

Analyse expérimentale et simulation numérique par éléments finis du frittage naturel réactif du brucite ($\text{Mg}(\text{OH})_2$)

Souhir Mankai^{#1}, Jamel Madiouli^{*,#2}, Jalila Sghaier^{#3}

[#]*Département de génie énergétique, Ecole Nationale d'Ingénieurs de Monastir (ENIM)
Rue Ibn el Jazzar, 5000 Monastir, Tunisie*

¹souhirmankai@yahoo.fr

³jalilasghaier@enim.rnu.tn

^{*}*Département de génie mécanique, Faculté des Ingénieurs d'Abha
Collège des Ingénieurs, Université de King Khaled, PO Box 394, Abha 61421, Arabie Saoudite*

²jamel_mad@yahoo.fr

Résumé— Dans cette étude, une modélisation thermoélastique du frittage naturel réactif d'un produit granulaire (brucite) est faite. Cette modélisation est basée sur les équations constitutives de la mécanique des milieux continus.

Le modèle développé est implémenté dans un solveur numérique travaillant avec la méthode des éléments finis (MEF).

En plus de cette étude numérique, une étude expérimentale permettant de mesurer le retrait à l'aide d'un dilatomètre et la porosité par un pycnomètre à hélium est effectuée.

Afin d'évaluer la fiabilité du modèle proposé, les résultats de la simulation numérique sont comparés avec ceux expérimentaux. Les résultats numériques concernant le retrait et la porosité sont trouvés en bon accord avec les observations expérimentales.

Mots clés— modélisation, simulation, frittage naturel, retrait, brucite.

I. INTRODUCTION

Le frittage est un processus industriel utilisé dans de nombreux domaines tels que la médecine (les prothèses dentaires [1], les prothèses de chevilles et des genoux [2], ...), le transport (roulement, isolant, ...), les applications de hautes technologies (capteurs photovoltaïques, piles de combustion), les combustibles nucléaires [3], ...

Le frittage est défini comme un processus thermique au cours duquel un agglomérat de poudres est consolidé sous l'action de la chaleur sans atteindre le point de fusion.

Plusieurs techniques de frittage se sont apparues, on trouve le frittage naturel ([4], [5], ...), le frittage micro-onde [5], le frittage Spark Plasma Sintering ([6], [7], ...). De plus, on peut distinguer plusieurs types de frittage tels que le frittage réactif qui se réalise en provoquant une réaction chimique entre les différents composés d'un mélange à haute température ; dans ce cas, le frittage permet de former un nouveau composé chimique de structure ou composition différente des produits initiaux et le frittage non réactif (le matériau après frittage a la même composition chimique que la poudre initiale).

Le frittage est considéré comme un phénomène complexe qui peut être influencé par plusieurs facteurs tels que la température, le temps de frittage, la pression,

De nombreuses problématiques couplées, sont généralement présentes dans ce processus : la déformation, le retrait, la cinétique de frittage, la croissance des grains et la porosité. Une bonne prédiction du comportement des matériaux au cours du processus de frittage, permettra d'éviter le post-traitement et mènera ainsi à une bonne compréhension des mécanismes mis en jeu que ce soit à l'échelle microscopique que macroscopique et à une optimisation des différents paramètres pour améliorer la qualité des pièces frittées.

Dans la littérature, plusieurs modèles se sont développés tenant compte des différents mécanismes introduits au cours du frittage. Ces modèles varient des modèles analytiques ([8], ...) aux modèles numériques ([9], [10], ...)

Dans cette étude, une modélisation numérique du comportement thermoélastique du frittage naturel réactif permettant de déterminer le retrait et la porosité est réalisée. De plus, une analyse expérimentale est faite afin de valider le modèle développé.

II. PROCEDURE EXPERIMENTALE

Une poudre d'hydroxyde de magnésium de haute pureté (95%, Sigma Aldrich) et de taille moyenne des grains égale à 2.86 μm (la granulométrie est mesurée par un granulomètre laser de type Microtrac S3500) est utilisée pour toutes les analyses.

La poudre est compactée à 1 bar par une presse uniaxiale pendant 4 minutes. On obtient ainsi des cylindres de 6 mm de diamètre et d'hauteurs variables. La porosité initiale est $\phi_0 \approx 71\%$, elle est déterminée par le calcul du volume géométrique apparent initial et du volume réel, en considérant la masse volumique réelle du $\text{Mg}(\text{OH})_2$ mesurée par le pycnomètre à hélium.

