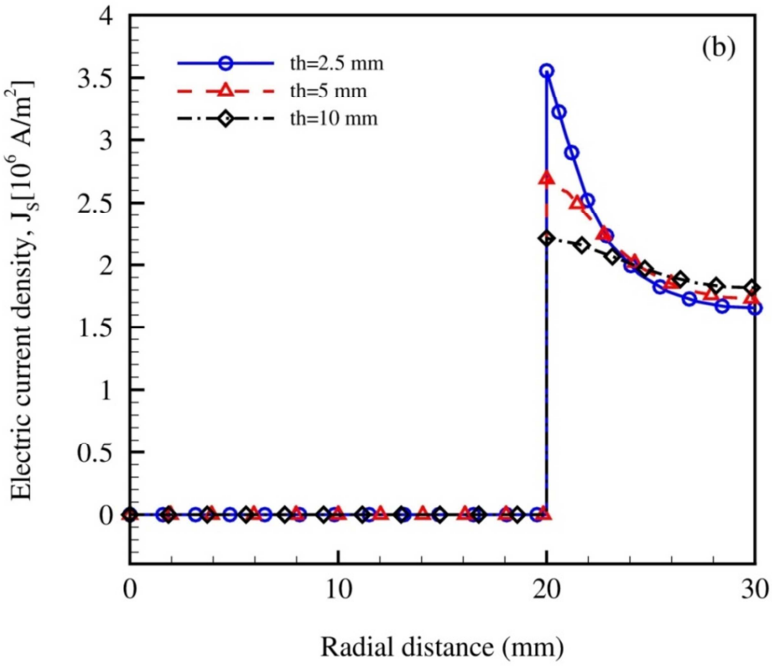


Fig. 3.4 : Distribution des lignes de courant dans l'ensemble de l'outillage SPS pour les diamètres (a) ϕ20 et (b) ϕ40 pour une épaisseur, th = 10 mm.


(a)
th=2.5 mm
th=5 mm
th=10 mm
Electric current density, $J_S[10^6\ A/m^2]$
Radial distance (mm)
0
0.5
1
1.5
2
2.5
3
0
5
10
15
20


1
2


(b)
th=2.5 mm
th=5 mm
th=10 mm
Electric current density, $J_S[10^6\ A/m^2]$
Radial distance (mm)
0
0.5
1
1.5
2
2.5
3
3.5
4
0
10
20
30

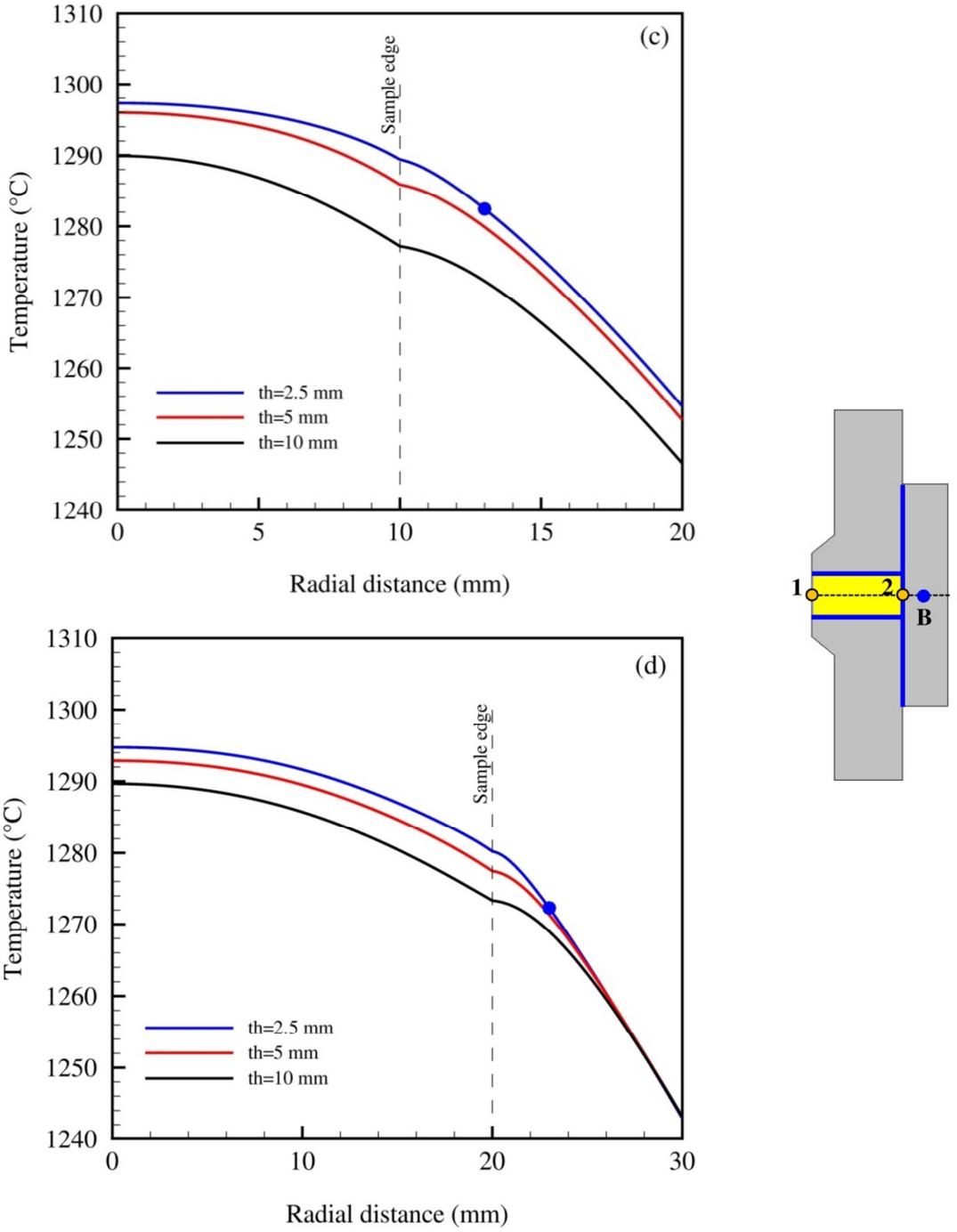


Fig. 3.5 : Effet de l'épaisseur sur la densité de courant électrique (a, b) et distribution de température radiale (c, d) pour les échantillons ϕ20 (a, c) et ϕ40 (b, d). Les symboles pleins correspondent à la température mesurée à la position B dans la matrice.

L'effet des dimensions de l'échantillon sur le gradient thermique radial est analysé en considérant la variation de la différence de température simulée, ΔT_{32}, avec le diamètre de l'échantillon et son épaisseur, représentée sur la Fig. 3.6. Les différences de température expérimentales ΔT_{AB} (symboles pleins), mesurés pour les échantillons de faible épaisseur (th = 2,5 mm), sont également tracées pour comparaison. L'écart obtenu entre ΔT_{AB} et ΔT_{32} est d'environ 9 °C et 10 °C pour un échantillon de diamètre ϕ20 et ϕ40 mm respectivement et ayant 2.5 mm d'épaisseur, malgré la proximité entre les différents points d'évaluation (4 mm pour la distance 3–A et 3 mm pour la distance 2–B), montre l'intérêt des simulations pour étudier la distribution de température (Fig. 3.6) et l'accès aux valeurs de température atteinte dans différents points de l'échantillon, qui sont parfois inférieure à la température de consigne (1300 °C). L'augmentation des dimensions de l'échantillon (diamètre ou épaisseur) augmente la différence de température ΔT_{32} d'une valeur de 9 °C pour l'échantillon de diamètre ϕ20 (th = 2,5 mm), et à 25 °C pour l'échantillon de diamètre ϕ40 (th = 10 mm). Les résultats confirment les conclusions des travaux précédents qui ont mis en évidence l'augmentation de la différence de température radiale avec les dimensions de l'échantillon [Tiwari 2009, Vanherck 2015, Chen 2015, Olevsky 2012, Muñoz 2013]. Pour les matériaux non conducteurs, une grande partie de la chaleur générée par effet Joule est produite dans la zone du piston et de la matrice. Dans ce cas, il a été proposé d'optimiser les dimensions de l'outillage, en particulier l'épaisseur de la matrice pour réduire les gradients de température dans le cas d'un échantillon de dimensions importantes [Vanherck 2015, Muñoz 2013].

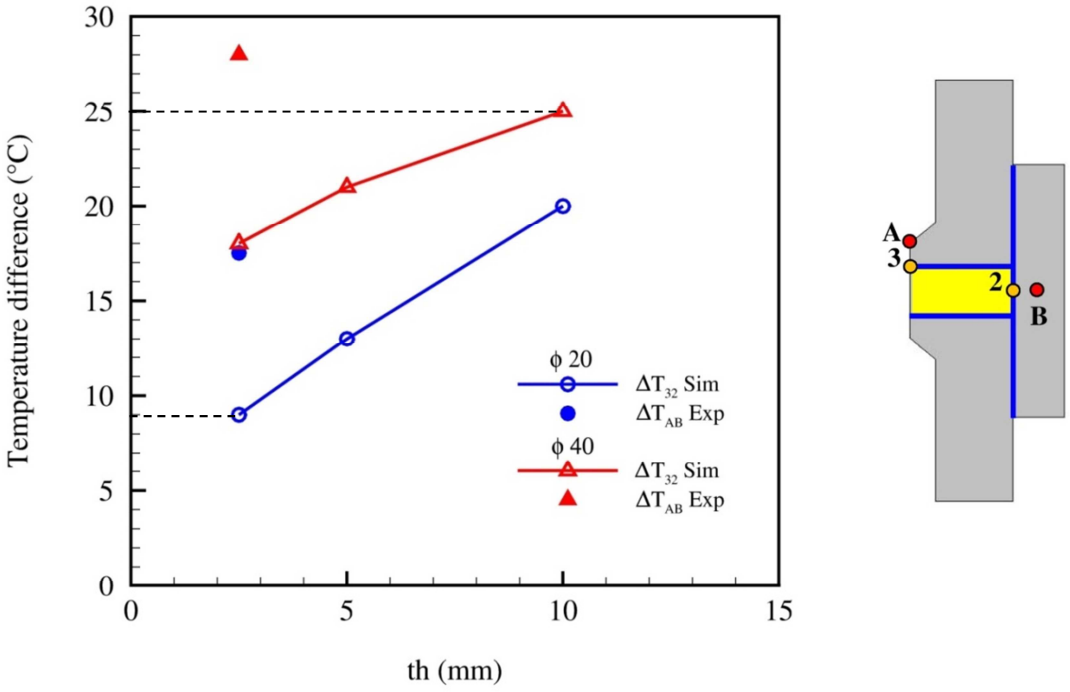


Fig. 3.6 : Différence de température simulée ΔT_{32} en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour les diamètres ϕ20 et 40 mm. Les symboles pleins correspondent aux différences de température expérimentale ΔT_{AB} pour des échantillons d'épaisseurs finales, th = 2,5 mm.

Pour le diamètre ϕ20 la différence de température augmente avec l'épaisseur. La même tendance peut être remarquée pour le diamètre ϕ40 sauf que cette différence de température devient plus importante. Cela est dû à l'effet Joule généré dans le système SPS, qui dépend de la distribution du courant, ce dernier dépend à son tour des dimensions de l'outillage (pour ϕ20, I_{RMS} ~1500 A et pour ϕ40, I_{RMS} ~3200 A). En plus, la pente des spacers coniques dans les deux diamètres est différente.

Par ailleurs, une résolution analytique en régime stationnaire du problème thermique du procédé frittage SPS (sans tenir compte du problème électrique) a été faite, en s'inspirant de la littérature, et a montré que la distribution de température dépend fortement des dimensions de l'échantillon, de l'écart de la conductivité thermique entre l'échantillon et la matrice et de la puissance électrique injectée dans le l'ensemble échantillon/matrice.

1.3.2-Distribution axiale de température

Des gradients de température axiaux apparaissent dans l'échantillon en plus des gradients radiaux, ils sont rarement pris en compte dans la littérature, en particulier dans le cas d'un mode de régulation de température tel que celui considéré dans cette étude. Dans la Fig. 3.7, la distribution de température axiale au long de la ligne centrale axiale 3–5 est représentée en fonction de la coordonnée axiale relative (z/th) pour les diamètres et les épaisseurs de l'échantillon considéré. Pour comparaison, les distributions de température correspondant aux conditions aux limites thermiques symétriques (lignes discontinues) sont également tracées sur la figure. On peut voir que le modèle symétrique sous-estime les gradients de température axiaux, en particulier pour un échantillon avec un diamètre plus large (Fig. 3.7b). De plus, les effets asymétriques apparaissent avec une température plus élevée à la surface supérieure (point 3), lorsque les conditions aux limites thermiques asymétriques réelles sont considérées.

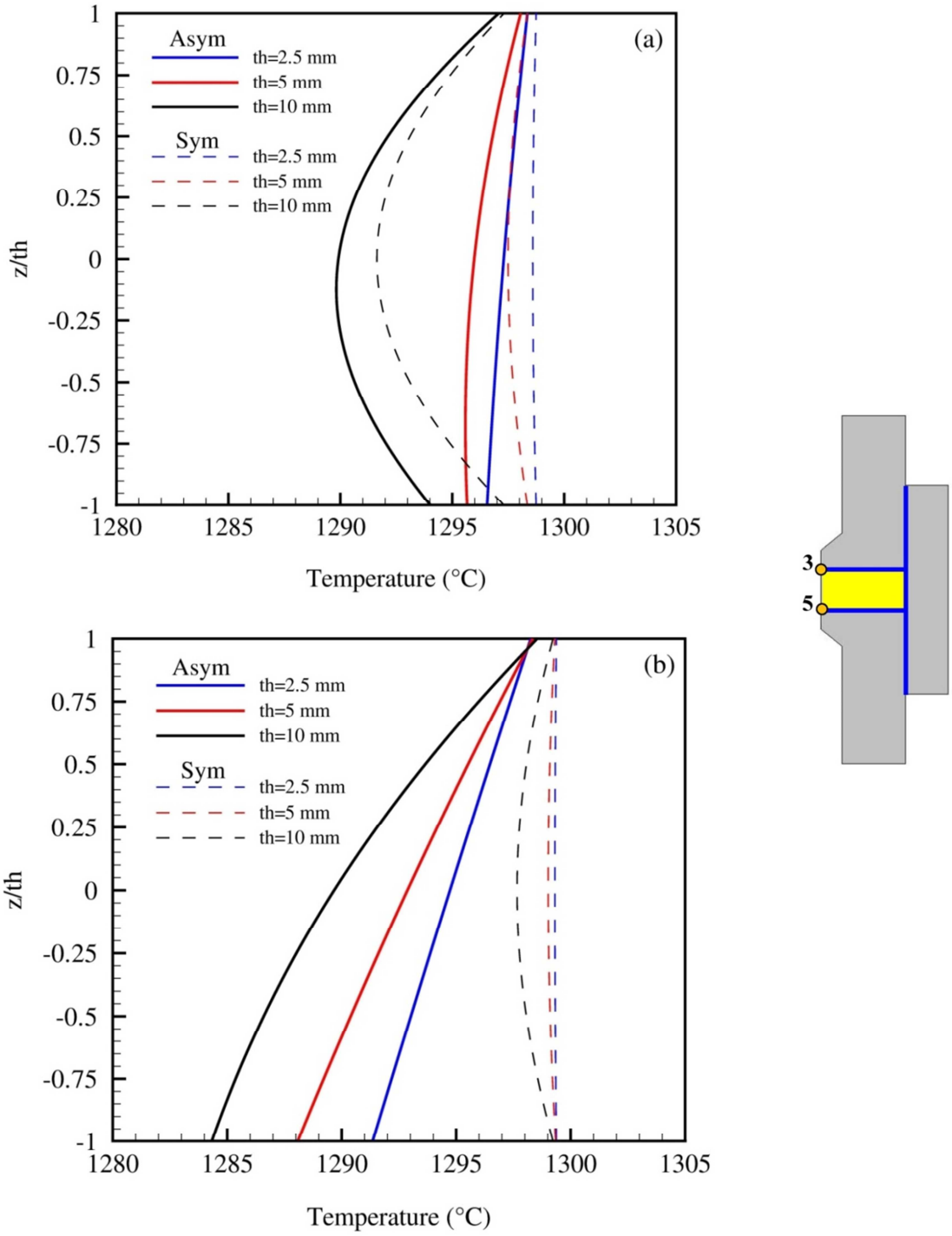


Fig. 3.7 : Distribution de la température au long de la ligne central axiale 3–5 pour différentes épaisseurs de l'échantillon, th. Comparaison des conditions aux limites thermiques symétrique (Sym) et asymétrique (Asym) pour l'échantillon (a) ϕ20 et (b) ϕ40.

L'asymétrie est accentuée lorsque les dimensions de l'échantillon augmentent. Comme le montre la Fig. 3.8, l'augmentation des dimensions de l'échantillon augmente la différence

de température maximale au long de la ligne centrale axiale 3–5, $\Delta T_{max,35}$ (qui est égale à ΔT_{35} dans le cas du diamètre ϕ40 mm pour des conditions aux limites asymétriques). Cette différence de température est négligeable (inférieure à 2 °C) pour un échantillon de diamètre ϕ20 et 2,5 mm d'épaisseur et augmente jusqu'à 14 °C dans le cas d'un échantillon de diamètre ϕ40 et 10 mm d'épaisseur. On peut remarquer que dans ce dernier cas, la différence de température axiale est proche du gradient radial central, ΔT_{12}, également représenté sur la même figure. Il est donc important de minimiser non seulement le gradient radial, mais aussi le gradient axial, qui peut entraîner des propriétés non homogènes du matériau.

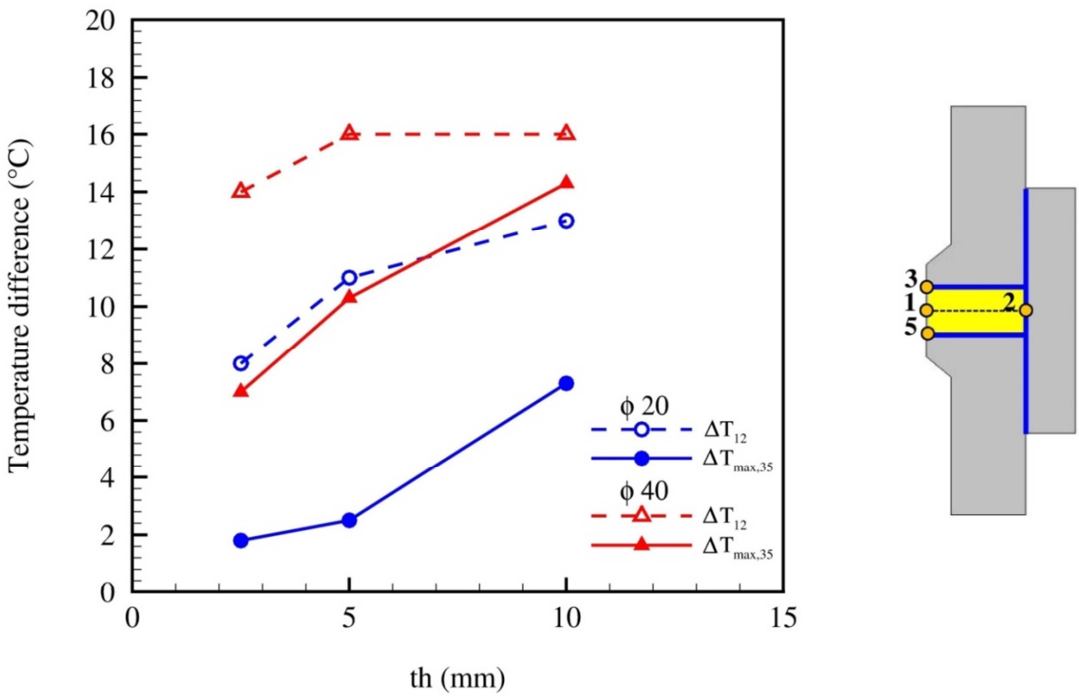


Fig. 3.8 : Comparaison de la différence de température axiale maximale, $\Delta T_{max,35}$ (lignes continues) et la différence de température radiale centrale ΔT_{12} (lignes discontinues).

1.4-Effet de la température de frittage

Parmi les paramètres influençant fortement l'homogénéité thermique dans l'échantillon, et son incidence sur les propriétés et la microstructure obtenues, on trouve la température de frittage. La Fig. 3.9 montre l'effet de ce paramètre sur la différence de température maximale dans le cas d'un échantillon ϕ40 d'épaisseur th = 10 mm.

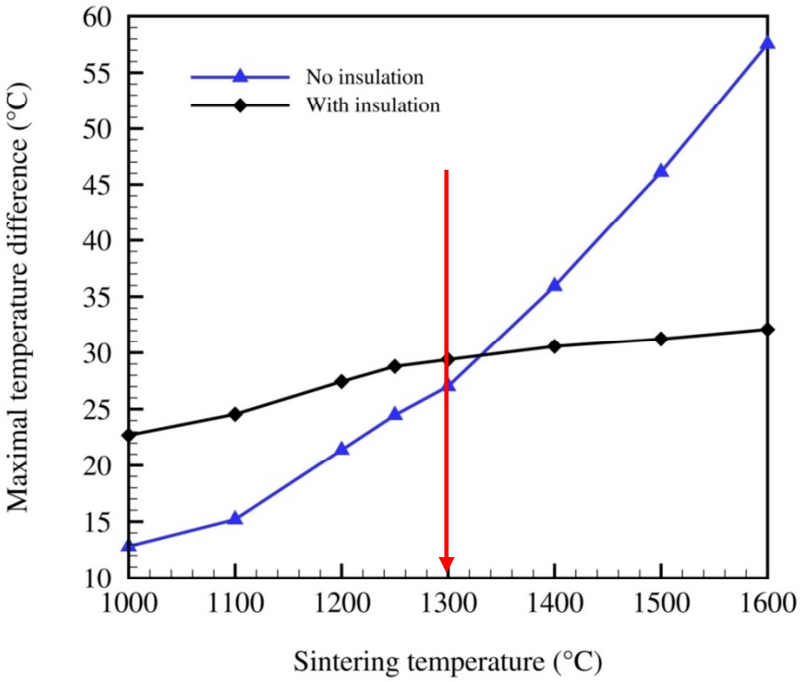


Fig. 3.9 : Effet de la température de frittage sur la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon pour les deux configurations : avec ou sans isolation thermique.

