République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITÉ CHADLI BENDJEDID - EL TARF جامعة الشاذلي بن جديد-الطارف

FACULTÉ DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE

MÉMOIRE DE MASTER

DOMAINE : SCIENCE DE LA MATIÈRE

FILIÈRE : Physique

OPTION : Physique des Matériaux

Thème

Etude du mécanisme de diffusion intergranulaire au cours de la densification de poudres sphériques bidimensionnelles par compression isostatique à chaud

Présenté par :
Mlle MOUSSAOUI Fatma

Dirigé par :
Dr REDOUANI Locif

Jury de soutenance :

Dr BENAISSA Sihem	Présidente	MCB	Université - El Tarf
Dr REDOUANI Locif	Rapporteur	MCA	Université - El Tarf
Dr ARROUCI Soumia	Examinatrice	MCB	Université - El Tarf

Année Universitaire : 2022/2023

Remerciements

Je remercie ***Dieu le tout puissant*** *de m'avoir donné la santé et la volonté d'entamer et de terminer mon parcours.*

Tout d'abord, ce travail ne serait pas aussi riche et n'aurait pas voir le jour sans l'aide et l'encadrement exceptionnel du ***Dr. REDOUANI locif****. Je le remercie pour le temps qu'il m'a consacré et pour les précieuses informations qu'il m'a prodigué avec intérêt et compréhension, sa patience, sa rigueur et ses qualités, ses valeurs humaines et disponibilité durant la préparation de ce mémoire.*

Aussi je remercie les membres du jury, ***Mme BENAISSA Sihem*** *et* ***Mme ARROUCI Soumia*** *pour avoir bien voulu examiner et juger mon travail.*

De plus, je voudrais remercier Mr. LAIDI Rebah pour son aide précieuse.

Finalement au chef de Département, à tous mes chers professeurs pour leur éducation et leur conscience, ils étaient plus des parents que des enseignants.

Dédicaces

Je dédie ce travail de fin d'étude à mes parents qui ont sacrifié leur vie pour ma réussite et m'avoir éclairé le chemin par leur conseils, particulièrement mon cher père, le meilleur père du monde. Du profond de mon cœur et avec des mots sincères, j'espère qu'un jour je pourrai rendre un peu de ce qu'ils ont fait pour moi, que Dieu leur prête bonheur et longue vie.

Je dédie aussi ce travail à mes chères sœurs, ma grande famille, mes copines sans exception, et à tous ceux que j'aime et à toutes les personnes qui m'ont soutenu durant toutes ces années.

TABLE DES MATIERES

Remerciements

Dédicaces

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENÉRALE 1

CHAPITRE I : INTRODUCTION À LA COMPRESSION ISISTATIQUE A CHAUD

I.1. INTRODUCTION 3

I.2. GENERALITES SUR LA CIC 4

I.2.1. Principe 4

I.2.2. Cycle opératoire 5

I.2.2. Avantages 6

I.2.2. Applications 7

I.3. MODÉLISATION DE LA CIC 7

I.3.1. Epilement aléatoire dense 8

I.3.2. Paramètres des EADs 9

a. Nombre de coordination *9*

b. Surface de contact *10*

c. Pression efficace *11*

I.3.3. Mécanismes de densification 12

a. Déformation plastique *13*

b. Fluage en loi de puissance *13*

c. Diffusion *15*

d. Fluage diffusionnel *15*

I.3.4. Simulation numérique 16

I.4. CONCLUSION 18

CHAPITRE II : ASPECTS PHÉNOMÉNOLOGIQUES DE LA DIFFUSION

II.1. INTRODUCTION 19

II.2. PHENOMENE DE DIFFUSION 19

II.2.1. Définition 19
II.2.2. Mécanismes de diffusion 20
a. Diffusion lacunaire *21*
b. Diffusion interstitielle *21*
c. Diffusion superficielle *22*
d. Diffusion dans un joint de grain *22*
II.2.3. Lois de diffusion 22
a. 1ère loi de Fick *23*
b. 2ème loi de Fick *23*
c. Loi d'Arrhénius *24*
II.3. CONTRIBUTION DE LA DIFFUSION A LA DENSIFICATION **25**
II.4. MODELISATION DE LA DIFFUSION INTERGRANULAIRE **27**
II.5. CONCLUSION **29**