Les pièces comprimées sont frittées à des températures différentes (allant de 400 à 1350°C) en utilisant un four de type Nabertherm. Les vitesses de chauffe et de refroidissement sont respectivement 10 et 30°C/min avec un temps de maintien de 60 min à 400°C (température de décomposition).

L'analyse thermique différentielle (ATD) et l'analyse thermogravimétrique (ATG) sont effectuées en utilisant 28.7 mg de poudres dans un appareil ATD-ATG de type SETARAM SETSYS Evolution-1750. Le retrait linéaire est déterminé en utilisant un dilatomètre (SETARAM SETSYS Evolution-1750) avec le même cycle thermique que celui de l'ATD.

La densité totale du matériau est calculée à partir de sa masse et de ses dimensions.

La porosité totale est calculée à partir de la formule suivante :

$$\phi_{total} = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{réelle}}\right) \quad (1)$$

III. MODELISATION DU FRITTAGE NATUREL REACTIF

La modélisation par éléments finis est établie en considérant un ensemble des équations couplées qui sont : l'équation de conservation de masse, l'équation de conservation d'énergie et l'équation de conservation de la quantité de mouvement.

Pour simplifier le problème, le modèle sera étudié dans une configuration bidimensionnelle et par raison de symétrie, les simulations seront faites sur un demi du domaine.

A. Equation de conservation de la masse

Bien que le volume de la poudre compacte diminue au cours du frittage, la masse de la partie solide du compact reste inchangé. Comme la masse d'air dans les pores est négligeable, l'évolution de la densité relative suit le principe de conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \vec{v}_s) = 0 \quad (2)$$

En introduisant le paramètre de porosité dans l'équation (2) et puisque :

$$\rho = \rho_s(1 - \phi) \quad (3)$$

L'équation de continuité peut s'écrire en fonction de la porosité comme suit :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} - \text{div}((1 - \phi)\vec{v}_s) = 0 \quad (4)$$

B. Equation de conservation de l'énergie

Le frittage couple les phénomènes thermiques et mécaniques simultanément. Cependant, la déformation de la pièce frittée dépend fortement de l'évolution de la température.

En absence d'une source de chaleur, l'équation de conservation de l'énergie est exprimée comme suit :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \vec{v}_s \text{grad}(T) - \text{div}(\lambda \text{grad}(T)) = 0 \quad (5)$$

La température initiale est 300K ; (b) les températures à la surface supérieure et inférieure de l'échantillon subissent le cycle thermique ; la surface latérale a des pertes thermiques par rayonnement et convection. Ces pertes thermiques sont données par les relations suivantes :

$$q_r = \sigma_B \epsilon_r (T^4 - T_{amb}^4) \quad (6)$$

$$q_c = h(T - T_{amb}) \quad (7)$$

Avec $\sigma_B = 5.67 \times 10^{-8} \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-4}$ étant la constante de Stefan-Boltzmann, $\epsilon_r = 0.8$ étant l'émissivité, $h = 10 \text{ W.m}^{-2}.\text{k}^{-1}$ étant le coefficient d'échange convectif d'air et la température ambiante est supposée constante égale à 300 K.

C. Equation de conservation de la quantité de mouvement

L'équation de quantité de mouvement s'écrit d'une façon générale sous la forme :

$$\text{div}(\vec{\sigma}) + f = \rho \frac{d^2 u}{dt^2} \quad (8)$$

En utilisant les hypothèses suivantes :

- Le processus de frittage peut être considéré comme quasi-statique, par conséquent, les termes inertiels sont ignorés.
- L'effet de la gravité est insignifiant et donc négligeable.
- La phase solide est supposée incompressible.

En considérant ces hypothèses, l'équation de l'équilibre dynamique pourrait être écrite sous sa forme d'équilibre mécanique :

$$\text{div}(\vec{\sigma}) = 0 \quad (9)$$

La relation qui relie la déformation au déplacement est :

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2}(u_{ij} + u_{ji}) \quad (10)$$

Le taux de déformation se décompose de trois parties : le taux de déformation élastique $\dot{\epsilon}_e$, le taux de déformation thermique $\dot{\epsilon}_{th}$ et le taux de déformation du au frittage naturel réactif $\dot{\epsilon}_s$. Ceux-ci sont liés par l'équation suivante :

$$\dot{\epsilon} = C_e \dot{\sigma} + \alpha \Delta \dot{T} I + \dot{\epsilon}_s \quad (11)$$

Avec C_e est la matrice élastique pour un solide isotrope, α est le coefficient d'expansion thermique, \dot{T} est le taux de variation de température et I est le tenseur d'identité de second ordre.