A partir de la Fig. 3.9, on peut voir que l'élévation de la température de frittage augmente la différence de température maximale dans l'échantillon dans les deux configurations : avec ou sans isolation thermique. Les gradients de température engendrée par la température de frittage affectent aussi les propriétés du matériau comme c'est le cas pour la transparence étudiée par [Gu 2015] dans le cas de la zéolite. Pour des températures de frittage supérieures à 1300 °C, l'utilisation de l'isolation thermique de la matrice diminue le gradient thermique dans l'échantillon qui est cependant, amplifié pour des températures inférieures à 1300 °C.

1.5-Effet des feuilles de contact

Durant les expériences, l'utilisation des feuilles de contact en graphite (Papyex) autour de l'échantillon a pour objectif d'améliorer le contact électrique, de faciliter le glissement des pistons dans la matrice et du démoulage de l'échantillon, ainsi que d'empêcher toute réaction physico-chimique entre les éléments (pistons et matrice) entourant la poudre à fritter. Cependant, le contact direct des feuilles de papyex engendre une contamination chimique de

la surface de l'échantillon qui peut avoir un effet néfaste sur ses propriétés, particulièrement sur la transparence recherchée pour des applications optiques.

Dans ce travail, certains échantillons ont été frittés en remplaçant le papyex par des feuilles de molybdène d'épaisseur 50 µm à l'interface échantillon-piston et cela n'a pas eu d'incidence sur la température de contrôle mesurée au point B. Par ailleurs, nous avons utilisé le modèle développé pour évaluer l'effet d'un remplacement du papyex par des feuilles de molybdène ou de tantale (d'épaisseur 50 µm) dans le cas du frittage d'un échantillon d'alumine de diamètre ϕ20 et 2,5 mm d'épaisseur.

Le tableau (3.3) regroupe les valeurs simulées et mesurées de la température à la position B et celles du courant efficace I_{RMS} pour les différentes feuilles de contact. Un très bon accord entre mesure et simulations a été trouvé pour les deux feuilles testées expérimentalement (papyex et Mo).

Tableau 3.3 : Comparaison des valeurs simulées (Sim) et expérimentales (Exp) de la température à la position B (T_B) et du courant (I_{RMS}), au palier du frittage pour différentes feuilles de contact. Échantillon ϕ20, th = 2,5 mm.

Feuilles de contact	**T_B/°C**		**I_{RMS}/A**	
	Sim	**Exp**	**Sim**	**Exp**
Papyex	1282	1282	1498	1470
Mo	1282	1282	1498	1540
Ta	1282	-	1498	-

A partir de la figure (3.10), on peut voir que la distribution radiale de température dans l'échantillon est la même pour les trois types de feuilles de contact (papyex, molybdène et tantale). Cela permet par conséquent d'envisager le remplacement du papyex par le molybdène ou le tantale.

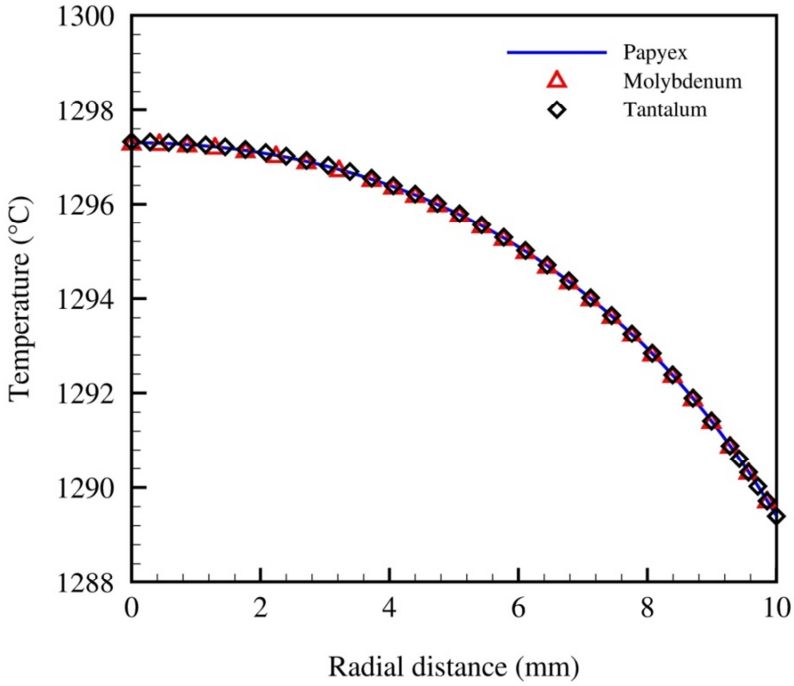


Fig. 3.10 : Distribution radiale de température dans un échantillon (ϕ20, th = 2,5 mm) pour différentes feuilles de contact : papyex, molybdène et tantale.

2-Optimisation de la distribution de température

Dans différentes études expérimentales menées, des pistes d'optimisation du frittage SPS ont été proposées et portent sur les conditions de traitement via l'interface de contrôle de la machine [Morita 2009, Cuccu 2015] telles que la température de frittage, la vitesse de chauffe, le temps de maintien et la pression, en vue d'obtenir la meilleure combinaison de paramètres en termes de densification et de propriétés des matériaux. Les approches numériques les plus courantes reposent sur l'optimisation de la conception de l'outillage ou de ses dimensions [Vanherck 2015, Muñoz 2013, Giuntini 2013a, Giuntini 2015] pour atténuer les inhomogénéités de température pendant le frittage SPS. Dans ce travail, nous proposons une méthode d'homogénéisation du champ de température basée sur l'emplacement de la matrice par rapport à l'échantillon et son isolation thermique.

2.1-Effet de la position de la matrice

Les gradients de température axiaux peuvent résulter du positionnement asymétrique des pistons dans la matrice, en raison du positionnement initial de la matrice ou de sa

modification pendant la densification de l'échantillon [Anselmi-Tamburini 2005]. Pour étudier l'influence de cette asymétrie sur la distribution de température, des emplacements décentrés de la matrice en raison de déplacements relatifs vers le bas ou vers le haut (de 1 à 3 mm) respectivement désignés par d^- et d^+, ont été considérés. La figure (3.11) montre les résultats correspondant à un échantillon de diamètre ϕ40 et d'épaisseur th = 10 mm, pour lequel le gradient de température est maximal lorsque la matrice est centrée verticalement par rapport à l'échantillon.

D'après la figure (3.11a), on peut voir que le décalage de la matrice n'a aucun effet sur le gradient de température radiale. Cependant, il déplace la distribution radiale de température vers des valeurs plus élevées ou plus faibles respectivement pour les déplacements vers le haut ou vers le bas. Un déplacement vers le haut de la matrice réduit l'écart entre la température au centre de la surface supérieure de l'échantillon et la température réglée (1300 °C), qui est atteinte pour $d^+ = 2$ mm. De plus, l'augmentation du déplacement vers le bas de 1 à 3 mm accentue l'asymétrie axiale de la distribution de température et du gradient de température axial, ΔT_{35} (Fig. 3.11b) par rapport à la position centrée (ligne discontinue sur la figure). Pour les déplacements vers le haut, le gradient axial diminue jusqu'à une valeur inférieure à 5 °C pour $d^+ = 1$ mm, devient négatif pour $d^+ = 2$ mm et augmente vers une valeur plus négative lorsque d^+ est augmenté à 3 mm. Ce changement de signe présente un intérêt particulier car il offre la possibilité d'abaisser le gradient de température axial en contrôlant l'emplacement de la matrice. Il est à noter qu'un emplacement décentré de la matrice a été utilisé pour obtenir des matériaux à gradient de fonction pour lesquels un gradient de température est requis [Guillon 2014, Belmonte 2009]. Les résultats de la simulation montrent que ce principe, s'il est soigneusement contrôlé, peut être utilisé en sens inverse pour contrebalancer l'effet asymétrique du refroidissement et obtenir une distribution plus homogène de la température axiale et au voisinage de la consigne.

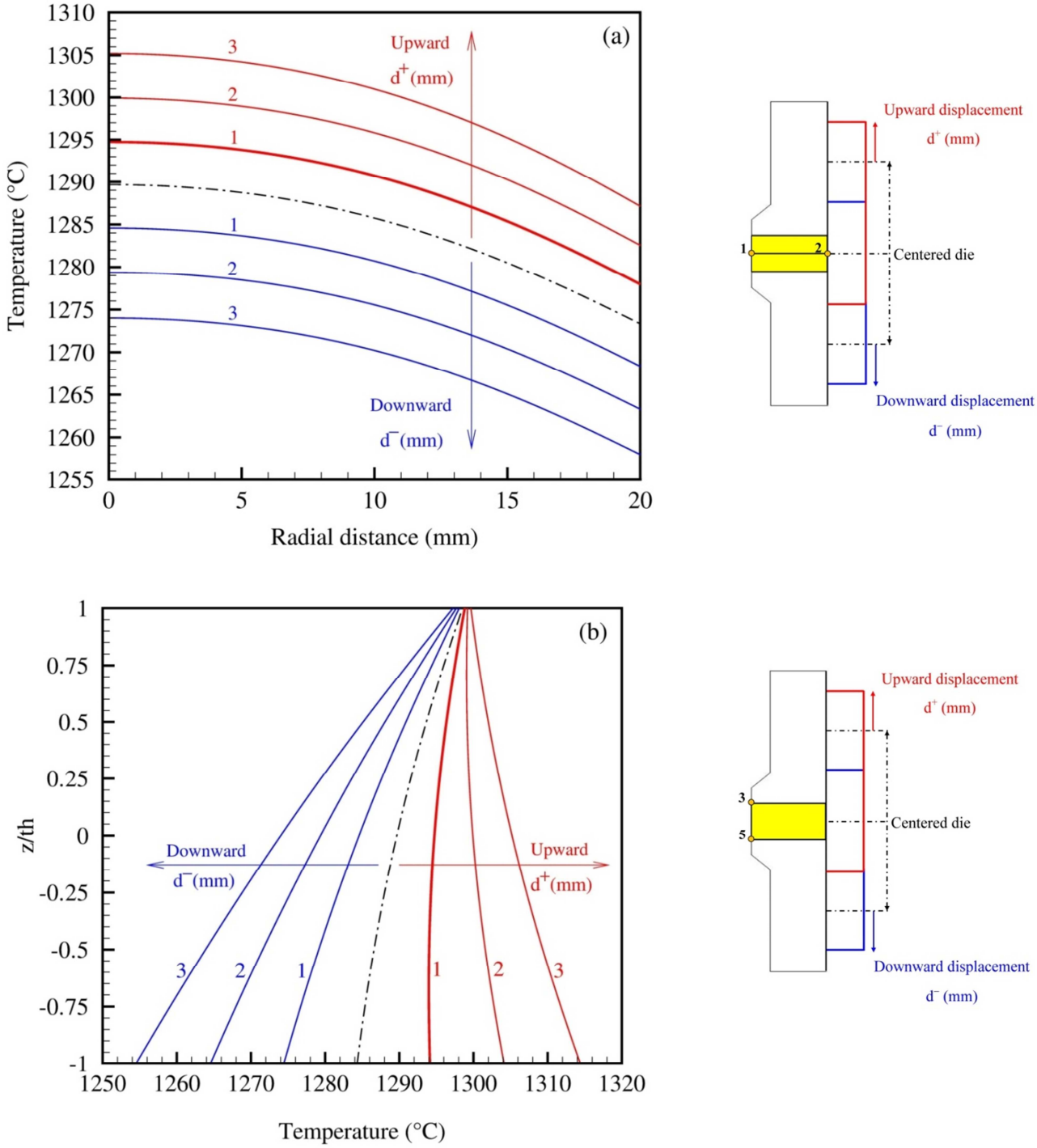


Fig. 3.11 : Effet des déplacements de la matrice vers la bas (d^-) et vers le haut (d^+) sur la distribution de température suivant la ligne centrale radiale 1–2 (a) et la ligne centrale axiale 3–5 (b) pour un échantillon ϕ40 (th = 10 mm). La ligne discontinue correspond à un emplacement centré de la matrice par rapport à l'échantillon.

2.2-Effet de l'isolation thermique de la matrice

Une pratique simple et courante pour réduire les gradients radiaux de température dans l'échantillon pendant le frittage SPS consiste à placer un isolant thermique en feutre autour de la matrice. Cependant, les gradients thermiques radiaux peuvent être amplifiés dans le cas des matériaux non conducteurs, comme il a été démontré par [Naimi 2013]. Pour étudier cet effet dans notre configuration SPS, nous avons d'abord réalisé des simulations pour un échantillon de diamètre ϕ40 et 10 mm d'épaisseur, en considérant l'isolation totale de la matrice (Fig. 3.12a) avec un feutre de graphite d'une hauteur de 48 mm (identique à celle de la matrice) et d'une épaisseur de 10 mm, telle qu'utilisée dans les expériences. Dans le présent travail, nous proposons une nouvelle approche basée sur l'optimisation de l'isolation en feutre de la matrice (le reste de la machine n'est pas modifié) pour minimiser le gradient de température dans le cas d'un grand échantillon (ϕ40, th = 10 mm).

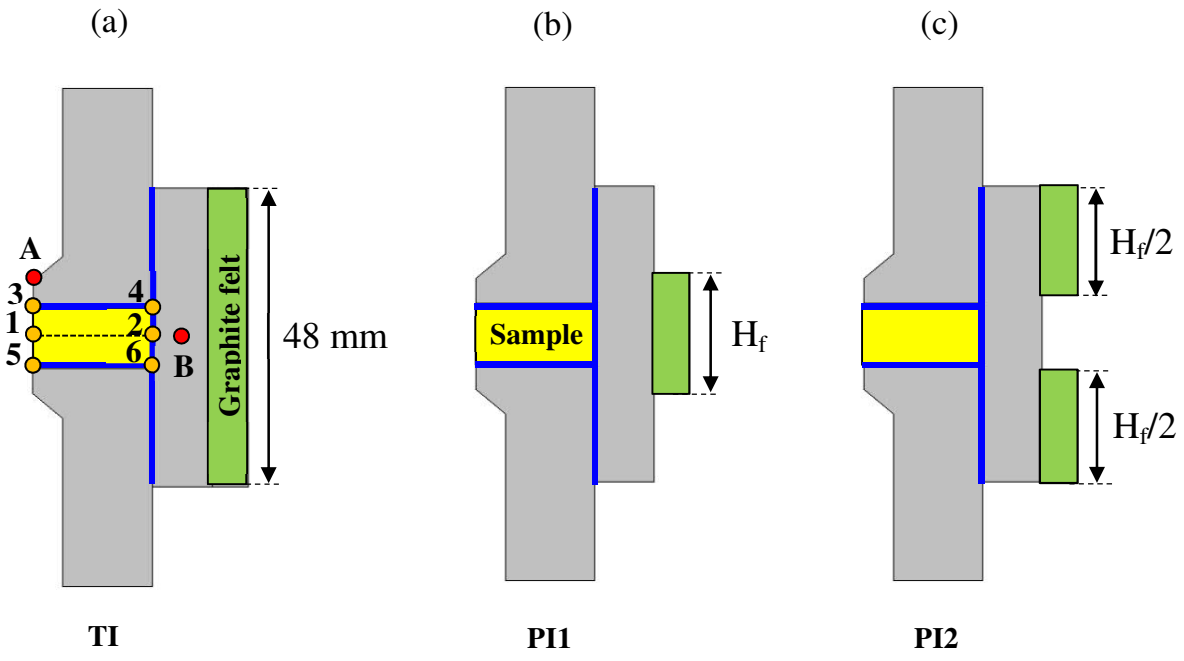


Fig. 3.11 : Différentes configurations de l'isolation de la matrice : (a) isolation totale (TI), (b) isolation partielle avec un morceau de feutre (PI1) et (c) isolation partielle avec 2 morceaux de feutre (PI2).

2.2.1-Isolation totale et épaisseur optimale

La figure (3.13) montre l'effet de l'isolation totale sur la distribution radiale de température comparé au cas sans isolation pour les échantillons ϕ20 et ϕ40. On peut voir qu'avec l'isolation totale de la matrice, la température à la périphérie de l'échantillon devient plus élevée que celle au centre, pour les deux échantillons. Cette inversion a également été observée expérimentalement pour les deux diamètres ϕ20 et 40 mm (th = 2,5 mm), car la température à la position B devient supérieure à la valeur centrale, T_A = 1300 °C, avec isolation totale de la matrice (cf. Tableau 2.2, chap. 2, § 6). Pour un échantillon de petit diamètre, cette isolation réduit efficacement le gradient radial qui devient négligeable (~ 3 °C) et permet d'obtenir une température proche de la consigne dans l'ensemble de l'échantillon. Cependant, pour l'échantillon de diamètre ϕ40 mm, le gradient radial augmente légèrement (de 5 °C) par rapport à la configuration sans isolation.

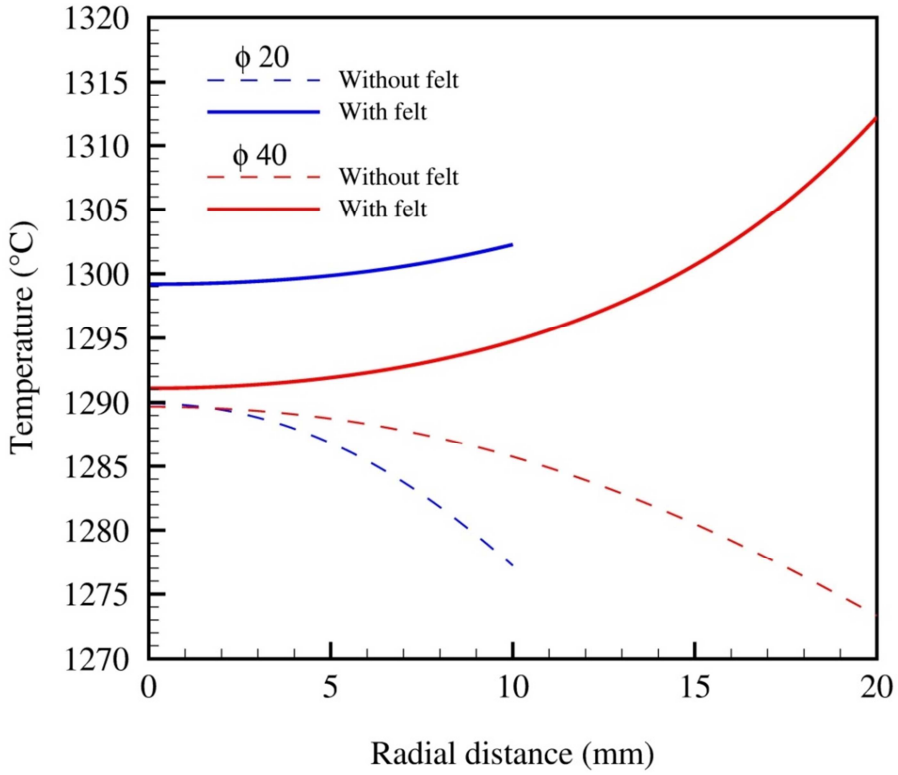


Fig. 3.13 : Effet de l'isolation totale de la matrice (feutre de graphite de 48 mm de hauteur et 10 mm d'épaisseur) sur la distribution de la température au long de la ligne centrale radiale 1–2 (épaisseur de l'échantillon, th = 10 mm).

Le feutre permet d'augmenter la résistance à la conduction thermique dans la direction radiale, ce qui entraîne des pertes thermiques par rayonnement plus faibles bien que l'émissivité de la surface externe ait été sensiblement augmentée par rapport à celle de la matrice. Par conséquent, autour de l'échantillon, la matrice n'est plus la partie la plus froide de l'ensemble pistons-matrice comme c'est le cas de la configuration sans feutre. Il en résulte un champ thermique homogène, par rapport au cas sans isolation (Fig. 3.14), qui affecte l'échantillon en conséquence. Cette homogénéisation est moins importante dans le cas d'un échantillon de diamètre ϕ40 mm. En effet, la production de la chaleur et sa distribution dans les pistons et la matrice dépendent principalement des dimensions relatives du feutre, et de la nature des conditions aux limites du rayonnement appliquées aux surfaces externes de l'ensemble pistons-matrice.

Sans isolation **Isolation totale de la matrice**

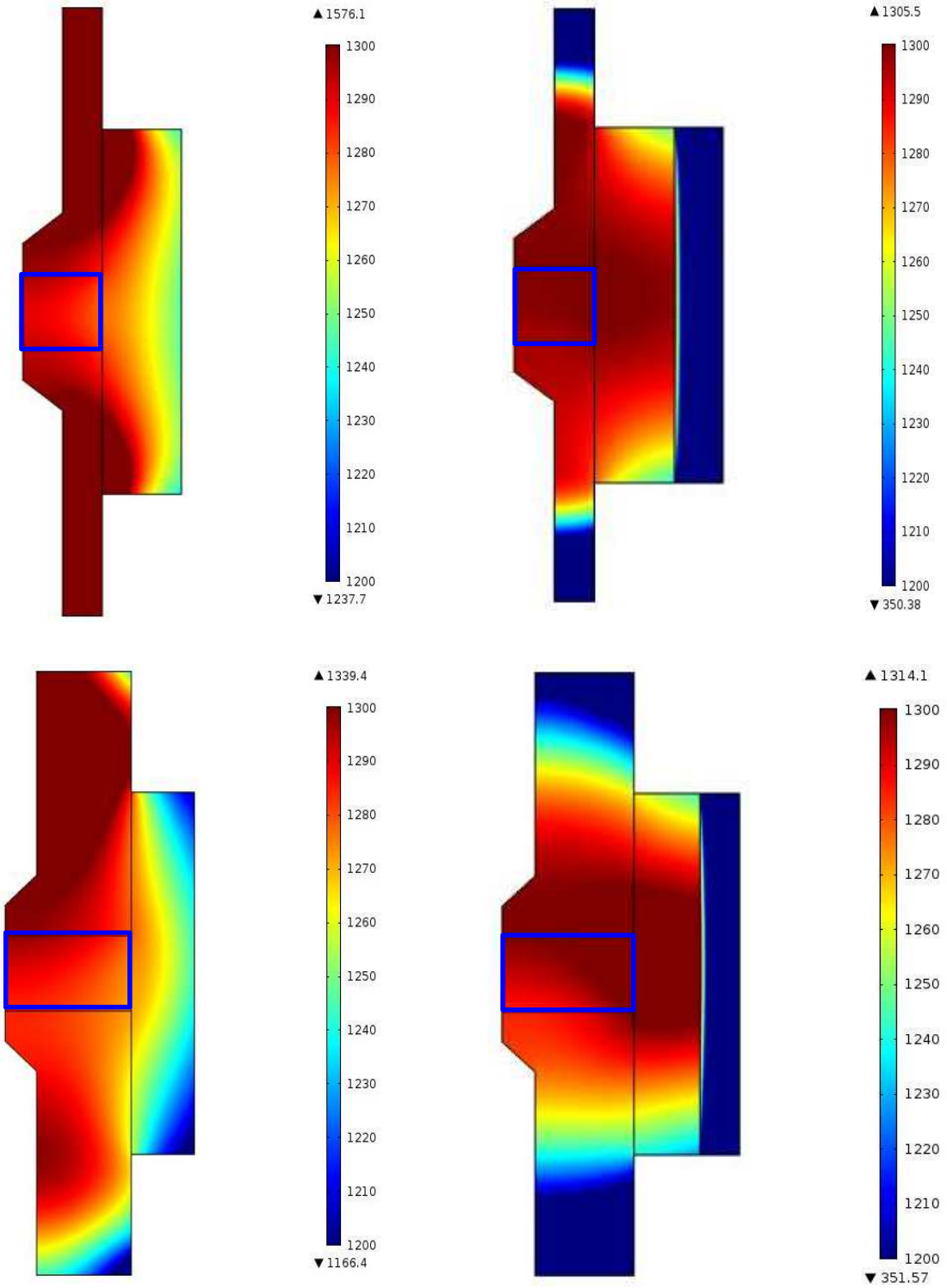


Fig. 3.14 : Comparaison des champs de température dans différentes configurations : avec ou sans isolation de la matrice pour les échantillons de diamètre ϕ20 (a, b) et ϕ40 (c, d) et faisant

10 mm d'épaisseur.