CHAPITRE III : ÉVALUATION DE LA DIFFUSION INTERGRANULAIRE

III.1. INTRODUCTION **30**
III.2. EAD BIDIMENSIONNEL **30**
III.2.1. Description 30
III.2.2. Nombre de coordination 31
III.2.3. Surface de contact 31
III.2.4. Pression efficace 33
III.3. DIFFUSION INTERGRANULAIRE **34**
III.3.1. Stade I 34
III.3.2. Stade II 35
III.4. APPLICATION **37**
III.4.1. Comparaison entre approches 38
III.4.2. Comparaison entre poudres 41
III.5. CONCLUSION **43**

CONCLUSION GENERALE **44**

Bibliographie **46**

Résumé

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Aujourd'hui, la modélisation numérique est devenue une étape incontournable dans le monde de l'industrie vu son rôle indispensable dans le développement et l'optimisation des procédés [1]. Elle occupe une place importante dans la réalisation de produits répondant aux exigences sévères de ce secteur.

La compression isostatique à chaud (CIC), qui constitue l'une des techniques les plus importantes de la métallurgie des poudres, n'est justement pas à l'abri de la modélisation. En effet, l'optimisation des paramètres du processus de densification des poudres par ce procédé permet de réduire le nombre de tests de mise au point et, par la même occasion, les coûts des pièces réalisées. Cette optimisation est justement réalisée suite à la modélisation des mécanismes de densifications susceptibles d'être activés lors des cycles opératoires. Ces mécanismes sont la déformation plastique, le fluage en loi de puissance, la diffusion intergranulaire, la diffusion en volume et l'écoulement diffusionnel.

Dans ce travail, nous allons justement nous intéresser à la modélisation du mécanisme de diffusion intergranualire. Ce choix repose essentiellement sur le fait que ce dernier joue un rôle primordial dans la consolidation des pièces réalisées par frittage. Il constitue également le mécanisme le plus prépondérant dans la densification par CIC des poudres dures, telles que les poudres du tungstène et des céramiques.

Il y a lieu de noter que jusqu'ici, la modélisation de la CIC, en utilisation l'approche microscopique, est basée essentiellement sur l'étude de la densification des empilements aléatoires denses (EADs) de particules sphériques monodimensionnelles (de même rayon). Cette conception ne prend pas donc en considération la distribution de la taille des particules de poudres. Cette approche propose une approximation aberrante des agrégats de poudres vu l'aspect pluridimensionnel des particules. C'est pourquoi nous avons jugé utile de mener un travail qui consiste à calculer les équations de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en considérant des EADs bidimensionnels. Cette approche permettra éventuellement de réduire les écarts entre les données expérimentales et les résultats des simulations.

Ce manuscrit contient trois chapitres. Le premier chapitre est consacré à une revue bibliographique. Quelques généralités sur la CIC, tels que le principe et les applications, ainsi que la méthode de modélisation et de simulation numérique y sont alors exposées.

Dans le chapitre II, une présentation plus au moins exhaustive de la diffusion sera exposée. Puis nous mettrons en exergues les différents aspects liés à la densification des EADs monodimensionnels ainsi que la modélisation du mécanisme de diffusion intergranulaire. Il y a lieu ainsi d'arborer les différents modèles et équations antérieurs.

Le chapitre III est destiné à exposer les différents calculs et approches relatifs à la modélisation des EADs bidimensionnels, puis ceux permettant de déterminer les équations des contributions à la densification de la diffusion intergranulaire et finalement quelques comparaisons avec les anciens modèles.