Si on considère l'hypothèse du comportement élastique du matériau, on peut alors écrire la relation de Hooke entre la contrainte et le tenseur de déformation du réseau solide :

$$\underline{\sigma} = E \underline{\varepsilon} = \lambda \text{tr}(\underline{\varepsilon}) \underline{I} + 2\mu \underline{\varepsilon} \quad (12)$$

Avec λ et μ sont les coefficients de Lamé reliés au module d'Young E et au coefficient de poisson ν par les deux relations suivantes :

$$\lambda = \frac{\nu E}{(1 + \nu)(1 - 2\nu)} \quad (13)$$

$$\mu = \frac{E}{2(1 + \nu)} \quad (14)$$

Dans le cas où une réaction chimique se produit dans le matériau, l'avancement de cette réaction chimique est noté χ .

La déformation due au frittage naturel est contrôlée par la réaction chimique :

$$\underline{\varepsilon}_s = \chi \underline{\varepsilon}_s^0 \quad (15)$$

Avec $\underline{\varepsilon}_s^0$ est la déformation due au frittage après que la réaction chimique a eu lieu.

Pour déterminer ces paramètres associés au frittage, on a utilisé les courbes du retrait expérimental et de la perte de masse.

Les propriétés du matériau utilisées dans la simulation numérique sont ou bien tirées de la littérature ou déterminées à partir de nos analyses expérimentales (Tableau I).

TABLEAU I
 PROPRIETES DE L'HYDROXYDE DE MAGNESIUM

| Propriétés | Valeurs |
|---|--|
| Chaleur spécifique (J/Kg.K) | $84.903 + 74.44T - 68.928T^2 + 26.632T^3 - \frac{2.174}{T^2}$ |
| Masse volumique du solide (Kg/m3) | 2360 |
| Conductivité thermique (W/m.K) [11] | 8 |
| Coefficient de dilatation thermique (1/K) | $-5.39 \cdot 10^{-5} + 2.386 \cdot 10^{-7} * T - 1.974 \cdot 10^{-10} * T^2$ |
| Module d'Young (MPa) | 5 |
| Coefficient de poisson (-) | 0.22 |

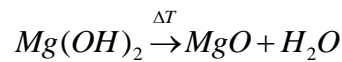
IV. RESULTATS ET DISCUSSIONS

A. Résultats numériques et discussions

Le modèle est testé pour un produit réactif qui est l'hydroxyde de magnésium (Mg(OH)₂).

Le calcul de la déformation due au frittage naturel réactif pour la simulation est basée sur la courbe ATD-ATG (Fig.2). La courbe de l'ATD montre l'apparence de deux pics endothermiques.

- Un petit pic endothermique à environ 250°C avec une perte de masse de 1,4% lié au phénomène de déshydratation.
- Un large pic endothermique à 400°C associé à la réaction chimique de décomposition de l'hydroxyde de magnésium selon la forme suivante :



Cette décomposition est accompagnée d'une perte de masse importante (égale à 10.71%).

La courbe ATG nous a permis donc de déterminer le taux d'avancement de la réaction χ ainsi que la déformation à la fin de la réaction $\underline{\varepsilon}_s^0$.

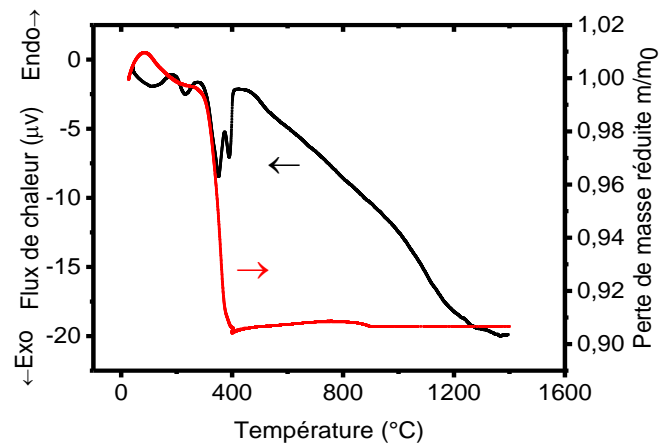


Fig.1. Courbes de l'ATD-ATG pour le Mg(OH)₂

La Fig.2 montre la prédiction numérique de la distribution du retrait pour l'hydroxyde de magnésium après frittage.