D'un point de vue thermique, l'équilibre entre la production et les pertes de chaleur dans le système SPS résultant de la conduction et du rayonnement et peut être obtenu à travers l'optimisation de dimensions de l'outillage, en particulier les pistons et la matrice. Ce qui entraîne une minimisation du gradient de température dans l'échantillon lorsque des conditions aux limites particulières de rayonnement sont sélectionnées, comme le montrent de récentes études de Muñoz et Anselmi-Tamburini [Muñoz 2013] et Vanherck *et al.* [Vanherck 2015]. D'autre part, les conditions aux limites thermiques sur les surfaces latérales, en particulier celle de la matrice, doivent être considérées sous deux angles : le premier concerne les pertes par rayonnement qui dépendent des propriétés de la surface externe en termes d'émissivité, le second concerne l'utilisation du feutre comme isolant. Le premier aspect a été étudié numériquement par Muñoz et Anselmi-Tamburini [Muñoz 2013] qui ont considéré différents niveaux théoriques d'émissivité.

Dans un premier temps, le champ de température a été simulé en considérant l'isolation totale (Fig. 3.12a), avec une épaisseur de feutre diminuant de 10 mm (valeur expérimentale) à 3 mm. La figure (3.15) montre que la différence de température maximale dans l'échantillon diminue progressivement avec l'épaisseur du feutre.

Pour des raisons pratiques, dans ce qui suit, une épaisseur de feutre de 6 mm a été choisie, qui est la plus petite valeur offerte par le fournisseur pour le même grade de feutre utilisé tout au long de nos travaux.

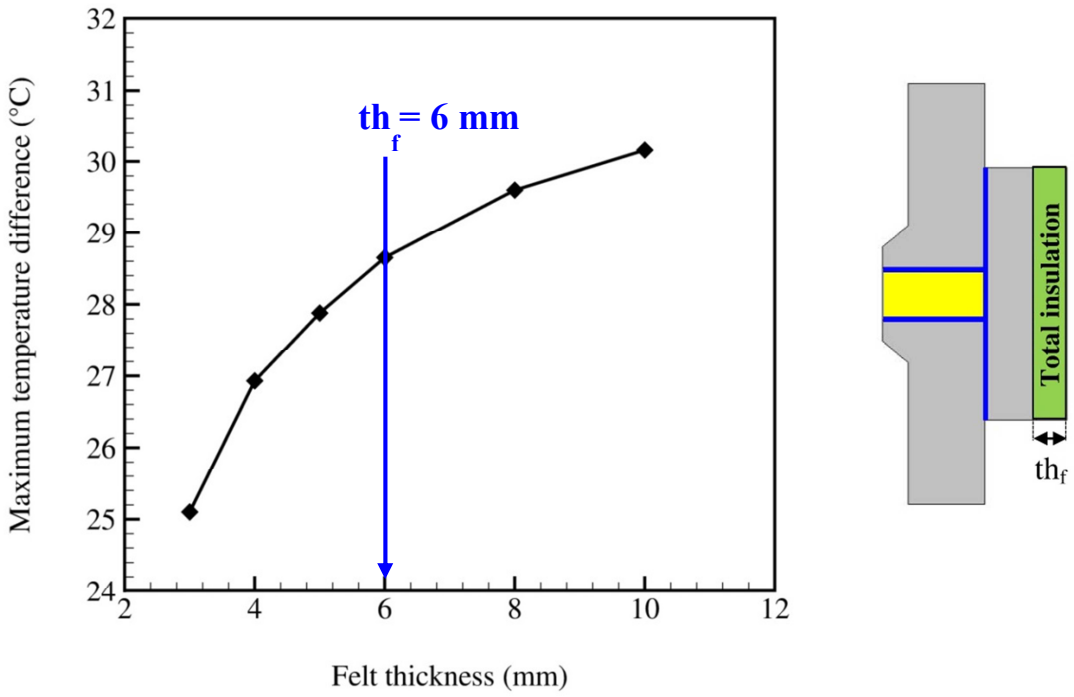


Fig. 3.15 : Influence de l'épaisseur du feutre en graphite sur la différence de température maximale au sein de l'échantillon dans le cas d'une isolation totale.

2.2.2-Isolation partielle

Après avoir obtenu l'épaisseur optimale du feutre, nous avons considéré l'isolation partielle (PI) de la matrice en réduisant la hauteur de la partie recouverte par l'isolant dans deux configurations : PI1 (Fig. 3.12b) où le feutre est formé d'un morceau unique centré verticalement par rapport à la matrice et PI2, où le feutre est coupé en deux morceaux identiques disposés sur la surface latérale de la matrice comme le montre la figure (3.12c). Pour les deux configurations, nous avons varié la hauteur totale du feutre, H_f, et étudié son influence sur la distribution radiale de température dans l'échantillon.

Les variations des températures maximale et minimale (respectivement T_{max} et T_{min}) le long de la ligne centrale radiale 1–2 de l'échantillon sont représentées dans la figure (3.16) pour la configuration PI1. On peut remarquer que la différence entre ces deux courbes de température est minime (moins de 2 °C) pour une hauteur optimale du feutre de 16 mm. Selon la hauteur du feutre, la chaleur est plus ou moins piégée dans la matrice et l'effet est assez proche de celui obtenu par Vanherck *et al.* [Vanherck 2015] en faisant varier l'épaisseur de la matrice. Cependant, le gradient thermique axial, n'est pas influencé par la variation de la

hauteur du feutre, par contre le gradient thermique radial varie et peut être minimisé par une hauteur optimale.

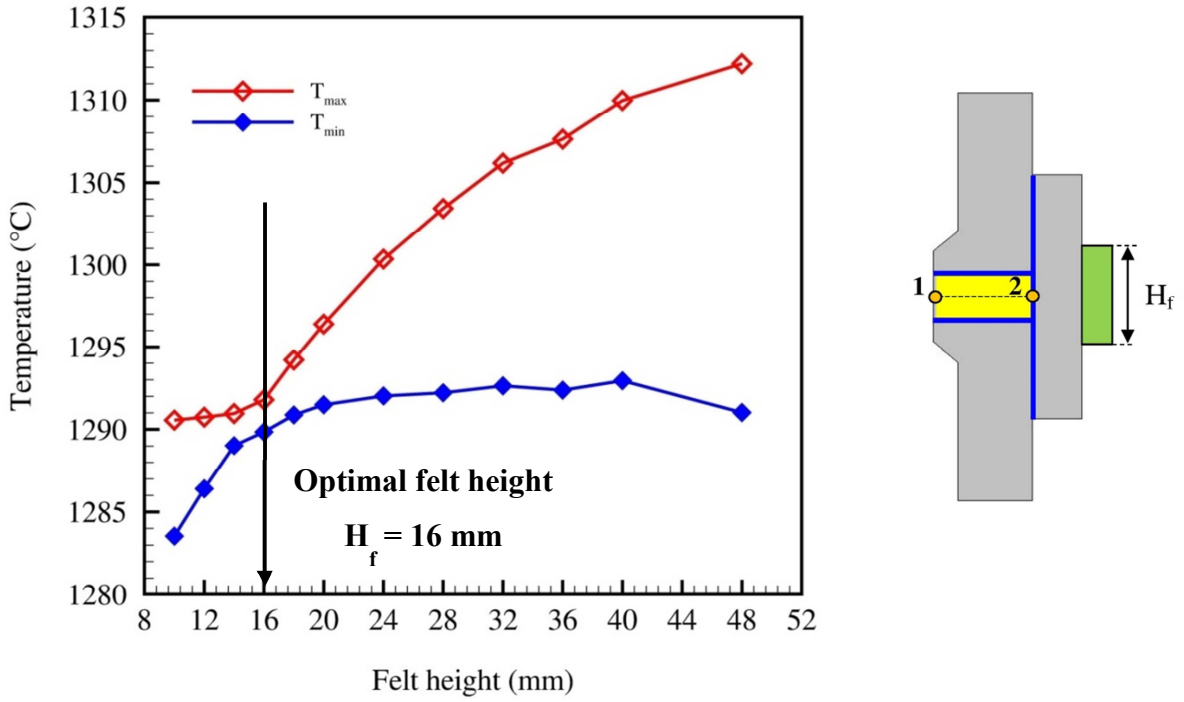


Fig. 3.16 : Effet de la hauteur du feutre sur les températures maximale et minimale au long de la ligne centrale radiale 1–2 (échantillon ϕ40, th = 10 mm).

D'après la figure (3.17) qui illustre la variation de la différence de température maximale ($\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$) au long de différentes lignes radiales dans l'échantillon, on peut observer que la valeur H_f = 16 mm est presque optimale pour la ligne inférieure (5–6). Cependant, pour la ligne supérieure (3–4), l'optimum est obtenu pour une valeur significativement plus élevée, H_f = 24 mm. Un effet identique a été obtenu dans le cas de la configuration PI2 où le feutre est coupé en deux morceaux, avec une hauteur optimale du feutre de 36 mm lorsque la distribution radiale centrale est considérée. De plus, les différences de température évaluées ΔT_{32} et ΔT_{AB} évoluent de la même manière.

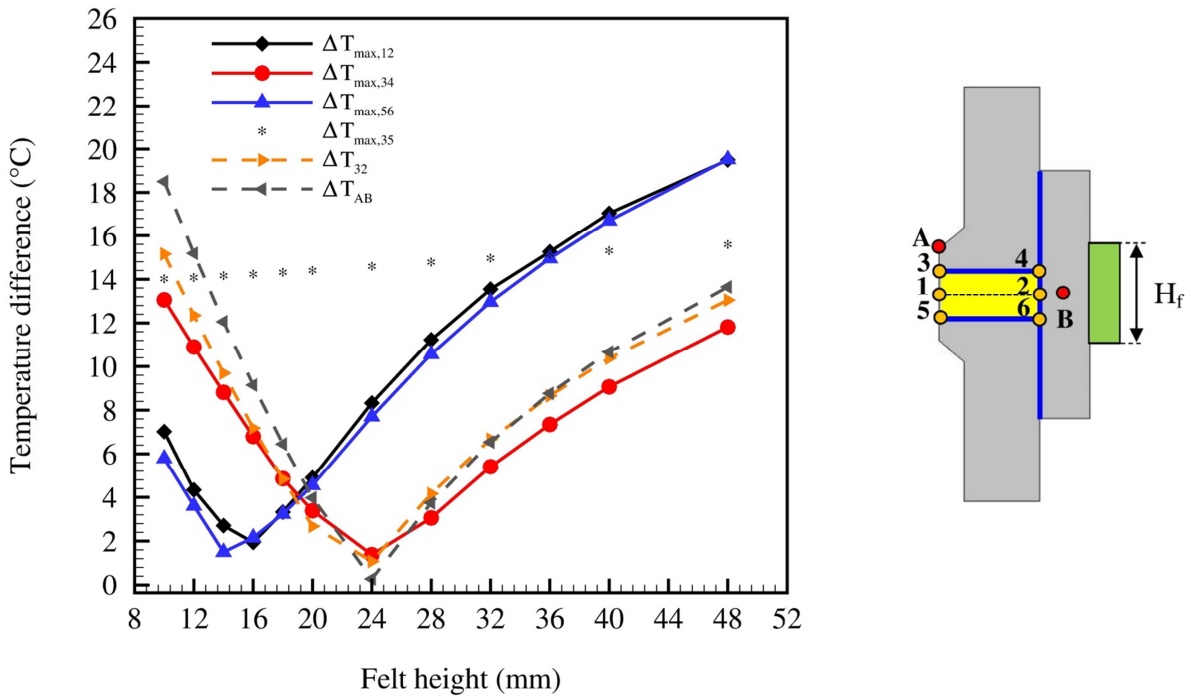


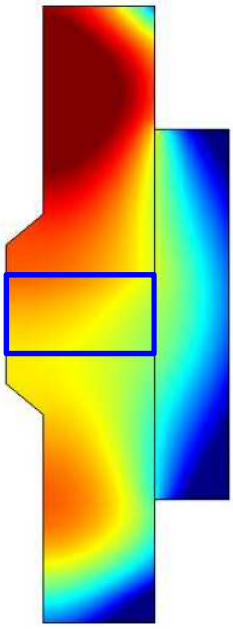
Fig. 3.17 : Effet de la hauteur du feutre sur la différence de température maximale ($\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$) au long des surfaces de l'échantillon centrale, supérieure et inférieure (lignes 1–2, 3–4 et 5–6 respectivement).

2.3-Configuration optimale

2.3.1-Combinaison de deux effets : isolation partielle et décalage de la matrice

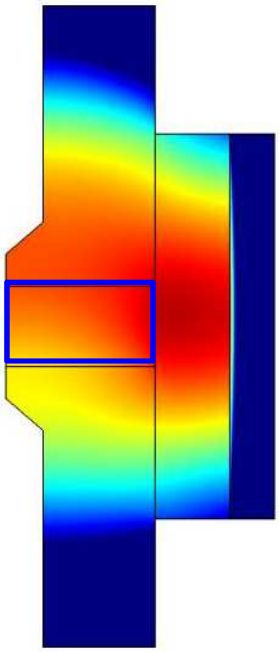
Comme mentionné précédemment, l'isolation en feutre a peu d'effet sur le gradient de température axial. Pour améliorer l'homogénéisation thermique dans l'échantillon, nous avons combiné deux configurations qui influencent séparément les gradients thermiques radiaux et axiaux, à savoir la configuration PI1 de l'isolation partielle et le déplacement vers le haut de 2 mm de la matrice. Cela permet de réduire l'écart entre les hauteurs optimales du feutre, qui deviennent respectivement de 16, 18 et 20 mm pour les lignes centrale, inférieure et supérieure. De plus, une meilleure homogénéisation de la température dans l'échantillon est obtenue par rapport aux autres configurations considérées, comme on peut le voir sur la figure (3.18) pour une valeur intermédiaire H_f = 18 mm. En particulier, la différence de température maximale dans l'échantillon diminue de 29 °C pour l'isolation totale à 5 °C dans la configuration optimale (PI1, d^+ = 2 mm). Il est à noter que dans ce dernier cas, l'asymétrie axiale du champ de température est presque supprimée (Fig. 3.18f) et la différence de

température axiale maximale $\Delta T_{max,35}$, devient négligeable (~ 2 °C). De plus, la distribution de température est presque homogène dans la zone autour de l'échantillon et aux alentours de la température de consigne (1300 °C).



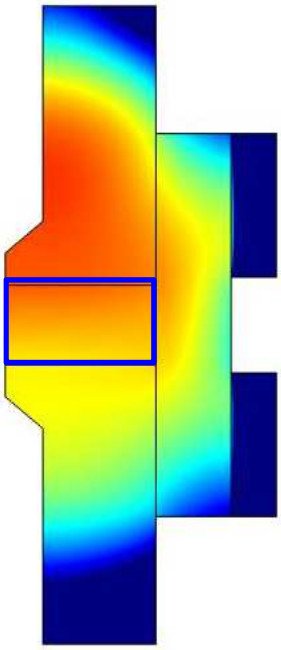
Sans isolation

$\Delta T_{max,35}$ = 14 °C, ΔT_{max}= 27 °C



Isolation totale

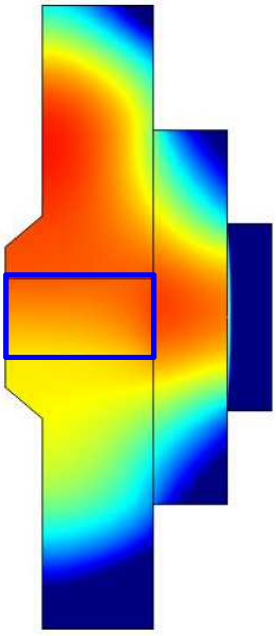
$\Delta T_{max,35}$ = 16 °C, ΔT_{max}= 29 °C



Isolation partielle, PI2

H_f = 36 mm

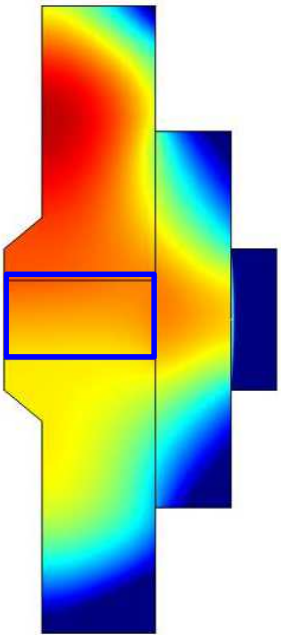
$\Delta T_{max,35}$ = 15 °C, ΔT_{max}= 15 °C



Isolation partielle, PI1

H_f = 24 mm

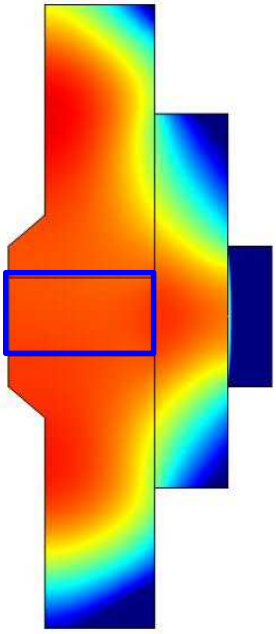
$\Delta T_{max,35}$ = 15 °C, ΔT_{max}= 16 °C



Isolation partielle, PI1

H_f = 18 mm

$\Delta T_{max,35}$ = 14 °C, ΔT_{max}= 15 °C



Isolation partielle, PI1

H_f = 18 mm

Déplacement vers le haut de la matrice,

d^+ = 2 mm

$\Delta T_{max,35}$ = 2 °C, ΔT_{max}= 5 °C

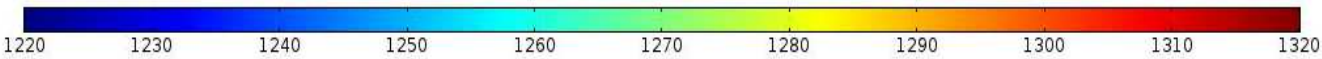


Fig. 3.18 : Comparaison des champs de température pour différentes configurations d'isolation de la matrice. $\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$ est la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon et $\Delta T_{max,35}$ est la différence de température maximale au long de la ligne centrale axiale 3–5.

2.3.2-Influence du diamètre de l'échantillon

On peut voir sur les courbes de la figure (3.19) que la hauteur optimale du feutre dépend des diamètres de l'échantillon et de l'épaisseur de la matrice (th = 10, 15 mm) dans le cas d'un échantillon de 10 mm d'épaisseur. Trois valeurs optimales de H_f = 16, 18 et 24 mm ont été obtenues, correspondant respectivement aux configurations ϕ40, 60 et 80 mm. Cependant, on ne peut pas faire une comparaison directe car les dimensions de l'outillage (pistons, matrice et spacers) composant les configurations ϕ60 et ϕ80 sont grandes par rapport à la configuration ϕ40. De plus, les spacers dans la configuration ϕ80 ont une forme cylindrique.

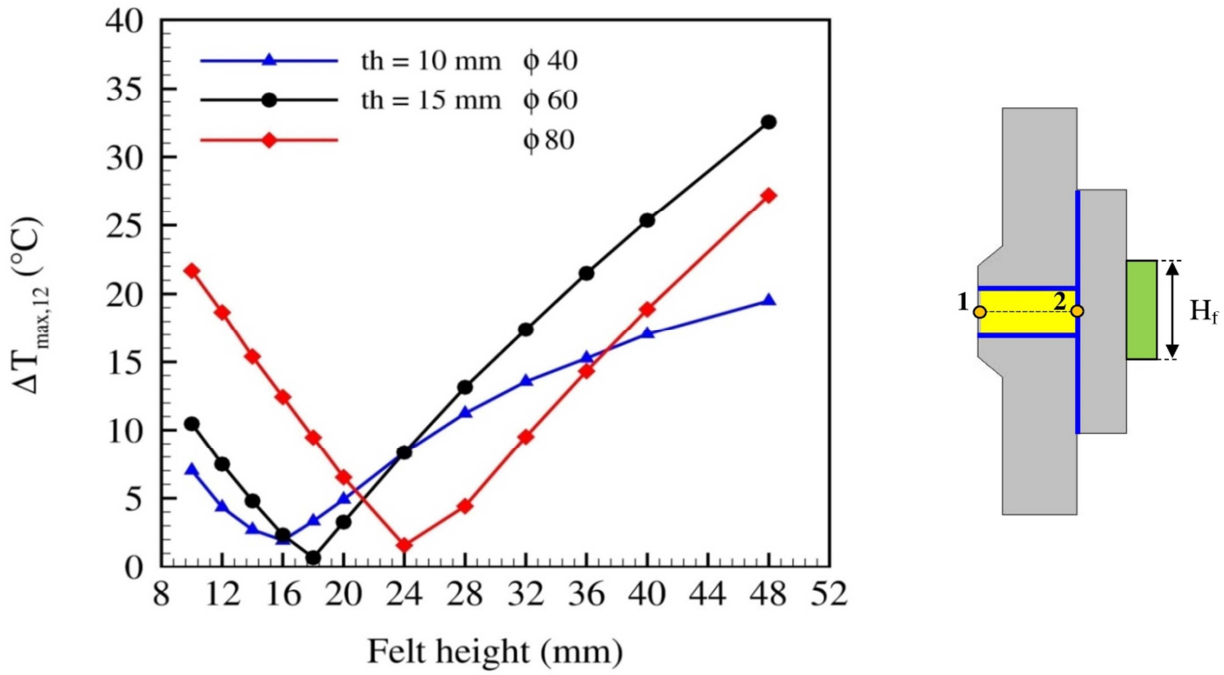


Fig. 3.19 : Effet de la hauteur du feutre sur la différence de température maximale au long de la ligne centrale radiale (1-2) pour différents diamètres de l'échantillon et différentes épaisseurs de la matrice.