Enfin, la dernière partie du présent manuscrit fera l'objet d'une conclusion générale.

CHAPITRE I :

INTRODUCTION À LA COMPRESSION ISOSTATIQUE À CHAUD

I.1. INTRODUCTION

Actuellement, la technologie des poudres (*Powder Technologie*, en Anglais) représente un domaine important de l'activité industrielle et scientifique. Les secteurs concernés sont divers et variés, allant de l'agriculture (comme l'engrais par exemple) à la chimie (exemples : réactifs, supports de catalyseurs) en passant par le bâtiment (ciment, plâtre), la médecine (prothèses osseuses et dentaires) et l'alimentaire (aliments déshydratés par exemple). Les procédés de fabrication de poudres doivent maîtriser certaines de leurs caractéristiques de base telles que la morphologie des particules de poudre, leur taille, leur distribution en taille, leur surface spécifique auxquelles s'ajoutent des propriétés propres à leurs applications (comme par exemple le contrôle de la réactivité, des propriétés optiques [2].

La compression isostatique est l'une des techniques de la métallurgie des poudres (MP). C'est un procédé de densification de matériaux qui implique l'application uniforme de pression à un conteneur scellé contenant le matériau [1,3]. Cette technique est souvent utilisée pour la fabrication de pièces à très haute densité. La compression isostatique peut être réalisée à chaud ou à froid. La compression isostatique à chaud (CIC aussi appelé *HIP* pour *Hot Isostatic Pressing* en anglais) est une technique de densification de matériaux présentant initialement des cavités. Elle fait appel à un chauffage et à une pression de gaz généralement neutre : sous les effets combinés de ces deux facteurs, les cavités sont éliminées et le matériau est densifié [3]. Elle a été développée par le Battelle Memorial Institute (aux Laboratoires Columbus en 1955) pour le compte de la Commission de l'énergie atomique des États-Unis [4].

En raison des possibilités qu'il offre à la fois d'un point de vue technique mais également économique, le procédé CIC est de plus en plus utilisé dans les industries nucléaires et aéronautiques. Cette technique permet de produire des pièces métalliques ou céramiques, haut de gamme En effet, ce procédé permet d'obtenir des pièces denses de forme plus ou moins complexe, de microstructure uniforme et nécessitant un usinage limité. Ainsi, lorsque certaines pièces requièrent des matériaux parfaitement denses, à structure contrôlée et avec des tolérances géométriques très serrées, le procédé CIC est de plus en plus mis en œuvre [1].

La modélisation de la compression isostatique peut être réalisée à l'aide d'outils de simulation basés sur une analyse par éléments finis [4] ou une approche micromécanique. Elle consiste à évaluer les contributions à la densification des mécanismes de déformation et de transport de matière.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à une présentation de quelques généralités, le principe et les avantages de la CIC. La deuxième partie sera destinée à passer en revue la modélisation microscopique du procédé CIC.

I.2. GENERALITE SUR LA CIC

I.2.1. Principe

La CIC est un procédé de fabrication utilisé pour la densification des poudres métalliques, de polymère, de céramique et composites à l'état solide. Il permet également d'éliminer la porosité interne dans les pièces moulées métalliques. La compression isostatique à chaud (CIC) implique l'application de température et de pression simultanément à une pièce à usiner ou à mouler. Il s'agit d'une technique de traitement particulièrement appliquée à l'industrie manufacturière. La CIC permet de densifier à 100% un matériau fabriqué à partir de poudres (métalliques ou céramiques) pour obtenir des produits isotropes. Les composants sont souvent configurés de forme nette ou de forme quasi-nette [6].