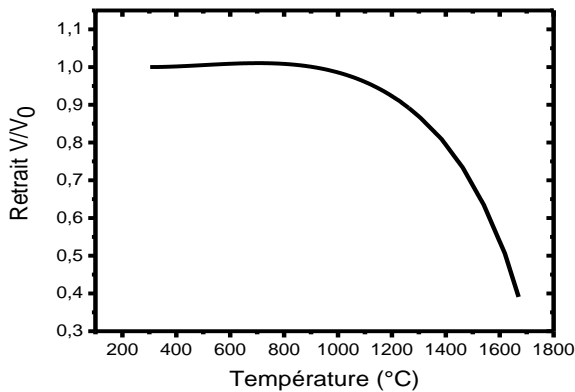


Fig.2. Courbe du retrait numérique du Mg(OH)₂ en fonction de la température

En plus du retrait, la porosité a été simulée. L'évolution de la porosité est illustrée dans la Fig.3.

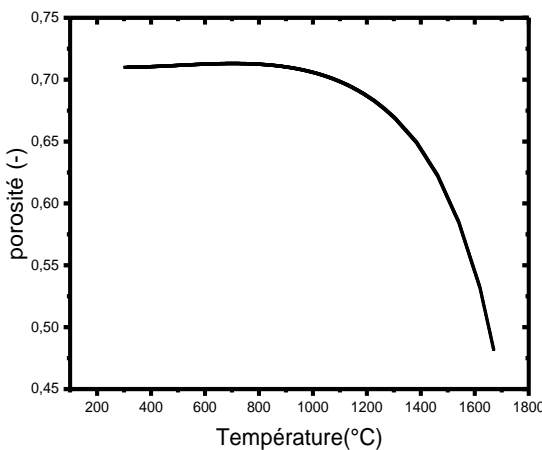


Fig.3. Courbe de la porosité numérique du Mg(OH)₂ en fonction de la température

B. Validation expérimentale des résultats de la simulation

Le dilatomètre permet de déterminer le retrait linéaire en fonction de la température. Le coefficient du retrait volumique est relié au retrait linéaire ($\frac{L-L_0}{L_0}$) mesuré par le dilatomètre

par la relation suivante :

$$\frac{V}{V_0} = \left(1 + \frac{L-L_0}{L_0}\right)^3 \tag{13}$$

Pour la courbe du retrait expérimental (Fig.4), trois stades sont observés. Dans la première étape, l'expansion volumétrique est dominante et on observe le phénomène de grossissement des grains (croissance de grain exagérée). Dans la deuxième étape, l'évaluation microstructurale est plus

compliquée car le retrait par frittage est plus efficace, l'activation thermique suffit donc pour réunir les particules et développer la formation du col entre elles. Lorsque la transformation est terminée (troisième étape), le retrait est dominant car le frittage a donné lieu à la densification.

La courbe du retrait numérique a la même allure que celle expérimentale.

De même, les courbes de la porosité expérimentale et numérique ont la même forme. La porosité diminue en fonction de la température de 71% jusqu'à atteindre une valeur égale à 48%.

A partir des Fig.4 et Fig.5, on remarque une bonne concordance entre le retrait et la porosité mesurés et ceux simulés numériquement. On peut donc conclure que le modèle numérique développé est validé dans le cas du frittage naturel réactif.

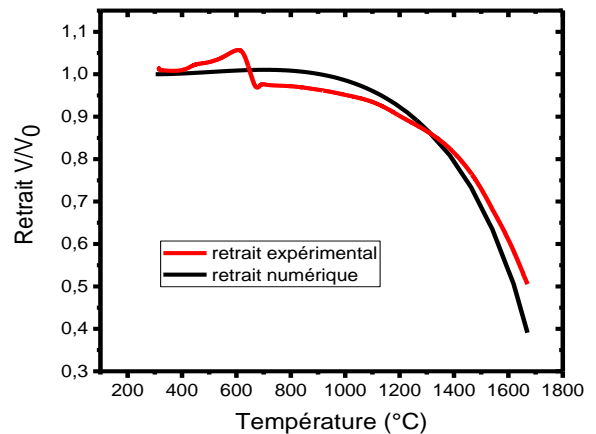


Fig.4. Comparaison entre le retrait expérimental et numérique pour le frittage naturel réactif du Mg(OH)₂