3-Application à une pièce en forme de T

En général, le frittage de formes complexes est problématique à cause des hétérogénéités en densité qui peuvent apparaître lors de la compaction et qui proviennent de la distribution de la température et des contraintes dans la poudre compactée. Dans le cas d'une pièce avec une géométrie bi-niveau en forme de T, différentes approches ont été proposées en modifiant le design de la partie utile du système SPS (pistons-matrice). Une première approche (configuration (a), Fig. 3.20) consiste à augmenter le diamètre de la partie inférieure de la matrice et de réduire celui du piston inférieur [Matsugi 2003b]. Une seconde approche (configuration (b), Fig. 3.20) consiste à modifier la géométrie du piston inférieur pour l'adapter à la forme de l'échantillon [Mondalek 2011]. Cependant, des gradients thermiques importants ont été prévus par simulation dans les deux configurations et sont particulièrement, allant jusqu'à 200 °C dans le cas d'une pièce en titane frittée dans la configuration (a) [Matsugi 2003b] compte tenu de la dissymétrie géométrique des pistons et de la matrice. En outre, le piston inférieur présentant une section réduite génère une plus grande résistance électrique que son homologue supérieur, donc les plus hautes températures sont atteintes dans le piston inférieur et le flux de chaleur provient principalement de celui-ci vers l'échantillon et la matrice.

L'effet de l'isolation thermique sur le frittage de pièces en forme T, n'a pas été étudié. Dans cette partie, nous proposons de le faire en utilisant le modèle développé dans le cas de l'alumine frittée à 1300 °C en considérant les deux configurations (a) et (b) définies ci-dessus et en proposant une nouvelle configuration (c) (Fig. 3.20c). Cette dernière consiste à utiliser un anneau en graphite autour de la partie inférieure de l'échantillon. Cette configuration aurait pour avantage d'utiliser le même outillage (matrice et piston) qu'une pièce cylindrique en adaptant les dimensions de l'anneau au diamètre inférieur de la pièce à fritter. Des simulations ont été faites en considérant une pièce d'épaisseur finale 10 mm avec des diamètres supérieur et inférieur respectivement 40 et 20 mm (Fig. 3.20d).

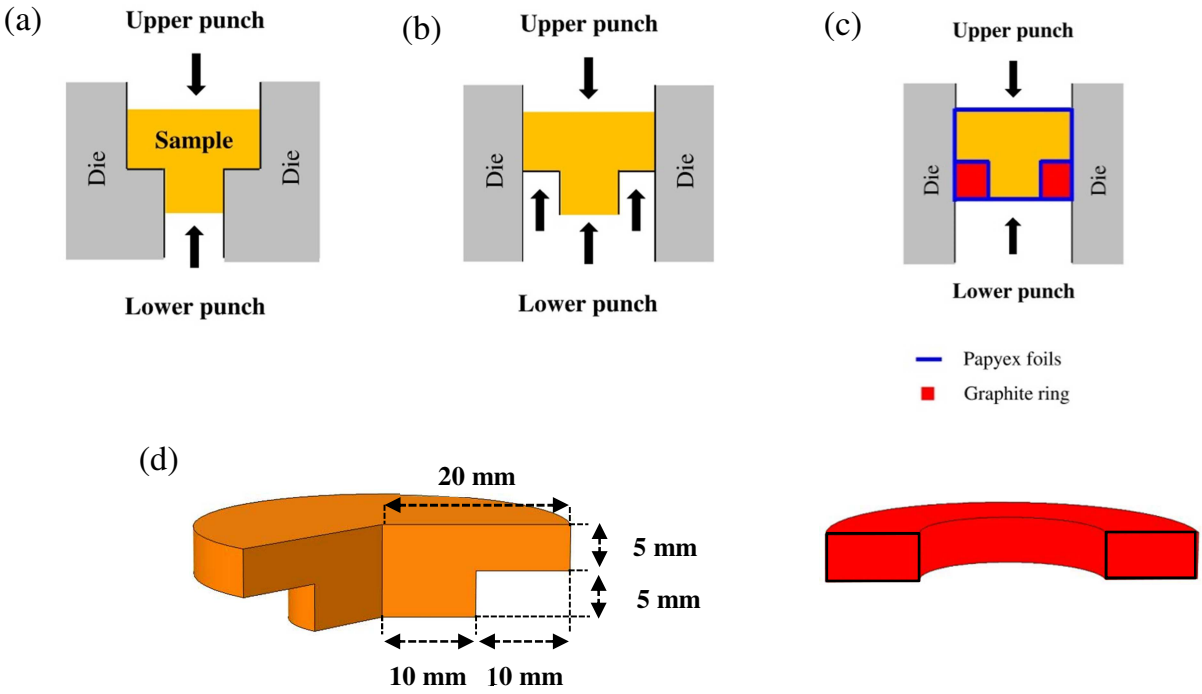


Fig. 3.20 : Configurations considérés pour le frittage d'une pièce en forme T. (a) [Matsugi 2003b], (b) [Mondalek 2011], (c) configuration proposée avec anneau en graphite (d) dimensions finales considérées.

Le tableau (3.4) regroupe les différences maximales de températures relevées dans l'échantillon pour les différentes configurations (a), (b) et (c) avec ou sans isolation thermique. Les résultats confirment le gradient important (> 200 °C) dans le cas de la configuration (a). Les configurations (b) et (c) sont sensiblement équivalentes et donnent lieu des gradients thermiques équivalents à ceux obtenus pour une pièce cylindrique, avec une influence positive d'une isolation totale de la matrice (réduction du gradient).

Tableau 3.4 : Différence maximale de température dans la pièce en forme T dans le cas de différentes configurations (a), (b) et (c) avec ou sans isolation thermique.

	ΔT_{max} dans l'échantillon/°C		
Matrice	**Configuration (a)**	**Configuration (b)**	**Configuration (c)**
Sans isolation	252	28	26
Isolation totale, H_f = 48 mm	216	17	18
Isolation partielle	-	3 (H_f = 20 mm)	4 (H_f = 18 mm)

Nous avons étudié l'effet d'une isolation partielle dans le cas des configurations (b) et (c). A partir des cartographies représentées dans la figure (3.21), on peut voir qu'une isolation partielle avec une hauteur optimale d'environ 20 mm (Tableau 3.4) permet d'homogénéiser la distribution de température dans l'échantillon en forme de T, comme c'est le cas pour une pièce cylindrique de diamètre constant. Il reste cependant à confirmer l'intérêt d'utiliser un anneau amovible (configuration (c)) en intégrant la densification (retrait) lors du frittage dans le modèle.

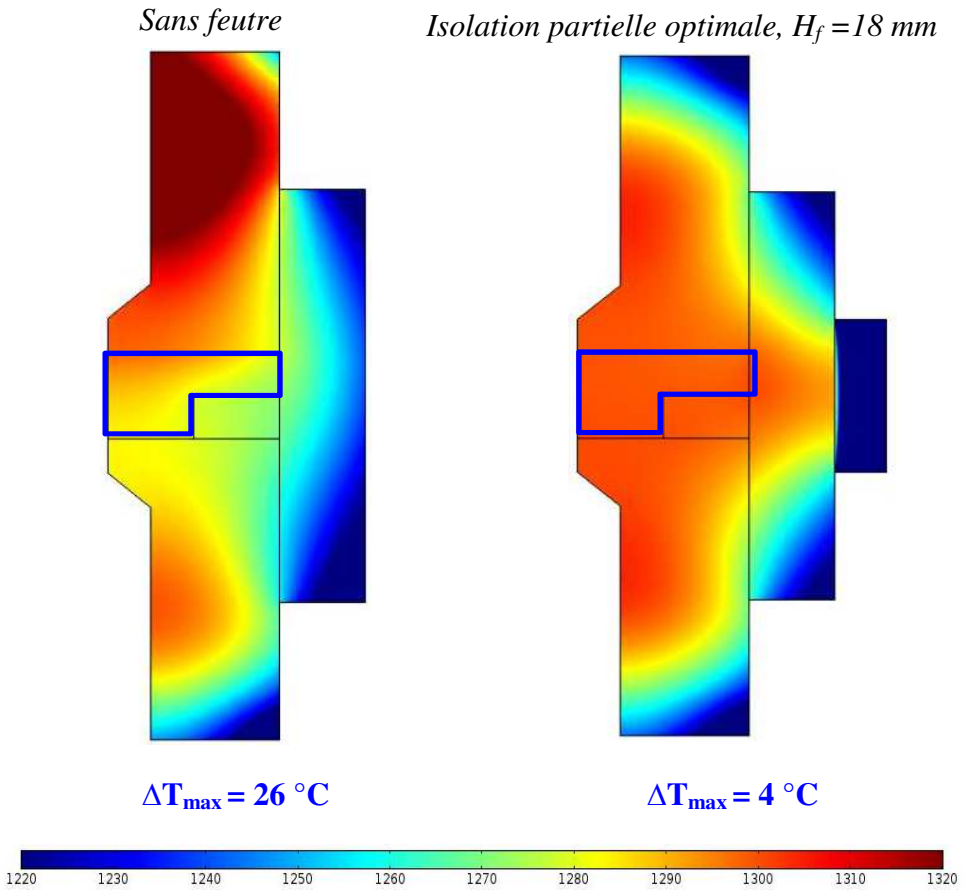


Fig. 3.21 : Distribution de température dans le cas de la configuration (c) avec ou sans isolation. $\Delta T_{max} = T_{max} - T_{min}$ est la différence de température maximale à l'intérieur de l'échantillon.

Conclusions

Des simulations de la distribution de la température au cours du frittage SPS de l'alumine ont été effectuées en utilisant un modèle en éléments finis dont les paramètres ont

été ajustés pour reproduire fidèlement les mesures de température expérimentales. En particulier, l'asymétrie axiale du système a été prise en compte en considérant des conditions aux limites thermiques asymétriques. En plus des gradients de température radiaux, des gradients axiaux avec une distribution de température axiale asymétrique apparaissent dans l'échantillon.

La forme du piston, les dimensions de l'échantillon, la température de frittage, le décentrage de la matrice et l'isolation thermique sont des paramètres qui influencent fortement l'homogénéité de la température à l'intérieur de l'échantillon. Il ressort des résultats obtenus dans cette étude que l'augmentation des dimensions de l'échantillon et de la température de frittage augmente le gradient de température radial. Elle montre également que le gradient axial augmente avec les dimensions de l'échantillon et devient proche de celui de la direction radiale dans le cas des échantillons de grandes épaisseurs.

Un décentrage de la matrice par rapport à l'échantillon peut accentuer le gradient thermique axial. Cependant, les simulations montrent qu'un déplacement contrôlé de la matrice vers le haut, peut être utilisé pour contrebalancer l'effet asymétrique du refroidissement et obtenir une distribution plus homogène de la température axiale et des valeurs proche de la consigne.

Une isolation partielle de la matrice avec une hauteur optimale a permis de minimiser la distribution radiale de la température, avec peu d'incidence sur le gradient thermique axial.

Enfin, les simulations montrent que l'homogénéisation de la température dans l'échantillon peut être améliorée en combinant un déplacement contrôlé de la matrice avec une isolation partielle optimale, qui influencent séparément les gradients thermiques axiaux et radiaux engendrés dans l'échantillon.

Chapitre 4

Simulation de la dispersion de la température lors du frittage SPS : influence de la procédure expérimentale

Lors d'un frittage SPS, le contrôle de la température de l'échantillon est difficile en raison de l'environnement expérimental ainsi que du grand nombre de paramètres impliqués. En plus des gradients de température dans l'échantillon, une dispersion de la température de contrôle, liée aux instruments de mesure ou à la procédure expérimentale peut se produire. Cette dispersion a rarement été évoquée dans la littérature malgré son impact sur la reproductibilité des conditions de frittage et, par conséquent, sur la fiabilité des matériaux frittés. Dans ce chapitre, nous utilisons la modélisation par éléments finis pour évaluer l'impact de deux sources potentielles d'erreurs qui peuvent engendrer des dispersions de température au niveau de l'échantillon, à savoir : un désalignement du pyromètre axial et un décalage de la matrice par rapport à l'échantillon. Les résultats de cette partie ont été publiés dans le Journal **Ceramics International** [Achenani 2017b].

1-Procédure expérimentale et dispersion des températures

En suivant la procédure décrite dans le chapitre 2 (cf. § 5), des échantillons ont été frittés avec une épaisseur finale de 2,5 mm et deux diamètres différents, ϕ, de 20 et 40 mm. Le même cycle de frittage (montée à 100°C/min jusqu'à 1300 °C maintenue constante pendant 10 minutes) a été appliqué à tous les échantillons en contrôlant la consigne à l'aide du pyromètre axial. Le point de contrôle visé, A, est situé à 4 mm de la surface supérieure de l'échantillon (Fig. 4.1).

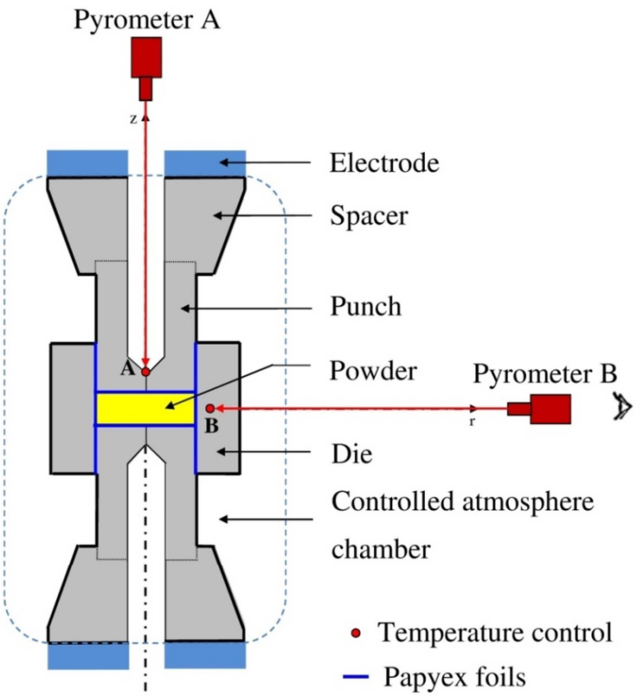


Fig. 4.1 : Schéma du dispositif SPS montrant l'emplacement des pyromètres axial et radial.

Pour chaque type d'échantillon, les expériences ont été répétées dans les mêmes conditions et la température, T_B, a été mesurée au point de contrôle B, au palier du cycle de frittage, une fois l'équilibre (de la température et de la position de la matrice) atteint. Les températures mesurées ainsi que leurs écarts par rapport à la température de consigne (T_S = 1300 °C) sont reportés dans le Tableau (4.1). Nous pouvons y voir que la température enregistrée T_B est toujours inférieure à la température de consigne et varie d'une expérience à l'autre, ce qui reflète l'incertitude des températures réellement imposées.

Tableau 4.1 : Températures enregistrées à la position B, T_B, et leurs déviation par rapport à la consigne au palier du cycle de frittage (T_S = 1300 °C).

Diamètre de l'échantillon, ϕ (mm)	**T_B (°C)**	**T_S–T_B (°C)**
20	1282	18
	1273	27
	1268	32
40	1283	17
	1272	28

Dans la suite, nous utiliserons la modélisation par éléments finis pour analyser la dispersion de la température en considérant deux sources potentielles d'erreurs : un désalignement du faisceau laser émis du pyromètre axial et un décalage de la matrice par rapport aux pistons.

2-Modélisation de la dispersion de température

Le modèle éléments finis construit (cf. chap. 2) a été utilisé pour simuler la dispersion de température qui peut être induite en considérant deux sources potentielles d'erreur : un désalignement du pyromètre axial ou un décalage de la matrice par rapport à l'échantillon. Dans le chapitre précédent, il a été montré que la dissymétrie des conditions de refroidissement engendre un gradient de température axial dans l'échantillon. Pour des raisons de simplicité, nous considérons dans cette partie, des conditions aux limites thermiques symétriques sur les surfaces horizontales supérieure et inférieure du système SPS (Fig. 4.2). Deux valeurs du coefficient d'échange convectif, h_c = 2516 et 2445 W/m^2 °C ont été utilisées respectivement pour les diamètres ϕ20 mm et ϕ40 mm pour assurer le refroidissement symétrique qui correspond à la température du spacer du bas mesurée (492 °C et 700 °C respectivement pour ϕ20 mm et ϕ40 mm) à l'aide d'un thermocouple lors des expériences SPS.

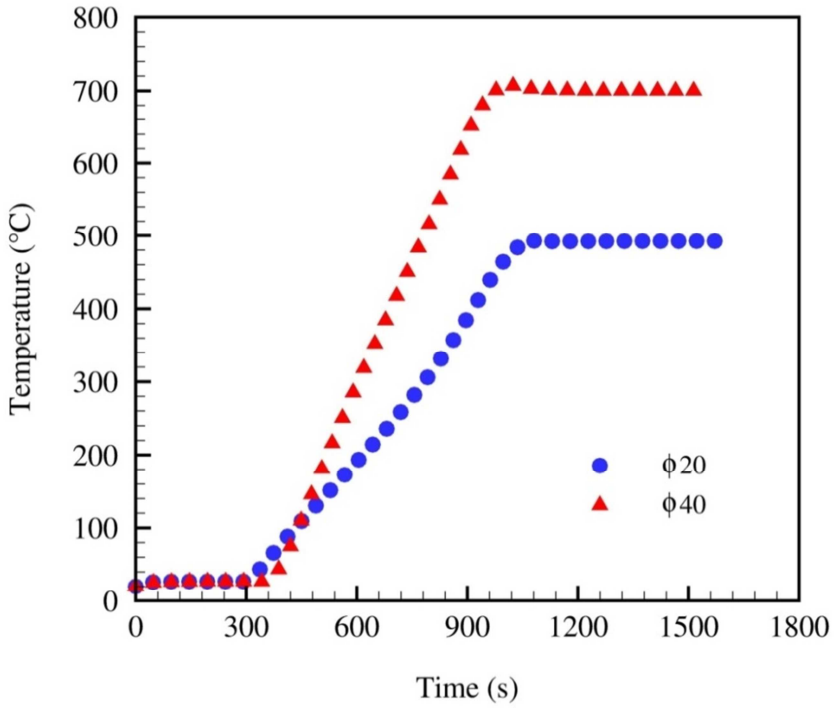


Fig. 4.2 : Cycle thermique utilisé pour le refroidissement symétrique pour les deux diamètres ϕ20 mm et ϕ40 mm.

Différentes positions (1 à 6) définies dans la figure (4.3) ont été utilisées pour discuter l'influence de la dispersion sur la distribution de la température dans l'échantillon. Les différences de température radiales ou axiales, $\Delta T_{ij} = T_i - T_j$, sont déterminées au palier du cycle de frittage, entre les différents points de l'échantillon i et j (avec i et j varient de 1 à 6 dans l'échantillon, $i \neq j$, entiers naturels).

2.1-Effet d'un désalignement du pyromètre axial

L'alignement du faisceau lumineux émis par le pyromètre axial utilisé pour réguler la température de frittage ne peut pas être rigoureusement contrôlé par l'utilisateur. Cela entraîne une incertitude sur la position du point de contrôle, où le cycle de frittage est imposé. Pour évaluer l'influence de cette incertitude, des simulations du champ de température ont été effectuées en considérant différentes positions du contrôle de la consigne sur la paroi interne du piston supérieur (Fig. 4.3) : le point visé A, choisi comme référence, et quatre positions notées A' ou A'' repérées par leur éloignement vertical, δ, du point A. Compte tenu de la distance entre le pyromètre et le point de contrôle visé, qui mesure ~ 1,10 m, la déviation

maximale considérée (δ = 10 mm) correspond à une rotation de 0,3° du faisceau laser (Fig.4.3).

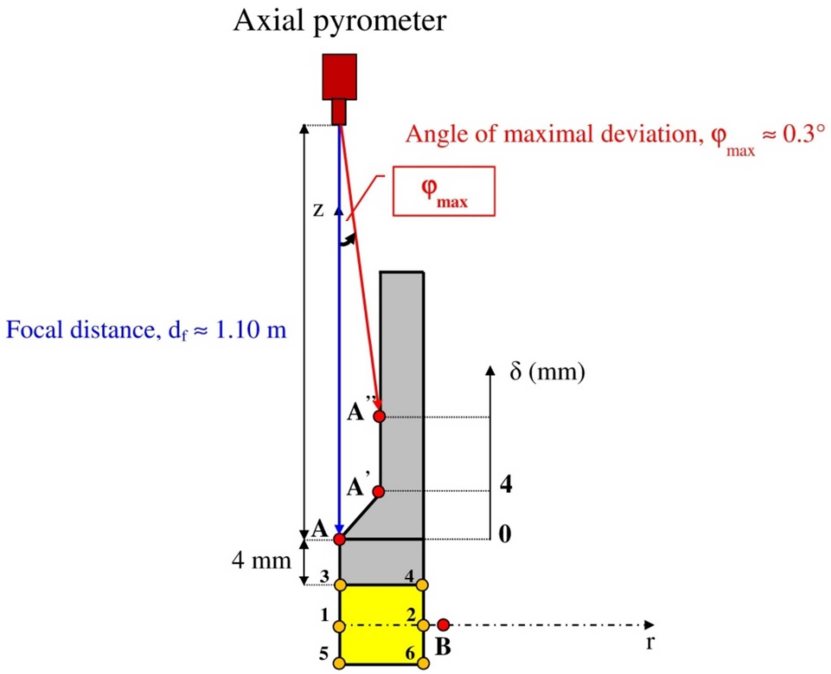


Fig. 4.3 : Points de régulation de température considérés dans les simulations (le point visé A, choisi comme référence, et quatre positions notées A' ou A'' définies par leur éloignement vertical, δ, du point A) et points de référence dans l'échantillon.