Le principe de la CIC consiste à soumettre une enveloppe (container) étanche remplie de poudre à un traitement thermique sous pression isostatique appliquée par l'intermédiaire d'un gaz inerte, généralement de l'argon, dans une enceinte haute pression contenant un four à résistance. Par la suite, la capsule est soumise à un pompage (mise sous vide) afin d'expulser le gaz contenu à l'intérieur pour minimiser la porosité dans le matériau final. Le pompage peut durer trois jours pour des poudres micrométriques voire deux semaines pour les poudres nanométriques. Une fois qu'un vide secondaire de l'ordre de 5.10^{-4} Pa est atteint, la capsule est scellée et mise dans l'enceinte (Fig. I.1) de la presse CIC pour la compaction. La température et la pression peuvent atteindre des valeurs élevées jusqu'à plus de 1000°C et 300MPa [3].

Fig. I.1. Enceinte de la CIC [7].

Pendant le processus CIC, le composant est soumis à une pression élevée. La pression requise dépend principalement de la limite d'élasticité du matériel. Pour initier la création, il est nécessaire que la pression appliquée soit distinctement supérieure à la limite d'élasticité du matériau à la température choisie pour le CIC. La température du CIC est généralement comprise entre 70 et 80 % de la température de fusion. Cette combinaison de température et de pression élevée est suffisante pour initier d'autres Mécanisme de densification tel que le fluage et la diffusion en dehors de la flexion plastique. La résistance du matériau est considérablement améliorée car les vides internes sont fermé, le matériau devient dense à une densité quasi théorique, et la microstructure de le matériau est amélioré [1-4].

Le schéma du principe est donné par la figure I.2.

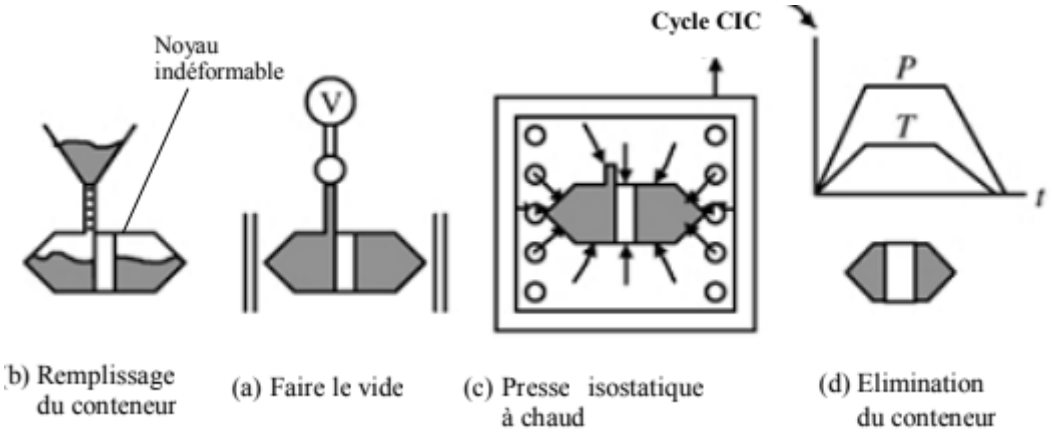


Fig. I.2. Illustration du principe de la CIC de poudre [8].

I.2.2. Cycle opératoire

Dans l'enceinte CIC, le container est soumis simultanément à une forte pression et une haute température. Ces deux paramètres sont appliqués selon trois étapes (Fig. I.3) :

Étape 1 : Montée (rampe) en température et pression simultanées jusqu'au paramètres de traitement (température et pression respectivement T_t et P_t).

Étape 2 : Durant cette étape, les paramètres de traitement sont maintenus constants pendant une durée déterminée (période de séjour).

Étape 3 : C'est l'étape de descente où il y aura réduction et libération simultanées de la température et de la pression.

Fig. I.3. Cycle opératoire CIC.

I.2.3. Avantages

La CIC est un procédé de consolidation des matériaux sous forme de poudre à des températures inférieures à leur température de fusion. Elle représente une technique utilisée dans l'industrie pour produire des pièces métalliques ou céramiques, haut de gamme, à partir de poudres. Ce procédé permet d'obtenir des pièces de forme plus ou moins complexe et de microstructure relativement uniforme. Il offre ainsi plusieurs avantages par rapport aux procédés d'usinage traditionnels. De plus, dans la plus part des cas, la CIC ne nécessite pas d'usinage ou de meulage supplémentaire, ce qui permet de gagner du temps et de réduire les déchets [6].

