

## Procédé ‘Spark Plasma Sintering’: Modélisation numérique du couplage Thermoélectrique (TE)

Youssef ACHENANI<sup>(a)</sup>, Abdelkhalek CHEDDADI<sup>(a)</sup>, Malika SAADAOU<sup>(b)</sup>  
*École Mohammadia d’Ingénieurs, Université Mohamed V-Agdal, Agdal, Rabat*  
<sup>(a)</sup> *Équipe de Recherche en Systèmes Thermiques et Écoulements Réels*  
<sup>(b)</sup> *Équipe de Recherche en Simulation, Instrumentation et Mesures*  
*cheddadi@emi.ac.ma, saadaoui@emi.ac.ma*

**Résumé:** Le frittage flash (Spark Plasma Sintering-SPS) est également connu sous le nom de technique de frittage sous champ électrique (Field Assisted Sintering Technology-FAST). Cette technologie, couramment utilisée dans la métallurgie des poudres, combine l’application d’un courant électrique pulsé intense (quelques kA) qui traverse les parties conductrices du dispositif SPS générant de grandes vitesses de montée en température induites par effet Joule, et l’application d’un chargement uniaxial (quelques MPa) via les pistons, afin d’élaborer des matériaux denses à partir de poudre en un temps relativement court (quelques minutes). Dans le présent travail, une simulation régime transitoire d’un modèle thermoélectrique de ce procédé, en utilisant la méthode des éléments finis, a été appliquée à l’ensemble du système. La distribution de la température a été analysée dans le cas d’échantillons d’alumine de dimensions variables, avec des propriétés thermiques et électriques dépendant de la température. La simulation a été réalisée avec le logiciel de calcul ANSYS®.

**Mots-clés:** Spark Plasma Sintering (SPS), Alumine, MEF, Modèle thermoélectrique

### 1. Introduction:

Le procédé de fabrication des matériaux, dans la métallurgie des poudres, commence par la synthèse des poudres ou des nanopoudres. La mise en forme d’objets macroscopiques à partir de la poudre s’effectue par le biais de techniques colloïdales au départ de suspensions. Ces techniques conduisent à des microstructures plus homogènes et garantissent également une manipulation plus sûre des nanopoudres. Après le façonnage, la porosité intergranulaire sera éliminée par un traitement thermique, à température élevée, connu de manière générique comme le frittage. Le maintien de la structure nanométrique en cours de frittage constitue un des défis principaux de la communauté scientifique et industrielle. En effet, aux températures élevées de traitement, en plus des phénomènes de transport conduisant à la densification du compact, d’autres mécanismes prennent place tels que par exemple la croissance des grains tendant à détruire la structure nanométrique de départ. La technique de frittage SPS est l’une des quelques techniques qui permettent potentiellement de relever ce défi.

Le procédé frittage flash, ou en anglais Spark Plasma Sintering (SPS), fait partie de la famille des procédés utilisant le courant électrique, FAST (Field Assisted Sintering Technology). Il présente des avantages tant technologiques qu’économiques de par : des vitesses de montée en température rapides, une diminution des températures de frittage, des temps de paliers à température maximale courts, la possibilité de fritter des matériaux pulvérulents difficiles à densifier avec d’autres techniques conventionnelles de frittage, tout en évitant le recours à des additifs de frittage d’où l’amélioration des propriétés des matériaux frittés. En particulier, le fait d’abaisser les temps et les températures de frittage permet la mise en forme de matériaux métastables et de poudres nanométriques avec des densités proches des densités théoriques présentant une faible croissance des grains.

Le procédé SPS permet d’obtenir des frittés nanostructurés dont les propriétés mécaniques électroniques ou optiques sont intéressantes. De plus, des architectures complexes de matériaux (gradients de composition et de porosité, multi-matériaux,...) peuvent être réalisées. Le frittage SPS est utilisé pour la densification des principales classes de matériaux, céramiques, métaux, polymères et composites inclus. Ceci démontre l’universalité de cette technique et les multiples domaines d’applications concernés.

Des études expérimentales et numériques, utilisant des codes de calcul par éléments finis, sur des poudres compactes frittées par la technique SPS, ont été menées pour la modélisation du couplage thermoélectrique [1, 2, 3] et électro-thermomécanique [4, 5, 6].