Dans les simulations effectuées, la position de contrôle médiane (point B) est fixée au milieu de la matrice supposée centrée par rapport à l'échantillon.

Les températures simulées à la position B sont représentées pour les échantillons de diamètre 20 mm et 40 mm sur la figure (4.4), où les valeurs mesurées sont également représentées par des flèches horizontales. On peut remarquer que pour les deux diamètres considérés, la valeur de la température simulée diminue lorsque le point de consigne de la température s'éloigne de la surface supérieure de l'échantillon (*i.e.* lorsque le déplacement vertical du point de contrôle, δ, augmente). Pour un déplacement, δ de 10 mm à partir du point de référence A, la déviation de température (par rapport à celle correspondant au point de référence) est de 12 °C dans le cas d'un échantillon de diamètre 40 mm et elle est significativement plus élevée (35 °C) pour le diamètre 20 mm.

Dans ce dernier cas, les valeurs mesurées de T_B (flèches horizontales en bleu sur la Fig. 4.4a) se situent dans l'intervalle des valeurs simulées, ce qui suggère que l'écart des mesures pourrait être attribué à un désalignement incontrôlé du pyromètre axial. Cependant, pour le diamètre ϕ40, une des températures mesurées est supérieure à la valeur maximale simulée, correspondant à la position de référence ($\delta = 0$). Malgré le manque de données expérimentales pour ce diamètre, cela suggère que d'autres sources d'erreur peuvent contribuer à la dispersion de la température.

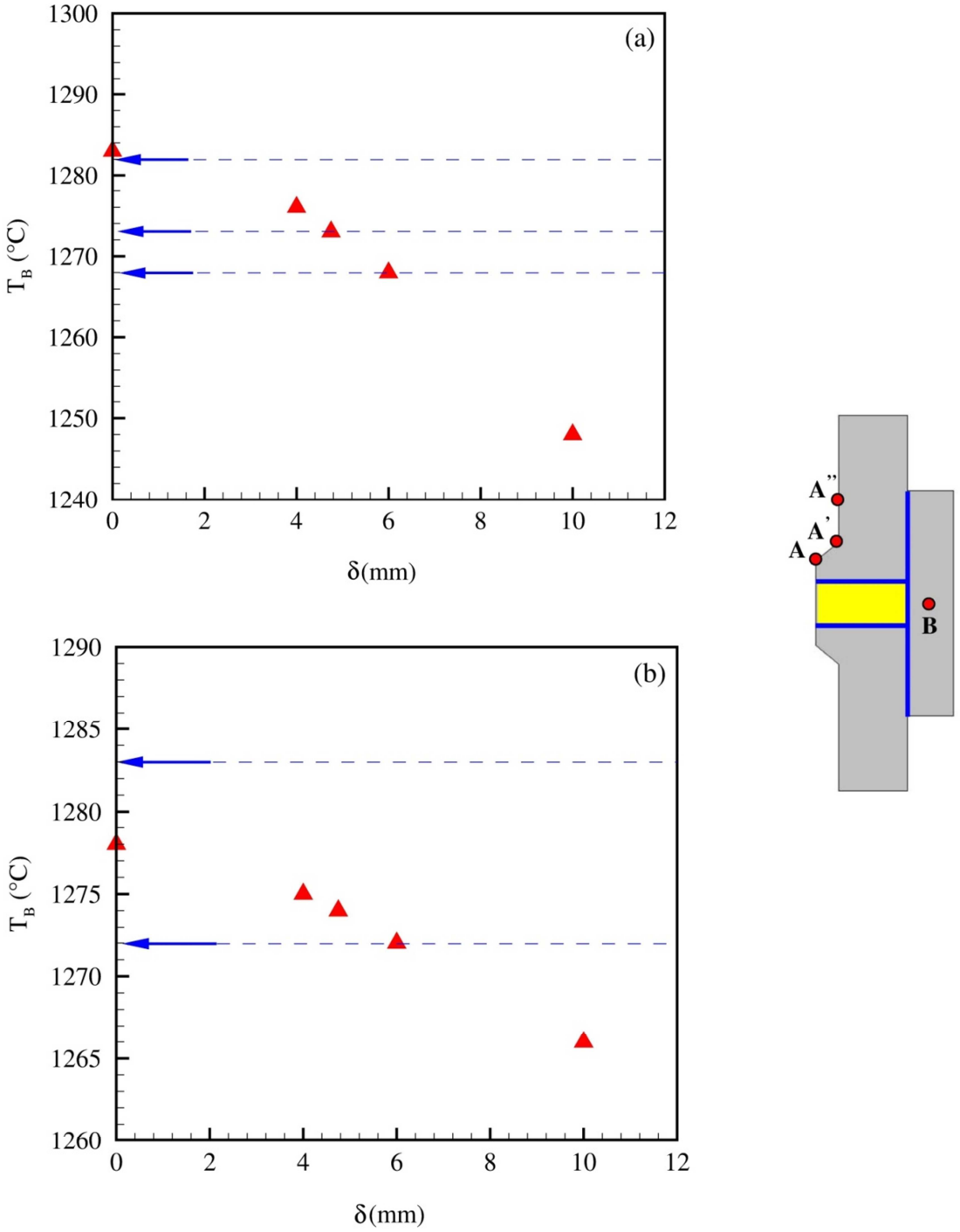


Fig. 4.4 : Influence d'un désalignement du pyromètre axial sur la déviation de température pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b). Les symboles correspondent aux températures simulées à la position B en fonction du déplacement, δ, du point de contrôle par rapport au point visé A. Les flèches horizontales correspondent aux températures expérimentales enregistrées par le pyromètre horizontal à la position B (Tableau 4.1).

2.2-Effet d'un décalage de la matrice

Un positionnement asymétrique des pistons dans la matrice peut se produire en raison du mouvement de la partie supérieure du montage expérimental pendant la densification de l'échantillon. Pour étudier l'influence de cette asymétrie sur la précision de la température de frittage, des simulations ont été effectuées en imposant la température de consigne (1300 °C) à la position de référence A, et en considérant différentes positions décentrées de la matrice, induites par des déplacements relatifs (de 1 à 5,5 mm) soit vers le bas soit vers le haut (Fig. 4.5).

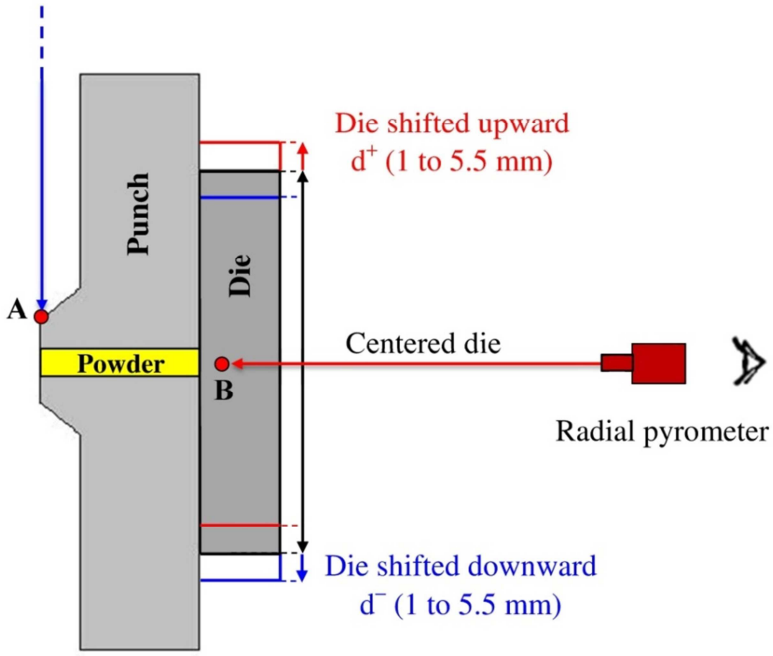


Fig. 4.5 : Décentrage de la matrice et différentes positions considérées.

La figure (4.6) montre la température simulée à la position B, en fonction du déplacement de la matrice. Par rapport à la position centrée (choisie comme référence), cette température augmente lorsque la matrice est décalée vers le haut et inversement, elle diminue pour un déplacement vers le bas. Dans la plage étudiée, la déviation de température simulée est du même ordre de grandeur pour les deux diamètres d'échantillon, avec une valeur plus élevée (jusqu'à 35 °C) pour un déplacement vers le bas comparé à un déplacement vers le haut (< 6 °C). Les températures mesurées (repérées par des flèches horizontales en bleu sur la figure) sont en accord avec les valeurs simulées, confirmant que le décalage de la matrice est une source potentielle d'erreur.

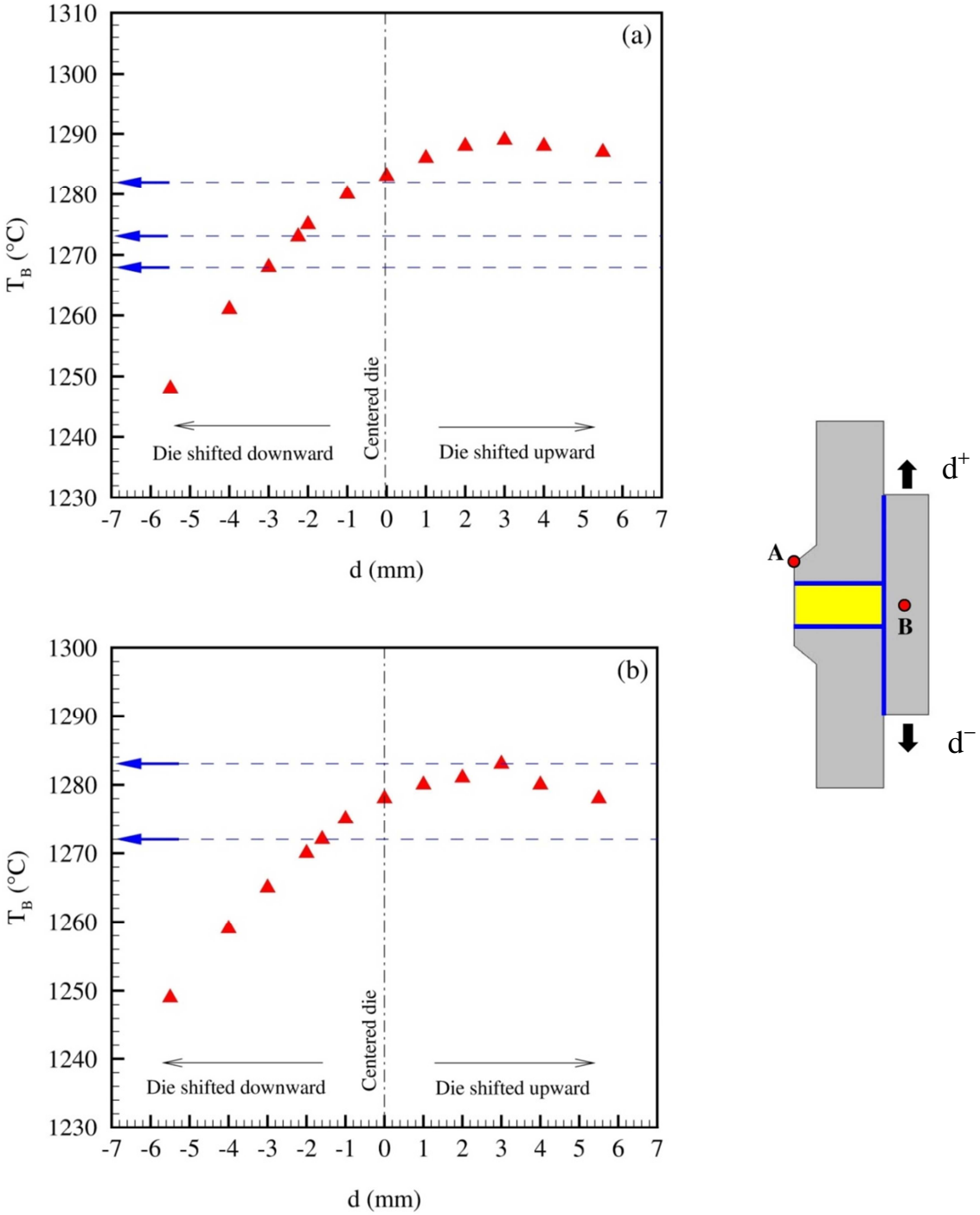


Fig. 4.6 : Effet d'un déplacement vers le bas ou vers le haut de la matrice sur la déviation de température à la position B pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b). Les symboles correspondent à des températures simulées à la position B (T_B) et les flèches horizontales correspondent aux températures expérimentales enregistrées à la même position (Tableau 4.1).

2.3-Effet de la dispersion sur la distribution de la température

Les résultats de la simulation montrent que la dispersion des mesures de température peut résulter aussi bien d'un désalignement du pyromètre axial que d'un décentrage de la matrice par rapport à l'échantillon. Dans les intervalles explorés, les deux sources d'erreur semblent induire des déviations de température comparables qui sont, cependant, sensibles au diamètre de l'échantillon dans le cas d'un désalignement du pyromètre. Ces déviations ont un impact direct sur la distribution de température dans l'outillage SPS et dans l'échantillon, comme on peut le voir sur les figures (4.7) et (4.8), où sont comparés les résultats des simulations relatives à différentes configurations respectivement pour les diamètres 20 mm et 40 mm : (a) configuration de référence correspondant au pyromètre aligné et à la matrice centrée, (b) désalignement maximal considéré pour le pyromètre (δ = 10 mm), (c) décalage de 3 mm vers le bas de la matrice et (d) erreurs cumulées en considérant le désalignement maximal du pyromètre et un décalage de 3 mm vers le bas de la matrice. Les deux types d'erreurs induisent des gradients axiaux par rapport à la configuration de référence (Fig. 4.7a et 4.8a). Selon le cas, les deux effets peuvent soit se compenser (pour un décalage vers le haut approprié) ou contraire s'additionner et engendrer une amplification des gradients de température axiaux (Fig. 4.7d et 4.8d).

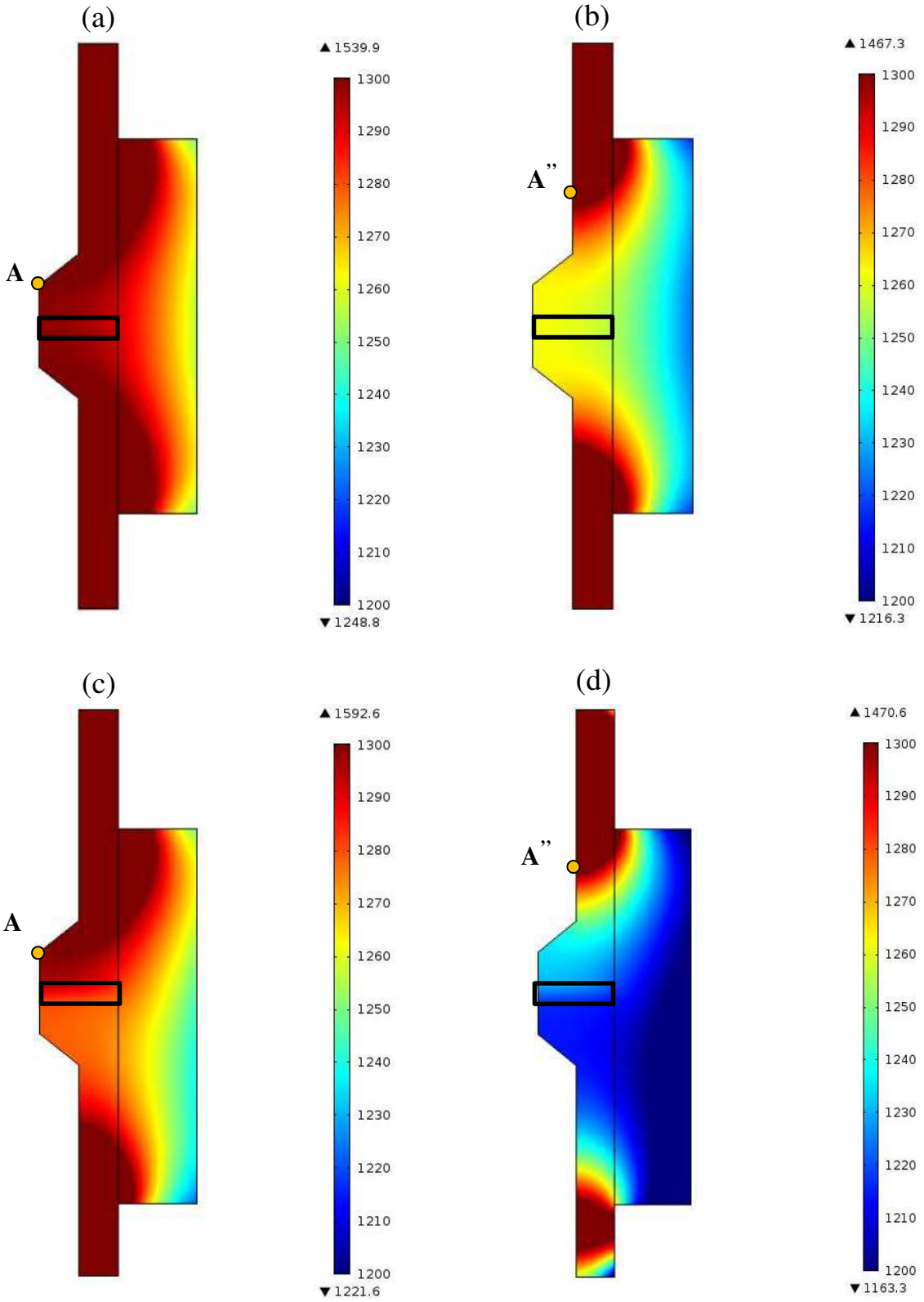


Fig. 4.7 : Comparaison des champs de température pour l'échantillon ϕ20 pour différentes configurations : (a) configuration de référence correspondant au pyromètre aligné et à la

matrice centrée, (b) désalignement maximal du pyromètre considéré (δ = 10 mm), (c) décalage de 3 mm vers le bas de la matrice et (d) erreurs cumulées des configurations (b) et (c).

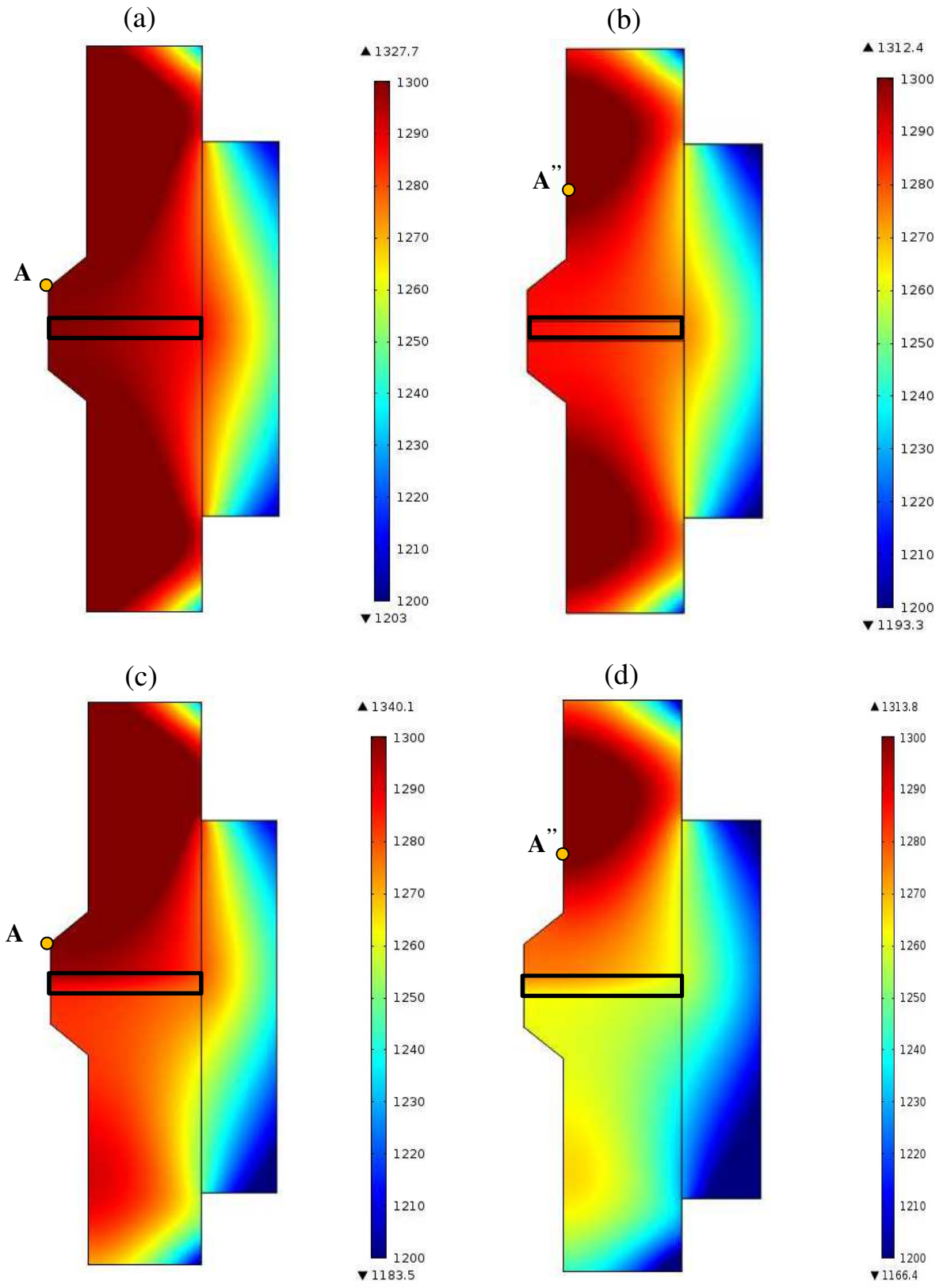


Fig. 4.8 : Comparaison des champs de température pour l'échantillon ϕ40 pour différentes configurations : (a) configuration de référence correspondant au pyromètre aligné et à la

matrice centrée, (b) désalignement maximal du pyromètre considéré (δ = 10 mm), (c) décalage de 3 mm vers le bas de la matrice et (d) erreurs cumulées des configurations (b) et (c).