La CIC est utilisée essentiellement pour améliorer les propriétés de fatigue et réduire la bande de dispersion des propriétés mécaniques. Aussi, elle complète d'autres procédés de métallurgie des poudres tels que le moulage par injection métallique (MIM), le pressage et le frittage [1].

Les avantages de CIC apparaissent également dans les fonderies où elle supprime et répare les défauts de coulée internes non ouverts ou ceux qui semblent ne pas pouvoir être ouverts.

On peut citer certains avantages sur les pièces mécaniques tels que [4,6] :

- Elimination des défauts internes (microvides, retassures, cavités dendritiques, fissures de retrait, pores) ;
- Amélioration des graphiques RX ;
- Prolongation de vie ;
- Accroissement des propriétés Rm (résistance mécanique) et ductilité ;

- Amélioration de l'état de surface des pièces usinées (étanchéité, polissage, corrosion localisée, etc.) ;
- Augmentation de la densité ;
- Pas de gaz résiduel volatil pendant le processus ;
- Jusqu'à 60 % de réduction du volume, etc.

I.2.4. Applications

La CIC est une technique conçue à l'origine pour des applications de l'industrie nucléaire (sous le nom de « collage sous pression de gaz ») [7]. Cependant, elle est éprouvée et est encore couramment utilisée dans les industries et les laboratoires de R&D pour la production de pièces proches de la forme nette (NNS, *near net Shape*en Anglais), c'est-à-dire avoir une densité plus proche de la densité théorique. Aujourd'hui, cette technologie est appliquée dans de nombreux secteurs industriels, y compris les fabrications de matériaux, automobile, aérospatiale, pétrole et gaz, production d'énergie et médical. Il est également utilisé pour produire des joints sonores pour des matériaux dissemblables [9].

Parmi les applications de la CIC [4] :

- Densification de poudres de consolidation ;
- Collage par diffusion de différents types de matériaux ;
- Élimination des pores résiduels dans les articles frittés ;
- Élimination des défauts intérieurs des pièces moulées ;
- Rajeunissement des pièces endommagées par la fatigue ou le fluage ;
- Méthode de carbonisation imprégnée à haute pression, etc.

I.3. MODELISATION DE LA CIC

La CIC de poudres métalliques ou céramiques est un procédé qui permet l'élaboration de matériaux totalement denses et dotés de propriétés performantes. Cependant, pour réaliser de telles propriétés, le processus requiert une énergie importante et plusieurs essais de mise au point [10]. Par conséquent, la nécessité d'optimiser les cycles CIC tout en s'efforçant de réduire au maximum le nombre ces essais a conduit à développer des méthodes de simulations basées sur deux approches :

- *Une approche macromécanique* : adoptée par les mécaniciens tels que Svoboda [11], Kim et Lee [12,13] et Deng [14], elle est souvent utilisée pour prédire la forme ainsi que la distribution densité du produit final. Cette technique repose sur la méthode des éléments finis pour étudier les mécanismes de densification. Dans ce cas, le comprimé est considéré comme étant un milieu continu et seuls les mécanismes de déformation sont envisagés (déformation plastique et fluage). Cette approche donne de bons résultats pour les matériaux ductiles mais pas pour les matériaux durs. Cela s'explique par le fait que les mécanismes de diffusions sont négligés.
- *Une approche micromécaniques* : utilisée par les physiciens tels qu'Ashby, Arzt et Helle [15-17] et Redouani [18,19], elle repose sur le calcul des contributions des mécanismes susceptibles d'être activés lors de la densification. Pour se faire, les agrégats de poudres sont assimilés à des empilements aléatoires denses de particules sphériques monodimensionnelles. C'est cette approche que nous allons développer et adopter dans notre travail.