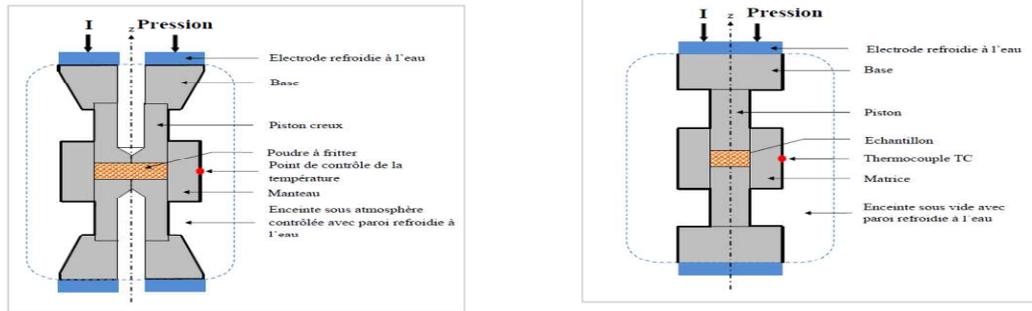
L’objectif principal du présent travail est d’étudier l’influence de l’intensité du courant sur la distribution de la température dans le système au cours du processus du frittage pour deux géométries différentes de la

machine SPS. La première est conçue par la société allemande FCT Systeme GmbH, alors que la seconde est fabriquée par la société japonaise Sumitomo/SPS Syntex.

## 2. Principe du procédé SPS:

Le procédé du frittage SPS peut être décrit comme une technique impliquant l'application simultanée d'un courant électrique continu pulsé et d'une pression uniaxiale dans le but de densifier, consolider des poudres et de mettre en forme des produits spécifiques dans les configurations et densités souhaitées. Le courant et la pression peuvent être ajustés automatiquement par une unité de commande suivant un cycle de pression et de température prédéfini.

Le dispositif du frittage flash est représenté par les schémas suivants correspondant aux deux géométries indiquées :



(a) Machine FCT Systeme GmbH

(b) Machine SUMITOMO/SPS Syntex

Figure 1 : Variantes de dispositifs SPS

## 3. Modélisation thermoélectrique (TE) du frittage SPS:

### 3.1. Equations du modèle thermoélectrique :

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

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} - \text{div}(\overline{k \text{ grad} T}) - \dot{q}_J = 0 \quad (1)$$

$$\text{div} \vec{J} = 0 \quad (2)$$

Où,  $\dot{q}_J = \vec{J} \cdot \vec{E}$ : est la source interne de chaleur par unité de temps et par unité de volume;  $\vec{J} = \frac{1}{\rho_e} \vec{E}$  : est la densité du courant électrique  $\vec{E}$ , dérivant du potentiel  $\phi$  :  $\vec{E} = -\overline{\text{grad}} \phi$ .

### 3.2. Conditions aux limites :

Les conditions aux limites électriques et thermiques appliquées au modèle sont définies sur la figure 2 [7, 8]. Un courant électrique efficace  $I$  est imposé sur la surface supérieure. Nous supposons que les surfaces verticales du dispositif subissent des pertes par rayonnement selon l'équation suivante :

$$q_r = \sigma_s \varepsilon_r (T_w^4 - T_0^4) \quad (3)$$

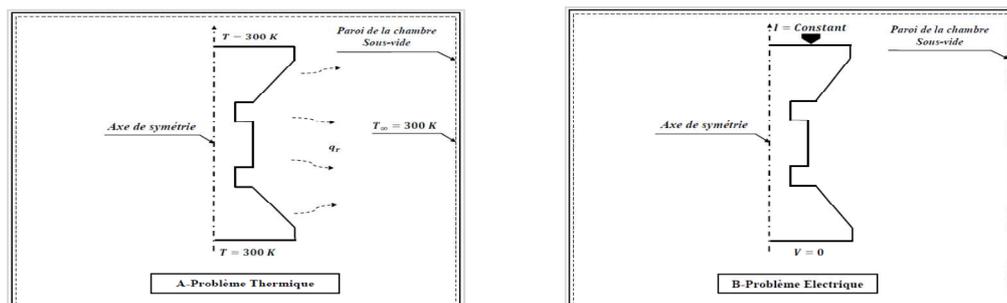


Figure 2 : Conditions aux limites thermiques et électriques appliquées au modèle (TE).

Les tableaux 1 et 2 illustrent les propriétés des matériaux [4] et les dimensions géométriques utilisées dans la simulation numérique. L'échantillon d'alumine étudié est supposé entièrement dense.

Tableau 1 : Propriétés thermophysiques des matériaux.