2.4-Effet de la dispersion sur les gradients thermiques

Sur le tableau (4.2), nous avons regroupé la température au point A et les gradients thermiques calculés sur les lignes centrales médianes (1–2) et axiales (3–5) dans le cas des quatre configurations d'erreurs (a, b, c et d) de la figure (4.8). L'écart maximal de température ΔT_{max} y est également indiqué pour chaque configuration.

Tableau 4.2 : Température au point A et gradients thermiques radiaux et axiaux générés dans l'échantillon ϕ40 mm.

Configuration	T_A/°C	ΔT_{12}/°C	ΔT_{35}/°C	ΔT_{max}/°C
(a)	1299	14	-	14
(b)	1287	13	-	13
(c)	1299	14	13	22
(d)	1278	12	13	20

La figure (4.9) montre que le gradient thermique radial au long de la ligne médiane (1–2) de l'échantillon n'est pas influencé par le désalignement du pyromètre; il est de l'ordre de 8 °C et 13 °C respectivement pour les diamètres 20 mm et 40 mm. Cependant, le niveau de température diminue significativement lorsque le point de contrôle s'écarte de la position de référence visée. Cela est dû à la déviation par rapport à la température programmée (1300 °C), qui est du même ordre de grandeur que la déviation de température en position B, avec une influence similaire de la taille de l'échantillon. En effet, au centre de la surface supérieure de l'échantillon (position 3), la déviation par rapport à la température de consigne est négligeable pour le cas de référence (~ 1 °C) et augmente jusqu'à 13 °C ou 37 °C respectivement pour les diamètres ϕ40 mm ou ϕ20 mm, pour le désalignement maximal considéré. La même tendance est observée lorsque la matrice est déplacée vers le bas (Fig. 4.10) sans influence significative du diamètre de l'échantillon sur le profil radial de température.

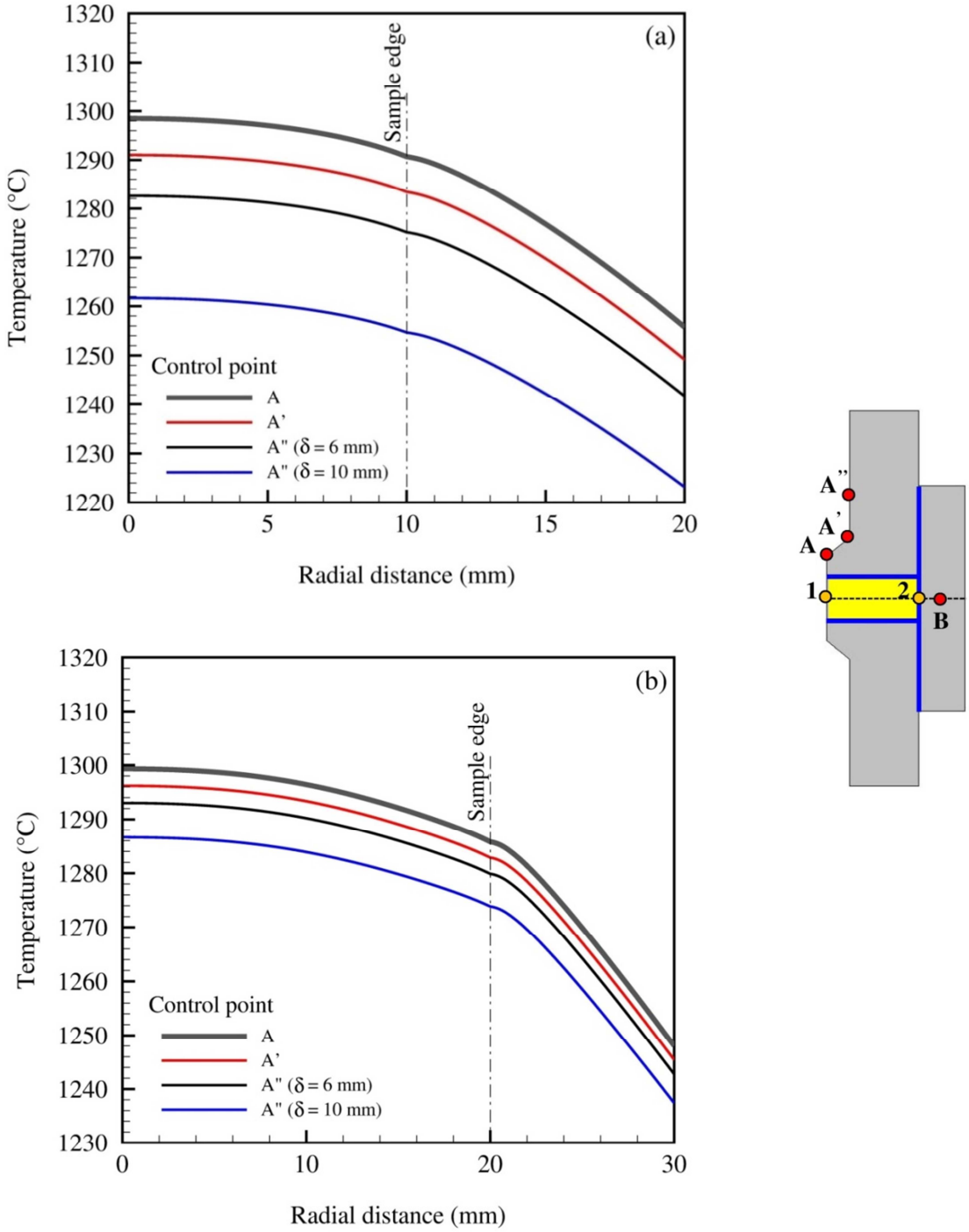


Fig. 4.9 : Influence d'un désalignement du pyromètre axial sur la distribution de température sur la ligne centrale radiale de l'échantillon (ligne 1–2) et dans la matrice, pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b).

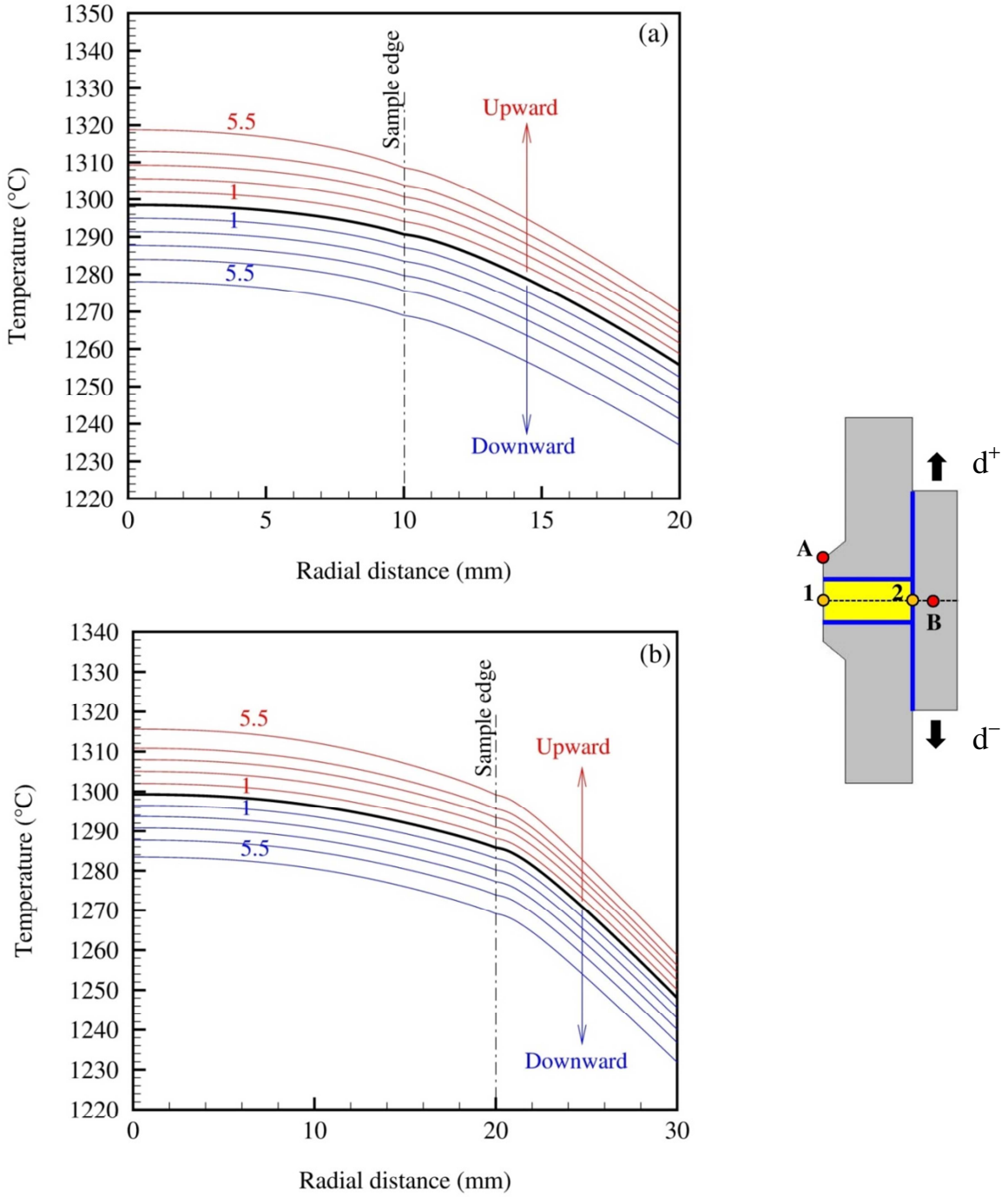


Fig. 4.10 : Influence d'un décalage de la matrice sur la distribution de température sur la ligne 1–2 et dans la matrice pour ϕ20 mm (a) et ϕ40 mm (b). La ligne en gras correspond à un emplacement centré, les lignes en couleur rouge et bleue correspondent respectivement aux déplacements vers le haut et vers le bas (1 à 5,5 mm).

Dans le cas d'un décalage de la matrice, la distribution axiale de la température devient asymétrique. A titre d'exemple, la figure (4.11) représente la distribution de la température sur la ligne centrale axiale de l'échantillon (3–5), pour un déplacement de la matrice de 3 mm. On peut y voir que la variation de température est quasi linéaire entre la surface supérieure (z = 1,25 mm) et inférieure (z = –1,25 mm), avec un écart de l'ordre de 15 °C.

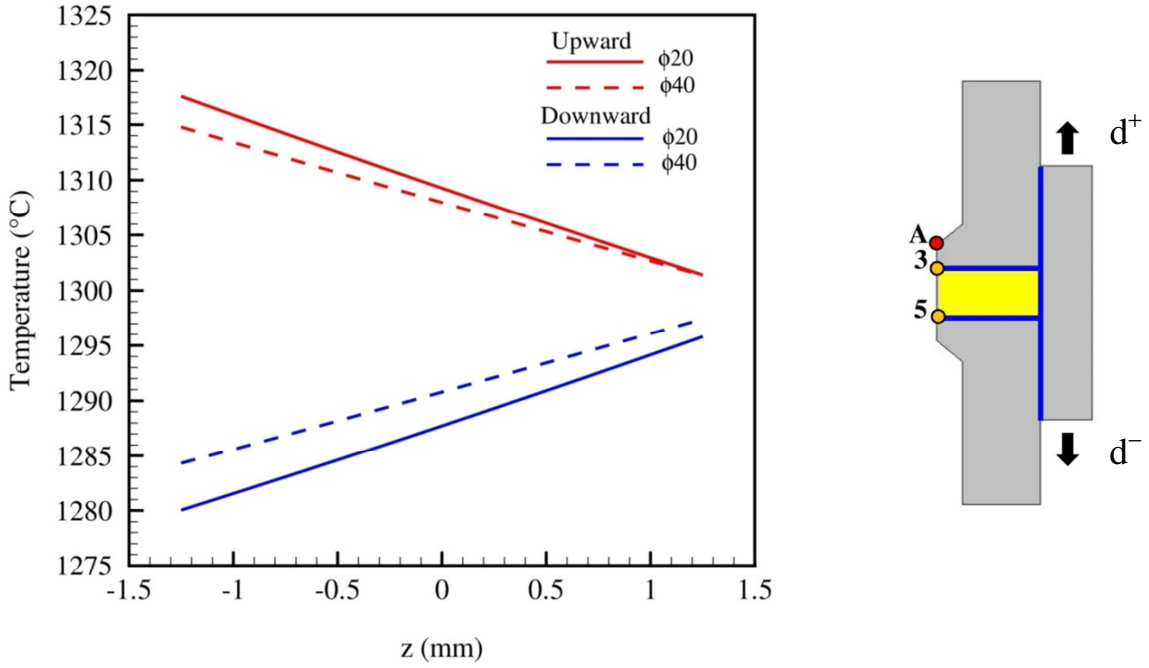


Fig. 4.11 : Distribution de la température sur la ligne centrale axiale de l'échantillon (3–5) pour un déplacement de la matrice de 3 mm vers le bas (d^-) ou vers le haut (d^+).

Dans le cas d'erreurs cumulées, la déviation par rapport à la température de consigne peut être sensiblement augmentée. Par exemple, dans le cas de la configuration (d), dont les distributions de température sont illustrées sur les figures (4.7d) et (4.8d), la déviation de température au centre de la surface supérieure de l'échantillon (point 3) augmente jusqu'à 31 °C pour ϕ40 mm et jusqu'à 68 °C pour ϕ20 mm.

Dans cette partie, nous avons considéré un refroidissement symétrique pour des raisons de simplicité. Dans la réalité, la dissymétrie de refroidissement inhérente au système SPS induit un gradient axial qui augmente avec l'épaisseur de l'échantillon (cf. chap. 3, § 3.2). Un décalage de la matrice est donc susceptible d'amplifier ce gradient. Par ailleurs, la symétrie azimutale considérée dans les présentes simulations ne pourrait plus être adéquate

dans le cas d'un désalignement important de pyromètre axial, ce qui induirait plus d'inhomogénéités de température dans l'échantillon.

3-Utilisation d'un pyromètre de régulation radiale

Une alternative au désalignement du pyromètre axial (déviation du point A visé) serait d'utiliser un pyromètre radial en imposant la consigne au point B situé sur la matrice. En effet, le diamètre du trou du guidage au niveau du pyromètre radial B est beaucoup plus faible (ϕ = 3 mm) que celui du pyromètre axial (ϕ = 10 mm). Des simulations ont été effectuées en considérant une régulation au point B dans le cas d'un piston creux (Fig. 4.12).

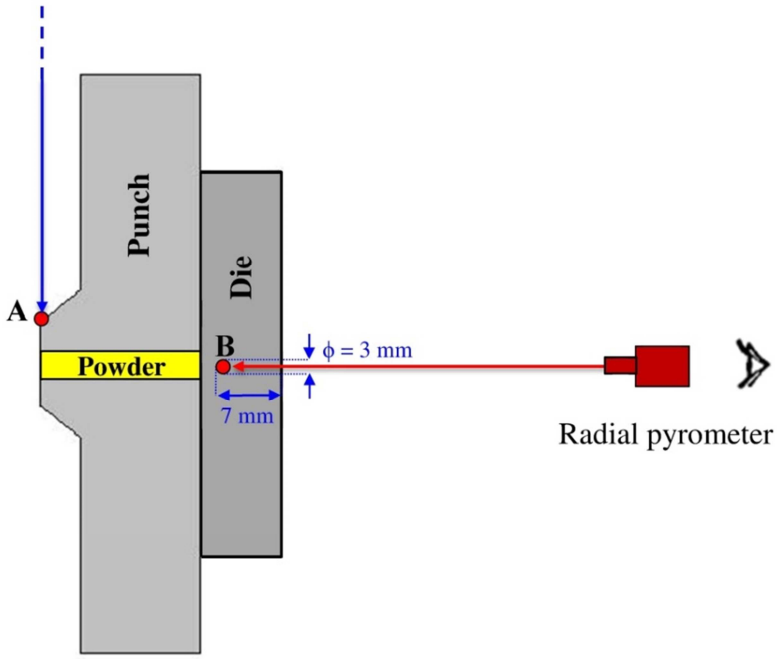


Fig. 4.12 : Points de régulation de température en utilisant un pyromètre axial (A) ou radial (B).

Les figures (4.13a) et (b) illustrent la différence entre une régulation de température utilisant le pyromètre axial (au point A) ou radial (au point B) On peut voir qu'avec une régulation au point A, la température au centre de l'échantillon est proche de la température de consigne (1300 °C) pour les deux diamètres ϕ20 et ϕ40 mm. Par contre, il y a eu un dépassement du point de consigne d'environ 17 °C pour ϕ20 (Fig. 4.13a) et 24 °C pour ϕ40 (Fig. 4.13b) lorsque la régulation de température a été faite au point B. Cela peut être dû aux valeurs importantes des conductivités thermique et électrique du papyex comme contact

vertical (propriétés dans la direction radiale) comparées à celle du contact horizontal (voir annexe). Par conséquent la diffusion de la chaleur et le passage du courant sont limités dans la direction axiale [Wolff 2011].

Le gradient thermique radial est presque le même pour les deux positions de régulation : de l'ordre de 8 °C dans le cas du diamètre ϕ20 mm et de 14 °C dans le cas du diamètre ϕ40 mm. Pour que la température au centre de l'échantillon reste au voisinage de 1300 °C, en assurant la régulation à partir du point B, il faut diminuer la consigne au point B : 1284 °C et 1278 °C respectivement pour les deux diamètres ϕ20 et ϕ40 mm. Cependant, comme on l'a vu précédemment (cf. chap. 3), un décalage incontrôlé de la matrice lors du positionnement ou de la densification de l'échantillon peut modifier la position du point B par rapport à l'échantillon et induire des gradients axiaux. Par ailleurs, dans le cas d'une régulation radiale au (point B) la distribution de température est fortement influencée par les résistances de contact et les propriétés électriques de l'échantillon [Vanmeensel 2005], ce qui explique l'utilisation dans la pratique de la régulation axiale (point A).

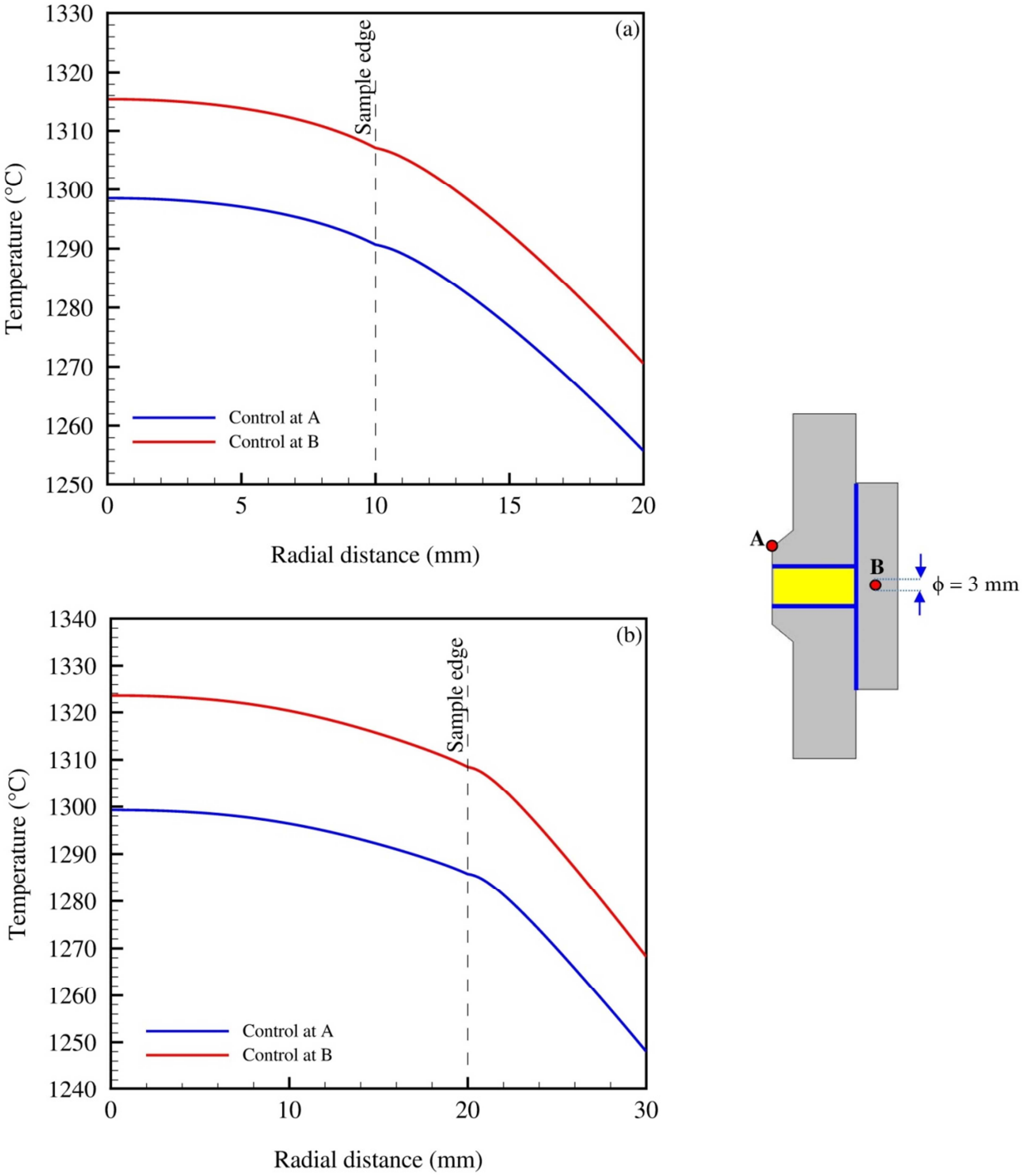


Fig. 4.13 : Effet du point de contrôle de la température sur le profil de température radiale (ligne 1–2) pour les échantillons ϕ20 (a) et ϕ40 (b) d'une épaisseur, th = 2,5 mm.