I.3.1. Empilement aléatoire dense

Pour mieux appréhender la modélisation du procédé de densification par CIC, on assimile les agrégats de poudres à des empilements aléatoires denses (EADs) de particules sphériques identiques de rayon (R) (voir Fig. I.4). Cette approche permet d'exprimer le nombre de contacts par particule et la surface moyenne de contact en fonction de la densité relative instantanée (D). La pression efficace qui s'exerce au niveau des contacts entre les particules peut être ainsi facilement évaluée [20].

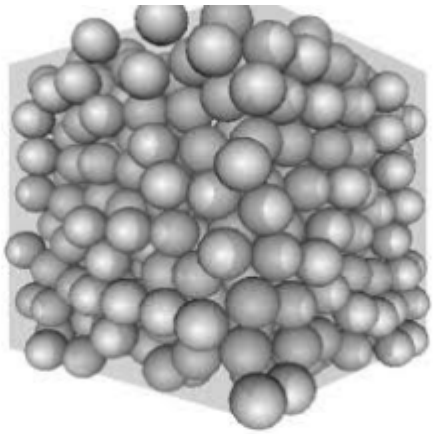


Fig. I.4. Vue à 3D d'un empilement aléatoire dense de sphère [21].

La densification d'un EAD est un processus très difficile à décrire. Il fait intervenir plusieurs mécanismes dont les contributions à la densification qui dépendent des caractéristiques morphologiques et granulométriques des particules de poudre. En considérant l'agrégat de poudre comme étant un EAD, tout mouvement des particules est écarté. Ainsi, les mécanismes de densification par glissement des particules les unes par rapport aux autres sont négligés et la densité initiale est de 0,64. D'autre part, la densification est un processus continu mais les évolutions morphologiques et granulométriques nous imposent de considérer deux stades de densification [20] :

- *Stade I* : caractérisé par une porosité ouverte et interconnecté. Les particules sont distinctes et il y a formation des cous aux points de contact entre celles-ci.
- *Stade II* : (où final), caractérisé par une densité relative supérieure à 92% et une porosité fermée, isolée et de forme sphérique.

I.3.2. Paramètres des EADs

a. Nombre de coordination

Le nombre de coordination (Z) correspond au nombre de contacts par particule dans un rayon ($r \leq 2R$) (Fig. I.5).

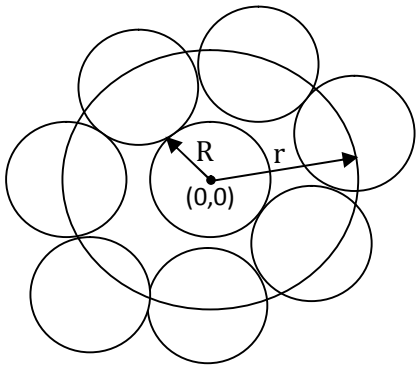


Fig. I.5. Représentation schématique à deux dimensions du nombre de voisins d'une particule de référence dans un champ d'analyse de rayon r [20].

Afin d'évaluer ce nombre, Scott et Mason [22,23] on établi une loi semi-empirique pour une configuration de sphères monophasées. Cette loi s'appelle la distribution radiale cumulée de Mason, elle est donnée par :

$$\begin{cases} G(r) = 0 & \text{Si} \quad r < 2R \\ G(r) = Z_0 + C\left(\dfrac{r}{2R} - 1\right) & \text{Si} \quad r \geq 2R \end{cases} \tag{I.1}$$

où Z_0 et C=15,5 représentent respectivement le nombre de coordination initial moyen et la pente de la fonction G(r).

Pour évaluer Z en fonction de D, les investigateurs de l'approche microscopique utilisent plusieurs hypothèses et conceptions, telles que :

- l'assimilation de la densification par le grossissement concentrique des particules ;
- les développements limités du 1er et 3ème ordre pour le stade I ;
- les cellules de Voronoï et le volume en excès par rapport à celles-ci ;
- l'approximation de la densité au stade II à celle d'une structure CFC, etc.