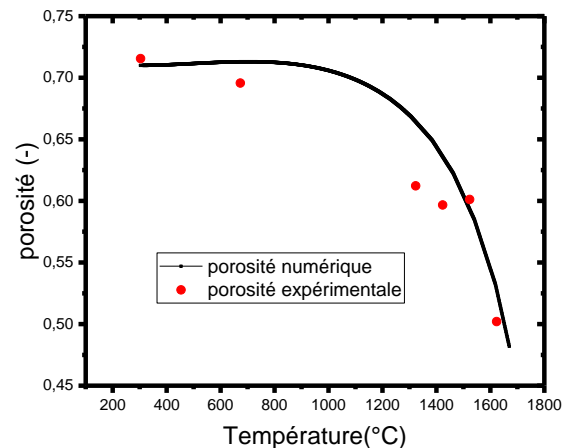


Fig.5. Courbe des porosités expérimentale et numérique en fonction de la température au cours du frittage naturel réactif de l'hydroxyde de magnésium

V. CONCLUSIONS

Dans le cadre de ce travail, un modèle phénoménologique décrivant le comportement thermomécanique au cours du frittage d'un produit réactif est proposé. Dans une deuxième étape, une simulation numérique se basant sur la méthode des éléments finis est réalisée. Les résultats de la simulation en termes de changement de volume (retrait) et de porosité trouvés sont en bon accord avec les données expérimentales.

REFERENCES

- [1] A. Guidara, K. Chaari, and J. Bouaziz, "Elaboration and characterization of alumina-fluorapatite composites," *J Biomater Nanobiotechnol*, vol.2, pp.103–113, 2011.
- [2] S. Hamza, "Etude du comportement en fatigue en compression des biocéramiques (Al₂O₃, ZrO₂) utilisées pour la conception des prothèses ostéo-articulaires," Thèse, Université de METZ, France. 2002.
- [3] S. Martin, "Contribution à la modélisation du frittage en phase solide," Thèse, Université de Technologie Compiègne, France. 2014.
- [4] S.M. Naga, S.H. Kenawy, M. Awaad, H.S. Abd El-Wahab, P. Greil, and M.F. Abadir, "Synthesis and characterization of laminated Si/SiC Composites," *J Adv Res*, vol.4, pp. 75-82, 2013.
- [5] O.Ertugrul, R. Dalmis, S. Akpınar, I.M. Kusoglu, and E. Celik, "Influence of zircon particle size on conventional and microwaveassisted reaction sintering of in-situ mullite–zirconia composites," *Ceram Int*, vol.46, pp.11104–11117, 2016.
- [6] L. Hilger, X. Boulnat, J. Hoffmann, C. Testani, F. Bergner, Y. De Carlan, et al., "Fabrication and characterization of oxide dispersion strengthened (ODS) 14 Cr steels consolidated by means of hot isostatic pressing, hot extrusion and spark plasma sintering," *J Nucl Mater*. Vol.472, pp.206-214, 2016.
- [7] Y.H. Huang, Y.J. Wu, W.J. Qiu, J. Li, and X.M. Chen, "Enhanced energy storage density of Ba_{0.4}Sr_{0.6}TiO₃–MgO composite prepared by spark plasma sintering," *J Eur Ceram Soc*, vol.35, pp 1469-1476, 2015.
- [8] J. Hansen, R. Rusin, and M.H. Teng, "Combined-stage sintering model," *J Am Ceram Soc*, vol.75, pp.1129-1135, 1992
- [9] W. Li, M.M. Porter, E.A. Olevsky, R.M. German, and J. McKittrick, "Sintering of bi-porous titanium dioxide scaffolds: Experimentation, modeling and simulation," *Mater Sci Eng A*, vol.636, pp.148-156, 2015.
- [10] G. Maizza, S. Grasso, and Y. Sakka, "Moving finite-element mesh model for aiding spark plasma sintering in current control mode of pure ultrafine WC powder," *Mater Sci*, vol.44, pp.219–1236, 2007.
- [11] Wikipedia.available:https://fr.wikipedia.org/wiki/Hydroxyde_de_magn%C3%A9sium.