Conclusions

La modélisation MEF a permis d'évaluer les dispersions des températures induites par un désalignement du pyromètre axial ou par un décalage de la matrice par rapport à

l'échantillon. Les résultats montrent que les deux sources d'erreur induisent des déviations de température comparables qui sont, cependant, sensibles au diamètre de l'échantillon dans le cas du désalignement du pyromètre axial. Les erreurs n'ont pas d'influence significative sur la distribution de température radiale dans l'échantillon et la matrice. Cependant, ils modifient le niveau de température qui peut être considérablement dévié de la température de consigne dans le cas d'erreurs cumulées. Par ailleurs, il a été montré que des gradients axiaux peuvent être induits et s'ajouter à ceux dus à la dissymétrie du refroidissement inhérente au système SPS.

Par conséquent, une procédure expérimentale soigneusement contrôlée visant le suivi de l'évolution en temps réel des paramètres clés (température, courant électrique et pression) et les conditions de frittage (points de mesure de température, alignement de l'ensemble : échantillon/piston/matrice, emplacement des feuilles de contact, position des pistons et de la matrice avant et après frittage) est nécessaire pour éviter l'hétérogénéité thermique et la non reproductibilité des propriétés des matériaux, qui représentent un obstacle majeur pour exploiter pleinement les avantages uniques offerts par la technique SPS.

Conclusion générale et perspectives

Dans cette étude, des expériences standard de frittage SPS ont été réalisées, dans le cas de l'alumine, choisie comme modèle représentatif pour les matériaux non-conducteurs. Leurs résultats ont été utilisés pour développer un modèle par éléments finis basé sur le couplage thermoélectrique du frittage SPS. Le modèle numérique construit, validé expérimentalement, a été utilisé dans un premier temps, pour faire une étude paramétrique, afin d'analyser l'effet de plusieurs paramètres sur la distribution de température dans l'outillage SPS et dans l'échantillon, ceux qui sont relatifs soit à l'échantillon (dimensions et forme) soit à la procédure expérimentale (forme des pistons, feuilles de contact, température de frittage, emplacement de la matrice par rapport à l'échantillon, avec ou sans isolation thermique, et les points de contrôle de la température). Une attention particulière a été accordée à l'influence de certains paramètres expérimentaux qui sont évoqués mais rarement analysés dans la littérature, notamment la dissymétrie du refroidissement du système SPS et l'isolation thermique de la matrice.

Les principaux résultats peuvent être résumés comme suit :

- La précision des résultats numériques obtenus (température et courant électrique efficace) dépend des valeurs des résistances de contact entre les différents éléments constituant le dispositif SPS, de la dissymétrie du circuit de refroidissement et des propriétés du graphite, qui est dominant dans le montage expérimental SPS.
- L'augmentation des dimensions de l'échantillon et de la température de frittage amplifie le gradient de température radial.
- Le gradient axial augmente également avec les dimensions de l'échantillon et devient proche du celui de la direction radiale dans le cas d'échantillons de grandes dimensions.

- Le remplacement des feuilles de papyex par d'autres feuilles de contact telles que le molybdène et le tantale dans le contact horizontal (l'interface échantillon-piston) n'a pas d'effet sur la température mesurée au point B, ainsi que la distribution radiale de température dans l'échantillon.
- Une isolation thermique partielle de la matrice est plus efficace pour réduire le gradient de température radial que l'isolation totale couramment utilisée.
- Un déplacement contrôlé de la matrice réduit le gradient de température axial, et permettrait également d'élaborer des matériaux à gradient thermique axial contrôlé.
- La hauteur optimale du feutre dépend du diamètre de l'échantillon fritté et de l'épaisseur de la matrice utilisée.
- La dissymétrie géométrique de l'outillage SPS, en particulier les éléments entourant l'échantillon (pistons et matrice) a une forte influence sur la distribution de température et le gradient thermique engendré dans l'échantillon.

L'étude nous a permis de montrer qu'on peut réduire l'hétérogénéité thermique, dans le cas d'un échantillon de forme cylindrique, en combinant un décalage contrôlé de la matrice avec une isolation thermique partielle optimisée (hauteur optimale du feutre).

Dans un deuxième temps, le modèle numérique nous a permis d'identifier deux sources potentielles de la dispersion de la température incontrôlables par l'utilisateur lors des expériences SPS : un désalignement du pyromètre axial et un décentrage vertical de la matrice par rapport aux pistons. Les résultats montrent que les deux sources d'erreur induisent des déviations de température comparables qui sont, cependant, sensibles au diamètre de l'échantillon dans le cas du désalignement du pyromètre axial. Les erreurs n'ont pas d'effet significatif sur le gradient radial de température dans l'échantillon et la matrice. Cependant, ils modifient le niveau de température qui peut être considérablement dévié de la température de consigne dans le cas d'erreurs cumulées, ce qui pourrait entraîner un sous-frittage des matériaux. Par ailleurs, il a été montré que des gradients axiaux peuvent être induits et s'ajouter à ceux dus à la dissymétrie du refroidissement inhérente au système SPS. En outre, le décalage de la matrice peut fausser la mesure de température enregistrée par le pyromètre radial placé dans la matrice.

Les résultats montrent qu'une procédure expérimentale soigneusement contrôlée (suivi de tous les paramètres contrôlables, mesure correcte des températures, alignement de l'outillage, emplacement des feuilles de contact, position des pistons et de la matrice avant et après frittage) est nécessaire pour éviter l'hétérogénéité et la non reproductibilité des

propriétés, ce qui permettrait d'augmenter la fiabilité des matériaux frittés et à l'exploitation complète des performances du procédé SPS.

En perspective de cette étude, il serait intéressant de vérifier expérimentalement l'effet de l'isolation thermique partielle. Cela pourrait se faire avec des matériaux transparents dont les propriétés optiques sont très sensibles aux gradients thermiques. Par ailleurs, le modèle pourrait être étendu à d'autres types de matériaux de dimensions importantes, notamment le frittage d'une pièce en forme de T en intégrant les contraintes mécaniques et une loi de densification lors du frittage.

Références

[**Achenani 2017a]** Y. Achenani, M. Saâdaoui, A. Cheddadi, G. Bonnefont, G. Fantozzi, Finite element modeling of spark plasma sintering: Application to the reduction of temperature inhomogeneities, case of alumina, Mater. Des. 116 (2017) 504-514.

[**Achenani 2017b**] Y. Achenani, M. Saâdaoui, A. Cheddadi, G. Fantozzi, Finite element analysis of the temperature uncertainty during spark plasma sintering: Influence of the experimental procedure, Ceram. Inter. 43 (17) (2017) 15281-15287.

[**Agrawal 2006**] D. Agrawal, Microwave sintering of ceramics, composites and metallic materials, and melting of glasses, Trans. Indian Ceram. Soc. 65 [3] (2006) 129-144.

[**Allen 2012**] J.B. Allen, C. Walter, Numerical simulation of the temperature and stress field evolution applied to the field assisted sintering technique, ISRN Mater. Sci. -Hindawi Publishing Corporation 2012 (2012) 1-9.

[**Aman 2011**] Yann Aman, Spark plasma sintering mechanisms of alpha-alumina (α-Al_2O_3) nanopowders, Ph.D. Dissertation, Lyon University, INSA-Lyon, 2010, Lyon.

[**Anselmi-Tamburini 2004**] U. Anselmi-Tamburini, J.E. Garay, Z.A. Munir, Spark plasma sintering and characterization of bulk nanostructured fully stabilized zirconia: Part I. Densification studies, J. Mater. Res. 19 [11] (2004) 3255-3262.

[**Anselmi-Tamburini 2005**] U. Anselmi-Tamburini, S. Gennari, J.E. Garay, Z.A. Munir, Fundamental investigations on the spark plasma sintering/Synthesis Process II. Modeling of current and temperature distributions, Mater. Sci. Eng. A 394 [1-2] (2005) 139-148.

[**Antou 2009**] G. Antou, G. Mathieu, G. Trolliard, A. Maître, Spark plasma sintering of zirconium carbide and oxycarbide: Finite element modeling of current density, temperature, and stress distributions, J. Mater. Res. 24 [02] (2009) 404-412.

[**Belmonte 2009**] M. Belmonte, J.G. Julian, P. Miranzo, M.I. Osendi, Continuous in situ functionally graded silicon nitride materials, Acta Mater. 57 [9] (2009) 2607-2612.

[**Belmonte 2010**] M. Belmonte, J. González-Julián, P. Miranzo, M.I. Osendi, Spark plasma sintering: A powerful tool to develop new silicon nitride-based materials, J. Euro. Ceram. Soc. (2010) 2937-2946.

[**Bulat 2014**] L.P. Bulat, I.A. Nefedova, D.A. Pshenai-Severin, Targeted use of SPS method for improvement of thermoelectrics, Adv. Sci. Technol. 93 (2014) 168-173.

[**Bulat 2016**] L.P. Bulat, A.V. Novotel'nova, D.A. Pshenai-Severin, V.B. Osvenskii, A.I. Sorokin, A.V. Asach, A.S. Tukmakova, Temperature and current density Distributions at spark plasma sintering of inhomogeneous samples, Tech. Phys. 61 [1] (2016) 68-75.

[**Chen 2015**] F. Chen, S. Yang, J. Wu, J.A.G. Perez, Q. Shen, J.M. Schoenung, E.J. Lavernia, L. Zhang, Spark plasma sintering and densification mechanisms of conductive ceramics under coupled thermal/electric fields, J. Am. Ceram. Soc. 98 [8] (2015) 732-740.

[**Cincotti 2007**] A. Cincotti, A.M. Locci, R. Orrù, G. Cao, Modeling of SPS apparatus: Temperature, current and strain distribution with no powders, AIChE J. 53 [3] (2007) 703-719.

[**Cologna 2010**] M. Cologna, B. Rashkova, R. Raj, Flash sintering of nanograin zirconia in < 5 s at 850 °C, J. Am. Ceram. Soc. 93 [11] (2010) 3556-3559.

[**Cuccu 2015**] A. Cuccu, S. Montinaro, L. Desogus, R. Orrù, G. Cao, Optimization of the spark plasma sintering conditions for the consolidation of hydroxyapatite powders and characterization of the obtained products, Chem. Eng. Trans. 43 (2015) 1771-1776.

[**Cui 2016**] G. Cui, X. Wei, E.A. Olevsky, R.M. German, J. Chen, The manufacturing of high porosity iron with an ultra-fine microstructure via free pressureless spark plasma sintering, Materials 9 [6] 2016 495.

[**Dancer 2016**] C. Dancer, Flash sintering of ceramic materials, Mater. Res. Express 3 (2016) 102001 (25pp).

[**Decker 2017**] S. Decker, L. Krüger, Mechanical properties of a CrMnNi steel/Mg-PSZ-FGM processed by asymmetric spark plasma sintering, Mater. Des. 115 (2017) 8-16.

[**Demirskyi 2012**] D. Demirskyi, H. Borodianska, D. Agrawal, A. Ragulya, Y. Sakka, O. Vasylkiv, Peculiarities of the neck growth process during initial stage of spark-plasma, microwave and conventional sintering of WC spheres, J. Alloys Compd. (2012) 1-10.

[**FAST Ceramics**] http://www.fastceramics.com/innovative-research.html.

[**Garcia 2010**] C. Garcia, E. Olevsky, Numerical simulation of spark plasma sintering, Adv. Sci. Technol. 63 (2010) 58-61.

[**Giuntini 2013a**] D. Giuntini, E.A. Olevsky, C.G. Cardona, A.L. Maximenko, M.S. Yurlova, C.D. Haines, D.G. Martin, D. Kapoor, Localized overheating phenomena and optimization of spark-plasma sintering tooling design, Materials 6 [7] (2013) 2612-2632.

[**Giuntini 2013b**] D. Giuntini, X. Wei, A.L. Maximenko, L. Wei, A.M. Ilyina, E.A. Olevsky, Initial stage of free pressureless spark-plasma sintering of vanadium carbide: Determination of surface diffusion parameters, Int. J. Refract. Metals Hard Mater. 41 (2013) 501-506.

[**Giuntini 2015**] D. Giuntini, J. Räthel, M. Herrmann, A. Michaelis, E.A. Olevsky, Advancement of tooling for spark plasma sintering, J. Am. Ceram. Soc. 98 [11] (2015) 3529-3537.

[**Giuntini 2016**] D. Giuntini, J. Räthel, M. Herrmann, A. Michaelis, C.D. Haines, E. A. Olevsky, Spark plasma sintering novel tooling design: temperature uniformization during consolidation of silicon nitride powder, J. Ceram. Soci. Jpn. 124 [4] (2016) 403-414.

[**Govea-Alcaide 2014**] E. Govea-Alcaide, J.E. Pérez-Fernández, I.F. Machado, R.F. Jardim, The spatial distribution of temperature and oxygen deficiency in spark-plasma sintered superconducting Bi-based materials, Physica B 455 (2014) 35-38.

[**Grasso 2009a**] S. Grasso, Y. Sakka, G.Maizza, Electric current activated/assisted sintering (ECAS): A review of patents 1906-2008, Sci. Technol. Adv. Mater. 10 (2009) 053001 (24pp).

[**Grasso 2009b**] S. Grasso, Y. Sakka, G. Maizza, Pressure effects on temperature distribution during spark plasma sintering with graphite sample, Mater. Trans. JIM 50 [8] (2009) 2111-2114.

[**Grasso 2014**] S. Grasso, T. Saunders, H. Porwal, O. Cedillos-Barraza, D.D. Jayaseelan, W. E. Lee, M.J. Reece, Flash spark plasma sintering (FSPS) of pure ZrB_2, J. Am. Ceram. Soc. 97 [8] (2014) 2405-2408.

[**Grasso 2016**] S. Grasso, T. Saunders, H. Porwal, B. Milsom, A. Tudball, M. Reece, Flash spark plasma sintering (FSPS) of α and β SiC, J. Am. Ceram. Soc. 99 [5] (2016) 1534-1543.

[**Gremillard 2017**] L. Gremillard, K. Biotteau-Deheuvels, P. Clement, M. Perron, P. Duvauchelle, S. Meille, J. Chevalier, Modeling and in-situ evaluation of thermal gradients during sintering of large ceramic balls, Ceram. Int. 43 (2017) 7338-7345.

[**Gu 2015**] S. Gu, X. Zhang, L. Wang, X. Gan, Z. Shen, W. Jiang, Direct indication of a higher central temperature achieved during spark plasma sintering process of a Zeolite, J. Eur. Ceram. Soc. 35 [5] (2015) 1599-1603.

[**Guillon 2014**] O. Guillon, J.G. Julian, B. Dargatz, T. Kessel, G. Schierning, J. Räthel, M. Herrmann, Field-assisted sintering technology/spark plasma sintering: mechanisms, materials, and technology developments, Adv. Eng. Mater. 16 [7] (2014) 830-849.

[**Hu 2014**] L. Hu, A. Kothalkar, G. Proust, I. Karaman, M. Radovic, Fabrication and characterization of $NiTi/Ti_3SiC_2$ and $NiTi/Ti_2AlC$ composites, J. Alloys Compd. (2014) 635-644.

[**Hulbert 2008**] D.M. Hulbert, D. Jiang, U. Anselmi-Tamburini, C. Unuvar, A.K. Mukherjee, Experiments and modeling of spark plasma sintered, functionally graded boron carbide-aluminum composites, Mater. Sci. Eng. A (2008) 333-338.

[**Junting 2012**] L. Junting, S. Yan, Z. Chunxiang, Z. Zhiyong, Thermal-electrical coupled analysis and experimental investigation on spark plasma sintering of Sic ceramics, J. Wuhan Univ. Technol. -Mater. Sci. Ed. 27 [6] (2012) 1120-1124.

[**Langer 2011**] J. Langer, D.V. Quach, J.R. Groza, O. Guillon, A comparison between FAST and SPS apparatuses based on the sintering of oxide ceramics, Int. J. Appl. Ceram. Technol. 8 [6] (2011) 1459-1467.

[**Lee 2018**] G. Lee, E.A. Olevsky, C.Manière, A. Maximenko, O. Izhvanov, C. Back, J. McKittrick, Effect of electric current on densification behavior of conductive ceramic powders consolidated by spark plasma sintering, Acta Mater. 144 (2018) 524-533.

[**Li 2015**] D. Li, Z. Shen, Sintering by intense thermal radiation (SITR): A study of temperature distribution by simulation and experiments, J. Eur. Ceram. Soc. (2015) 3303-3309.

[**Maizza 2009**] G. Maizza, S. Grasso, Y. Sakka, Moving finite-element mesh model for aiding spark plasma sintering in current control mode of pure ultrafine WC powder, J. Mater. Sci. 44 [5] (2009) 1219-1236.

[**Mani 2015**] M.K. Mani, G. Viola, J.P. Hall, S. Grasso, M.J. Reece, Observation of curie transition during spark plasma sintering of ferromagnetic materials, J. Magn. Magn. Mater. 382 (2015) 202-205.

[**Manière 2015a**] Charles Manière, Spark plasma sintering: Couplage entre les approches modélisation, instrumentation et matériaux, Ph.D. Dissertation, Paul Sabatier Université-Toulouse III, 2015, Toulouse.

[**Manière 2015b**] C. Manière, A. Pavia, L. Durand, G. Chevallier, V. Bley, K. Afanga, A. Peigney, C. Estournès, Pulse Analysis and Electric Contact Measurements in Spark Plasma Sintering, Elec. Pow. Syst. Res. 127 (2015) 307-313.

[**Manière 2016a**] C. Manière, L. Durand, A. Weibel, G. Chevallier, C. Estournès, A sacrificial material approach for spark plasma sintering of complex shapes, Scripta Mater. 124 (2016) 126-128.

[**Manière 2016b**] C. Manière, A. Pavia, L. Durand, G. Chevallier, K. Afanga, C. Estournès, Finite-element modeling of the electro-thermal contacts in the spark plasma sintering process, J. Eur. Ceram. Soc. 36 [3] (2016) 741-748.

[**Manière 2017**] C. Manière, G. Lee, E.A. Olevsky, All-Materials-Inclusive Flash Spark Plasma Sintering, Sci. Rep. 7 (2017) 1-8.

[**Matsugi 2003a**] K. Matsugi, H. Kurumato, T. Hatayama and O. Yanagisawa, Temperature distribution at steady state under constant current discharge in spark sintering process of Ti and Al_2O_3 powders, J. Mater. Process. Technol. 134 (2003) 225-232.

[**Matsugi 2003b**] K. Matsugi, H. Kuramoto, O. Yanagisawa, M. Kiritani, A case study for production of perfectly sintered complex compacts in rapid consolidation by spark sintering, Mater. Sci. Eng. A 354 (2003) 234-242.

[**McKinnon 2017**] R. McKinnon, S. Grasso, A. Tudball, M.J. Reece, Flash spark plasma sintering of cold-pressed TiB_2-hBN, J. Eur. Ceram. Soc. 37 (2017) 2787-2794.

[**McWilliams 2006**] B. McWilliams, A. Zavaliangos, K.C. Cho, R. J. Dowding, The modeling of electric-current-assisted sintering to produce bulk nanocrystalline tungsten, JOM 58 [4] (2006) 67-71.

[**McWilliams 2008**] B. McWilliams, A. Zavaliangos, Multi-phenomena simulation of electric field assisted sintering, J. Mater. Sci. 43 [14] (2008) 5031-5035.

[**McWilliams 2008**] Brandon A. McWilliams, Numerical simulation of electric field assisted sintering, Ph.D. Dissertation, Drexel University, 2008, Philadelphia.

[**Molénat 2010**] G. Molénat, L. Durand, J. Galy, A. Couret, Temperature control in spark plasma sintering: An FEM approach, J. Metall. -Hindawi Publishing Corporation 2010 (2010) 1-9.

[**Mondalek 2011**] P. Mondalek, L. Silva, M. Bellet, A numerical model for powder densification by SPS technique, Adv. Eng. Mater. 13 [7] (2011) 587-593.

[**Morin 2016**] C. Morin, S. Le Gallet, M. Ariane, F. Bernard, Spark plasma sintering tool design for preparing alumina-based functionally graded materials, Ceram. Int. 42 [2] Part B (2016) 3056-3063.

[**Morita 2009**] K. Morita, B.N. Kim, H. Yoshida, K. Hiraga, Spark-plasma-sintering condition optimization for producing transparent $MgAl_2O_4$ spinel polycrystal, J. Am. Ceram. Soc. 92 [6] (2009) 1208-1216.

[**Muñoz 2010**] S. Muñoz, U. Anselmi-Tamburini, Temperature and stress fields evolution during spark plasma sintering processes, J. Mater. Sci. 45 [23] (2010) 6528-6539.

[**Muñoz 2013**] S. Muñoz, U. Anselmi-Tamburini, Parametric investigation of temperature distribution in field activated sintering apparatus, Int. J. Adv. Manuf. Technol. 65 [1] (2013) 127-140.

[**Naimi 2013**] Foad Naimi, Approches scientifiques et technologiques du frittage et de l'assemblage de materiaux metalliques par SPS, Ph.D. Dissertation, University of Burgundy, 2013, Dijon.

[**Olevsky 2018a**] E.A. Olevsky, D.V. Dudina, Chapter 5: Flash sintering, Book ''Field-Assisted Sintering: Science and Applications'', ISBN 978-3-319-76031-5, Published by Springer (2018), pp. 89-191.

[**Olevsky 2018b**] E.A. Olevsky, D.V. Dudina, Chapter 4: Sintering by low-voltage electric pulses (including Spark Plasma Sintering (SPS)), Book ''Field-Assisted Sintering: Science and Applications'', ISBN 978-3-319-76031-5, Published by Springer (2018), pp. 89-191.

[**Olevsky 2012**] E.A. Olevsky, W.L. Bradbury, C.D. Haines, D.G. Martin, D. Kapoor, Fundamental aspects of spark plasma sintering: II. Finite element analysis of scalability, J. Am. Ceram. Soc. 95 [8] (2012b) 2414-2422.

[**Orrù 2009**] R. Orrù, R. Licheri, A.M. Locci, A. Cincotti, G. Cao, Consolidation/synthesis of materials by electric current activated/assisted sintering, Mater. Sci. Eng. R 63 [4-6] (2009) 127-287.

[**Pavia 2013**] A. Pavia, L. Durand, F. Ajustron, V. Bley, G. Chevallier, A. Peigney, C. Estournès, Electro-thermal measurements and finite element method simulations of a spark plasma sintering device, J. Mater. Process. Technol. 213 [8] (2013) 1327-1336.