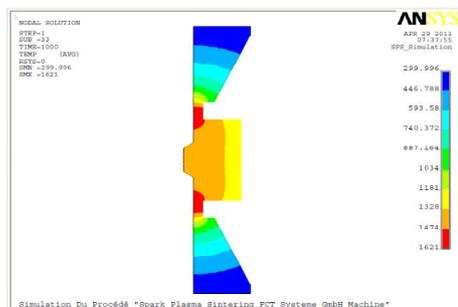
	$\rho_e$ ( $\Omega.m$ )	k (W/m.K)	$c_p$ (J/kg.K)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )
Echantillon : alumine	$10^{-\{14-3*(T-300)/200\}}$	$5,5 + 34,5 e^{-\{0.0033*(T-273)\}}$	$1044.6 + 0,1742 T + 2,796 10^7 T^{-2}$	3900
Matrice : graphite	$26 - 3 10^{-2} T + 2 10^{-5} T^2 - 6,4 10^{-9} T^3 + 7,8 10^{-13} T^4$	$-0,017 T + 65$	$1,7 T + 310,5$	1850

Tableau 2 : Dimensions géométriques des composants de la machine SPS

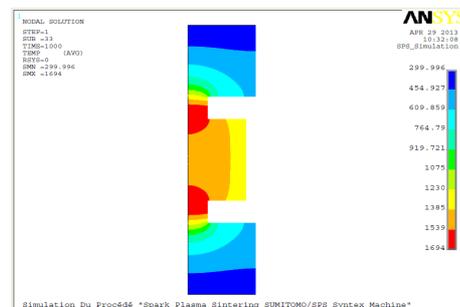
Composants	Echantillon	Piston	Matrice	Feutrine	Base
Diamètre/mm	20	20	40	40	80
Hauteur/mm	5	35	48	48	45

#### 4. Résultats numériques :

Tenant compte des équations (1-2) et des conditions aux limites, la simulation numérique en éléments finis a été réalisée en utilisant le logiciel ANSYS®. Les résultats des simulations qui correspondent à la fin du cycle de chauffage (en régime transitoire) sont présentés dans la figure 3 (a et b) et montrent l'effet de la géométrie sur la répartition de température dans le dispositif SPS. Notons que dans les deux cas étudiés, on obtient pratiquement la même température maximale, avec des intensités de courant  $I = 1800A$  pour la machine *FCT Systeme GmbH* et  $I = 2100A$  pour la machine *SUMITOMO/SPS Syntex*.



(a) Machine FCT Systeme GmbH.

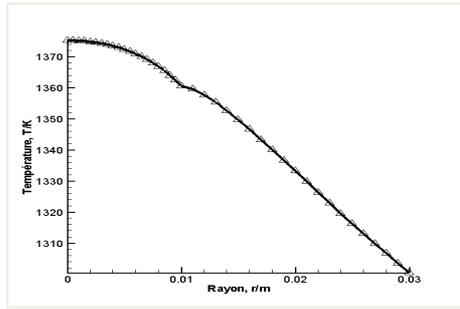


(b) Machine SUMITOMO/SPS Syntex

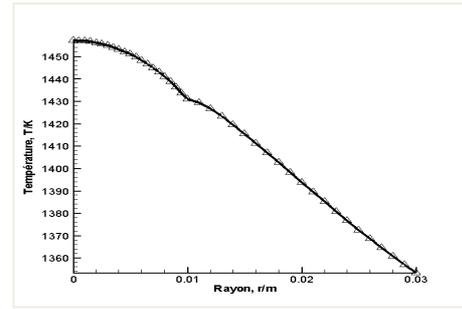
Figure 3 : Répartition de la température à t=1000s.

Au début du cycle de chauffage, un échauffement intense est remarqué au niveau des pistons qui restent le foyer des plus hautes températures du système, quelque soit la nature de l'échantillon (isolant ou électriquement conducteur). Dans notre cas l'alumine est bien chauffée par la matrice et les pistons par le mode de transfert de chaleur conductif. Les contacts sont supposés parfaits aux interfaces : échantillon/piston, échantillon/matrice, piston/matrice et piston/base.

Les figures 4-a et 4-b, représentant la variation radiale de la température au sein du système échantillon-matrice, dans chacun des cas, illustrent l'effet du courant électrique dans la génération de gradients thermiques radiaux.



(a) : Machine FCT Systeme GmbH  
I=1800 A



(b) : Machine SUMITOMO/SPS Syntex  
I=2100 A

Figure 4 : Distribution de la température dans le système SPS de le long de l'axe radial.

La variation du gradient radial de température dans l'échantillon du dispositif SPS est influencée fortement par la variation du courant électrique et peu significative par la géométrie. Pour la machine FCT le gradient est de 14.6 K, par contre pour la machine SPSS, il est de 16,8 K dans le cas où I=1800 A et 26.2 K dans le cas où I=2100 A (figure 5).