[**Raichenko 1989**] A. I. Raichenko, E. S. Chernikova, A mathematical model of electric heating of the porous medium using current supplying electrode/punches, Sov. Powder Metall. Met. Ceram. 28 [5] (1989) 365-371.

[**Räthel 2009**] J. Räthel, M. Hermann, W. Beckert, Temperature distribution for electrically conductive and non-conductive materials during field assisted sintering (FAST), J. Eur. Ceram. Soc. 29 [8] (2009) 1419-1425.

[**Réau 2008**] Adrien Réau, Élaboration de céramiques nanostructurées en carbure de silicium: de la synthèse de la poudre à la céramique frittée, Ph.D. Dissertation, Paris-Sud XI University, 2008, Paris.

[**Rothe 2014**] Steffen Rothe, Electro-thermo-mechanical modeling of field assisted sintering technology: Experiments, constitutive modeling and finite element analysis, Ph.D. Dissertation, Clausthal University of Technology, 2014, Clausthal-Zellerfeld.

[**Shen 2002**] Z. Shen, M. Johnsson, Z. Zhao, M. Nygren, Spark plasma sintering of alumina, J. Am. Ceram. Soc. 85 [8] (2002) 1921-27.

[**Song 2011a**] Y. Song, Y. Li, Z. Zhou, Y. Lai, Y. Ye, A multi-field coupled FEM model for one-step-forming process of spark plasma sintering considering local densification of powder material, J. Mater. Sci. 46 (2011) 5645-5656.

[**Song 2011b**] J. Song, K. Ma, Y. Li, L. Zhang, J.M. Schoenung, High temperature microstructure and microhardness evolution in dense NiCrAlY bulk material fabricated by spark plasma sintering, Mater. Sci. Eng. A 528 (2011) 3210-3217.

[**Suárez 2013**] M. Suárez, A. Fernández, J.L. Menéndez, R. Torrecillas, H.U. Kessel, J. Hennicke, R. Kirchner, T. Kessel, Chapter 13: Challenges and opportunities for spark plasma sintering: A key technology for a new generation of materials, Book ‘‘Sintering Applications’’, Edited by Burcu Ertuğ, ISBN 978-953-51-0974-7, Published by InTech, (2013), pp. 319-342.

[**Tatarko 2017**] P. Tatarko, S. Grasso, T.G. Saunders, V. Casalegno, M. Ferraris, M.J. Reece, Flash joining of CVD-SiC coated C_f/SiC composites with a Ti interlayer, J. Euro. Ceram. Soc. 37 (2017) 3841-3848.

[**Tiwari 2009**] D. Tiwari, B. Basu, K. Biswas, Simulation of thermal and electric field evolution during spark plasma sintering, Ceram. Int. 35 [2] (2009) 699-708.

[**Todd 2017**] R.I. Todd, Chapter: Flash sintering of ceramics: A short review, Book ‘‘Proceedings of the IV advanced ceramics and applications conference’’, Edited by Bill Lee, Rainer Gadow, Vojislav Mitic, ISBN 978-94-6239-212-0/978-94-6239-213-7, Published by Atlantis Press, (2017), pp.1-12.

[**Vanherck 2015**] T. Vanherck, J. Lobry, G. Jean, M. Gonon, F. Cambier, Spark Plasma Sintering: Homogenization of the compact temperature field for non conductive materials, Int. J. Appl. Ceram. Technol. 12 [S2] (2015) E1-E12.

[**Vanmeensel 2005**] K. Vanmeensel, A. Laptev, J. Hennicke, J. Vleugels, O. Van der Biest, Modelling of the temperature distribution during field assisted sintering, Acta Mater. 53 [16] (2005) 4379-4388.

[**Vanmeensel 2007**] K. Vanmeensel, A. Laptev, O. Van der Biest, J. Vleugels, The influence of percolation during pulsed electric current sintering of ZrO_2-TiN powder compacts with varying TiN content, Acta Mater. 55 (2007) 1801-1811.

[**Voisin 2013**] T. Voisin, L. Durand, N. Karnatak, S. Le Gallet, M. Thomas, Y. Le Berre, J.F. Castagne, A. Couret, Temperature control during spark plasma sintering and application to up-scaling and complex shaping, J. Mater. Process. Technol. 213 (2013) 269-278.

[**Wang 2003**] Y.C. Wang, Z.Y. Fu, W.M. Wang, Numerical simulation of the temperature field in sintering of BN by SPS, Key Eng. Mater. 249 (2003) 471-476.

[**Wang 2007**] X. Wang, S.R. Casolco, G. Xu, J.E. Garay, Finite element modeling of electric current-activated sintering: The effect of coupled electrical potential, temperature and stress, Acta Mater. 55 [10] (2007) 3611-3622.

[**Wang 2010**] C. Wang, L. Cheng, Z. Zhao, FEM analysis of the temperature and stress distribution in spark plasma sintering: Modelling and experimental validation, Comp. Mater. Sci. 49 [2] (2010) 351-362.

[**Wei 2012**] S. Wei, Z.H. Zhang, X.B. Shen, F.C. Wang, M.Y. Sun, R. Yang, S.K. Lee, Simulation of temperature and stress distributions in functionally graded materials synthesized by a spark plasma sintering process, Comp. Mater. Sci. 60 (2012) 168-175.

[**Wei 2015**] X. Wei, D. Giuntini, A.L. Maximenko, C.D. Haines, E.A. Olevsky, Experimental investigation of electric contact resistance in spark plasma sintering tooling setup, J. Am. Ceram. Soc. 98 [11] (2015) 3553-3560.

[**Wolff 2012**] C. Wolff, S. Mercier, H. Couque, A. Molinari, Modeling of conventional hot compaction and spark plasma sintering based on modified micromechanical models of porous materials, Mech. Mater. 49 (2012) 72-91.

[**Wolff 2011**] Cyprien Wolff, Modélisation du processus thermo-électro-mécanique de frittage flash, Ph.D. Dissertation, Paul Verlaine University, 2011, Metz.

[**Yoneya 2001**] M. Yoneya, T. Ikeshoji, A numerical calculation method advantageous for complex boundary problems-an application to the pulse discharge sintering process, Mater. Trans. 42 (2001) 2165.

[**Yu 2017**] M. Yu, S. Grasso, R. Mckinnon, T. Saunders, M.J. Reece, Review of flash sintering: Materials, mechanisms and modelling, Adv. Appl. Ceram. 116 [1] (2017) 24-60.

[**Yucheng 2002**] W. Yucheng, F. Zhengyi, Study of temperature field in spark plasma sintering, Mater. Sci. Eng. B90 (2002) 34-37.

[**Zapata-Solvas 2015**] E. Zapata-Solvas, D. Gomez-Garcia, A. Dominguez-Rodriguez, R.I. Todd, Ultra-fast and energy-efficient sintering of ceramics by electric current concentration, Sci. Rep. 5 (2015) 1-7.

[**Zavaliangos 2004**] A. Zavaliangos, J. Zhang, M. Krammer, J.R. Groza, Temperature evolution during field activated sintering, Mater. Sci. Eng. A 379 [1-2] (2004) 218-228.

[**Zhang 2004]** Jing Zhang, Numerical simulation of thermoelectric phenomena in field activated sintering, Ph.D. Dissertation, Drexel University, 2004, Philadelphia.

Annexe

Tableau A_1 : Propriétés thermoélectriques du graphite de nuance 2333, du feutre de graphite et des feuilles de contact (Papyex®, Molybdène, Tantale).

Graphite de nuance 2333 [Société Mersen, Wolff 2011]

Densité kg/m³	Conductivité thermique W/m °C		Conductivité électrique S/m		Chaleur spécifique J/kg °C		Émissivité
à 20 °C 1860	à 20 °C	103,7	à 20 °C	$7,93\ 10^4$	à 20 °C	710	à 20 °C 0,8
	200 °C	92,2	225 °C	$1,01\ 10^5$	200 °C	1120	
	500 °C	76,3	500 °C	$1,14\ 10^5$	500 °C	1560	
	800 °C	64,5	750 °C	$1,16\ 10^5$	800 °C	1800	
	1100 °C	56,5	1000 °C	$1,18\ 10^5$	1100 °C	1950	
	1400 °C	49,8	1250 °C	$1,11\ 10^5$			

Feutre en graphite, th_f = 10 mm [Fournisseur, Wolff 2011]

Densité kg/m³	Conductivité thermique W/m °C		Conductivité électrique S/m		Chaleur spécifique J/kg °C		Émissivité
à 20 °C 88	à 190 °C	0,383	à 20 °C	333	à 20 °C	712	à 20 °C 0,99
	500 °C	0,105			1400 °C	1675	
	800 °C	0,182					
	1100 °C	0,217					
	1400 °C	0,265					
	1600 °C	0,291					
	2200 °C	0,462					
	2500 °C	0,685					

Feuilles de papyex, th = 0,4 mm [Fournisseur, Wolff 2011]							
Densité kg/m^3	**Direction**	**Conductivité thermique W/m °C**		**Conductivité électrique S/m**		**Chaleur spécifique J/kg °C**	
à 20 °C 1100	Suivant z	à 20 °C	4	à 20 °C	$2\ 10^3$	à 20 °C	710
		900 °C	12			200 °C	1120
		1300 °C	12			500 °C	1560
						800 °C	1800
	Suivant r	à 20 °C	160	à 20 °C	10^5	1100 °C	1950
		900 °C	100				

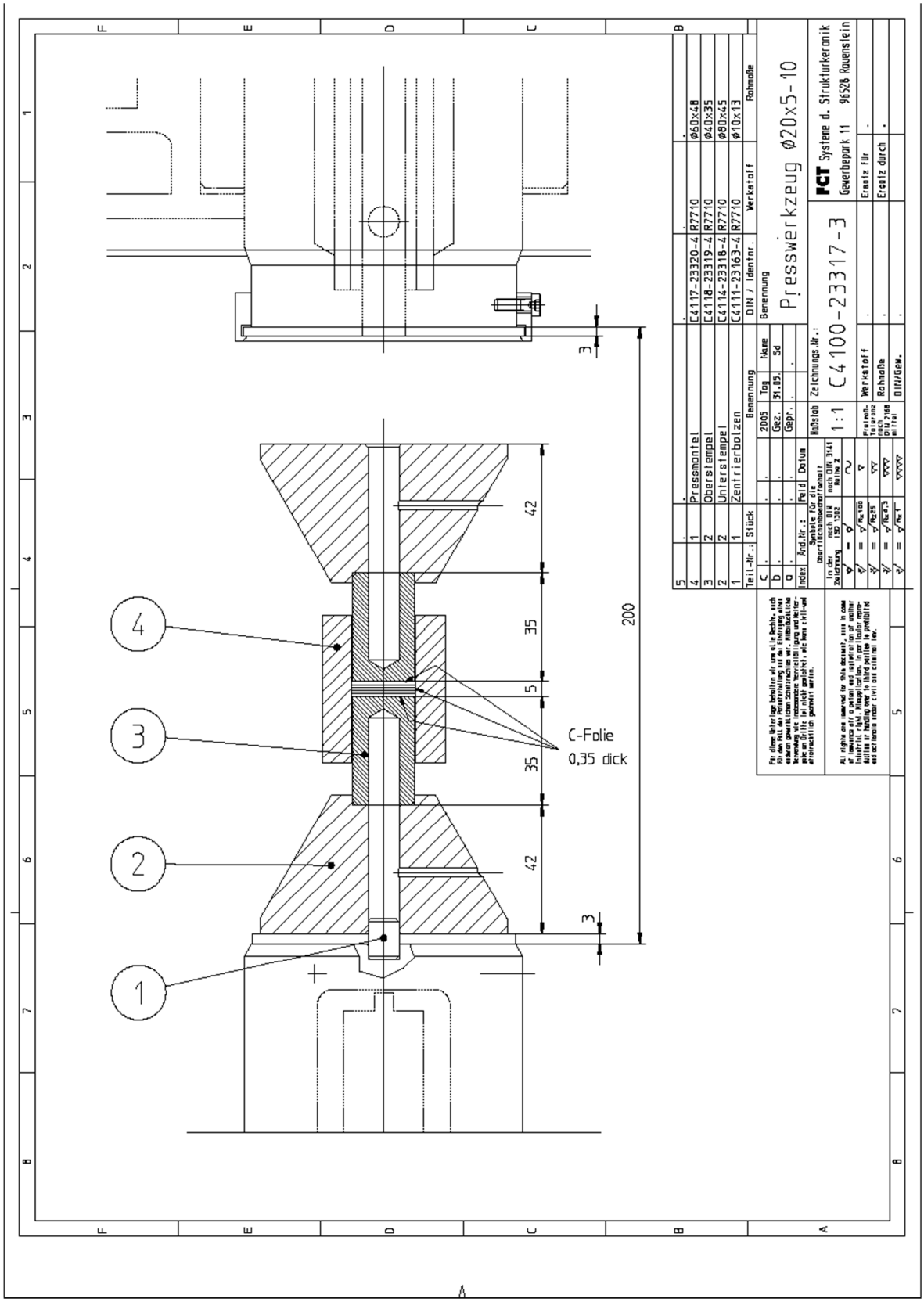
Feuilles de molybdène, th = 50 µm							
Densité kg/m^3	**Conductivité thermique W/m °C**		**Conductivité électrique S/m**		**Chaleur spécifique J/kg °C**	
à 20 °C 10280	à 20 °C	138	à 20 °C	$1,8\ 10^7$	à 20 °C	254
	900 °C	113	900 °C	$3,6\ 10^6$		
	1300 °C	103	1300 °C	$2,5\ 10^6$		

Feuilles de tantale, th = 50 µm							
Densité kg/m^3	**Conductivité thermique W/m °C**		**Conductivité électrique S/m**		**Chaleur spécifique J/kg °C**	
à 20 °C 1660	à 20 °C	54	à 20 °C	$7,6\ 10^6$	à 20 °C	140
	900 °C	72	900 °C	$2,4\ 10^6$		
	1300 °C	77	1300 °C	$1,8\ 10^6$		

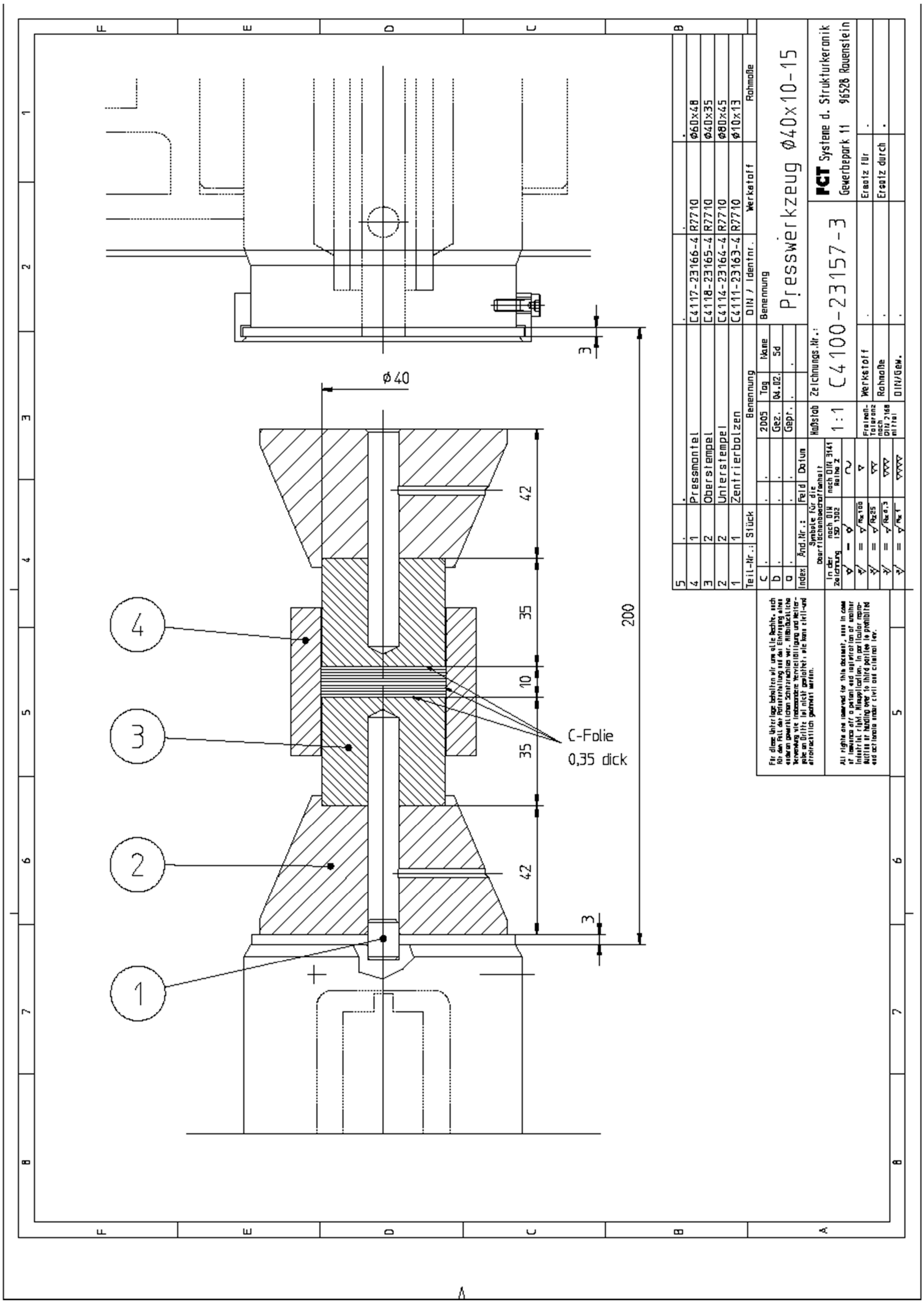
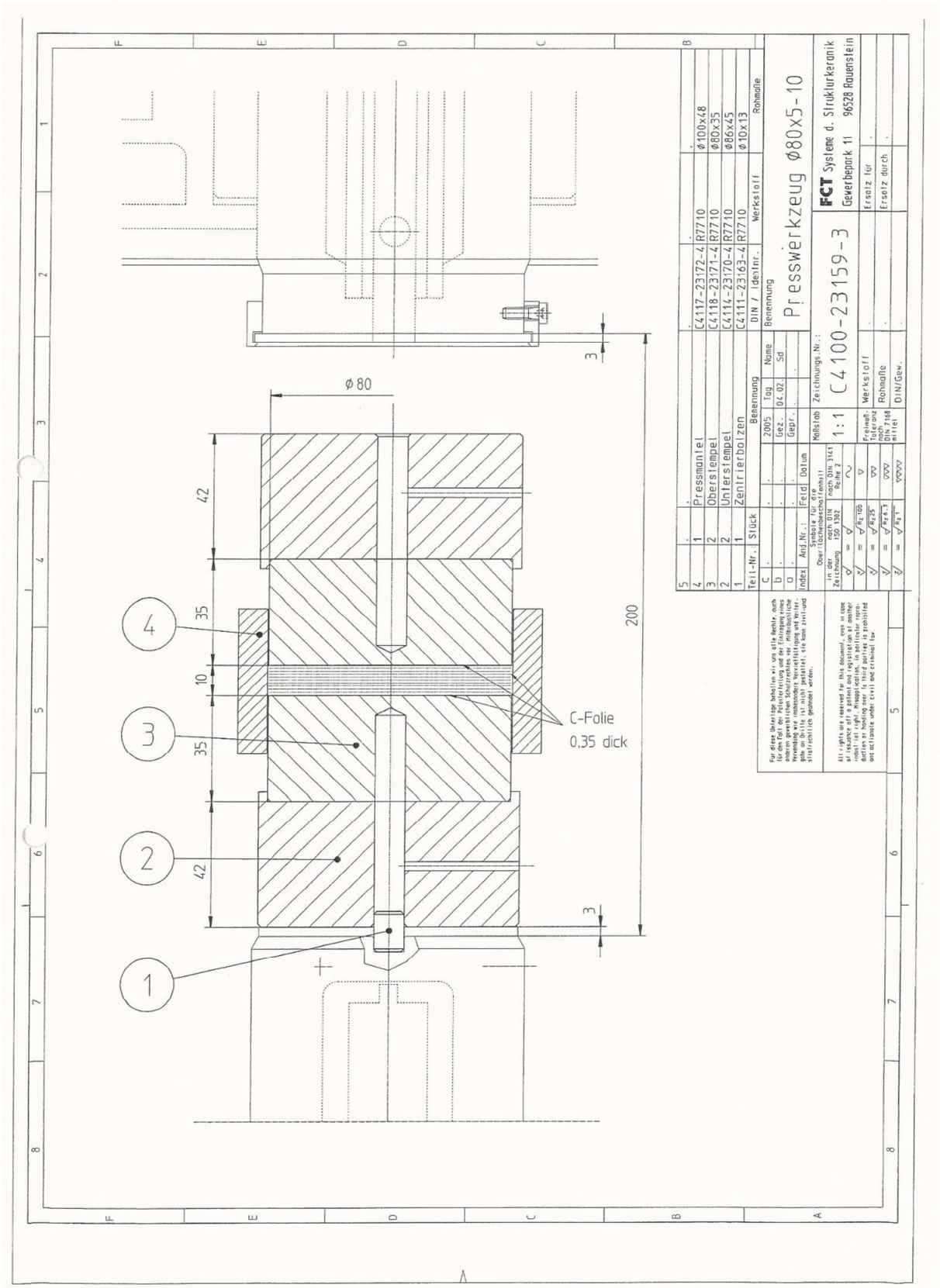
Tableau A_2 : Propriétés thermoélectriques de l'alumine.

Alumina [Anselmi-Tamburini 2010, Wang 2007]			
Densité kg/m^3	**Conductivité thermique W/m °C**	**Conductivité électrique S/m**	**Chaleur spécifique J/kg °C**
3970	$76{,}4488 - 0{,}18978\ T + 1{,}9596\ 10^{4}\ T^{2} - 8{,}9466\ 10^{-8}\ T^{3} + 1{,}4909\ 10^{-11}\ T^{4}$	10^{-8}	$-126{,}5317 + 8{,}1918\ T - 6{,}1058\ 10^{-3}\ T^{2} + 2{,}3104\ 10^{-6}\ T^{3} - 3{,}4204\ 10^{-10}\ T^{4}$

Ensemble de l'outillage SPS, ϕ = 20 mm



Ensemble de l’outillage SPS, ϕ = 40 mm



Ensemble de l'outillage SPS, ϕ = 80 mm