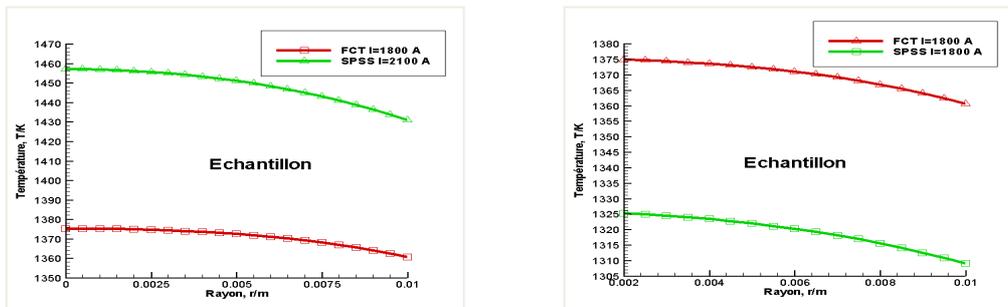


Figure 5 : Distribution de la température dans l'échantillon pour les deux machines du système SPS.

## 5. Conclusion et perspectives:

Dans cette étude, nous avons construit un modèle numérique à l'aide du code de calcul ANSYS® simulant les phénomènes thermoélectriques dans le procédé SPS. La comparaison entre les deux machines du procédé SPS montre clairement l'effet de la géométrie des pièces constituant la machine SPS et de la stimulation électrique, sur le champ de température dans le système SPS. Une meilleure maîtrise du paramètre clé d'élaboration des matériaux, ici le courant électrique, nous permettra d'en contrôler les étapes déterminantes et, de produire ainsi des matériaux à microstructure et à taux de densification contrôlés comme les matériaux denses nanostructurés.

En perspective, les résultats de la simulation numérique vont être comparés avec des résultats expérimentaux afin de les valider. Le modèle TE sera complété en intégrant la loi de comportement du matériau à fritter (couplage mécanique), afin d'investiguer l'effet de la répartition des contraintes mécaniques dans l'échantillon sur la densité et la microstructure des matériaux élaborés.

### Nomenclature:

$\dot{q}_j$	source de chaleur, $W/m^3$
$q_r$	transfert de chaleur par rayonnement, $W/m^2$
$T_w$	température à la surface de la matrice, $K$
$T_0$	température à la paroi de l'enceinte, $K$
$T$	température, $K$
$c_p$	chaleur spécifique, $J/kg.K$
$k$	conductivité thermique, $W/m.K$
$t$	temps, $s$

$J$	densité de courant électrique, $A/m^2$
$E$	champ électrique, $V/m$

### Symboles grecs

$\rho$	densité volumique, $kg/m^3$
$\phi$	potentiel électrique, $V$
$\sigma_s$	constante de Stefan-Boltzmann, $W/m^2.K^4$
$\rho_e$	résistivité électrique, $\Omega.m$

## Références:

- [1] A. Zavaliangos, J. Zhang, M. Krammer et J. R. Groza, Temperature evolution during field activated sintering', *Materials Science and Engineering A*, Volume 379, Pages 218-228, 2004.
- [2] B. McWilliams, A. Zavaliangos, K.C. Cho, R.J. Dowding, The modeling of electric-current-assisted sintering to produce bulk nanocrystalline tungsten, *Journal of Materials Science*, Volume 58, Pages 67-71, 2004.
- [3] B. McWilliams et A. Zavaliangos, Multi-phenomena simulation of electric field assisted sintering, *Journal of Materials Science*, Volume 43, Pages 5031-5035, 2008.
- [4] C. Wang, Laifei Cheng, Zhe Zhao, FEM analysis of the temperature and stress distribution in spark plasma sintering: Modeling and experimental validation, *Computational Materials Science*, Volume 49, Pages 351–362, 2010.
- [6] C. Wolff, S. Mercier, H. Couque et A. Molinari, Modeling of conventional hot compaction and spark plasma sintering based on modified micromechanical models of porous materials, *Mechanics of Materials*, Volume 49, Pages 72-91, 2012.
- [7] J. B. Allen et C. Walter, Numerical Simulation of the temperature and stress field evolution applied to the field assisted sintering technique, *ISRN Materials Science*, Volume 2012, Pages 1-9, 2012.
- [8] G. Maizza, S. Grazzo et Y. Sakka, Moving finite element mesh model for aiding spark plasma sintering in current control mode of pure ultrafine WC powder, *Journal of Materials Science*, Volume 44, Pages 1219-1236, 2009.