Ainsi, selon les hypothèses et les méthodes utilisées, plusieurs équations ont été établies (voir Tab. I.1). La comparaison de ces équations a donné lieu à la figure I.6.

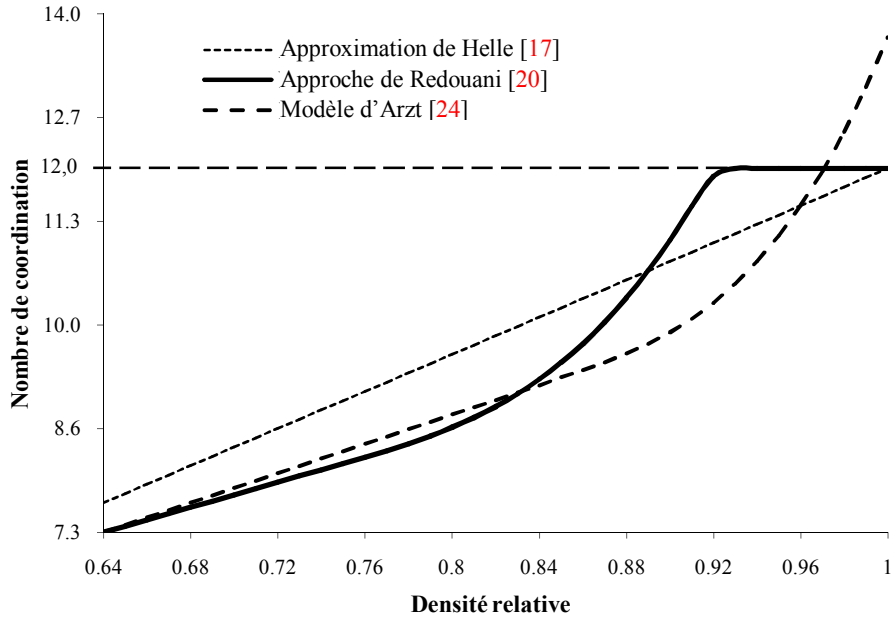


Fig. I.6. Différentes approches pour l'évolution du nombre de contacts en fonction de la densité relative pour un EAD de sphères monodimensionnelles [20].

b. Surface de contact

La surface moyenne de contact (a) représente l'aire moyenne des interfaces entre les particules en contact. Au stade I, un cou se forme entre les particules proches voisines et celui-ci s'élargie au fur et à mesure que la densification progresse (Fig. I.7).

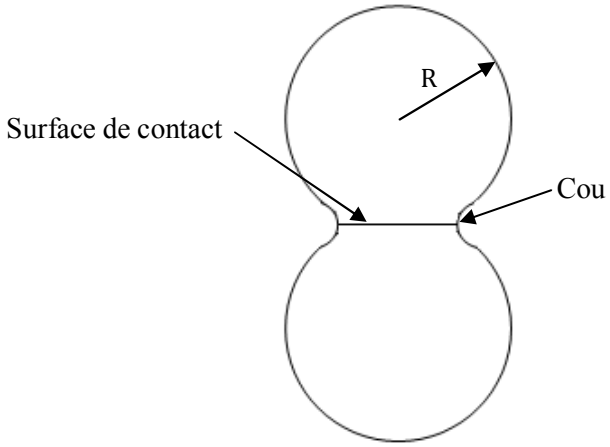


Fig. I.7. Surface de contact entre deux particules sphériques de monodimensionnelles au cours du premier stade de densification par CIC.

Pour évaluer a au premier stade de densification, les investigateurs de l'approche micromécanique utilisent les mêmes postulats que pour le nombre de coordination mais également les équations établies pour ce dernier.

Pour le deuxième stade, les pores se ferment et les particules prennent des formes particulières. Ainsi, pour les décrire, Ashby et ses collaborateurs [15-17] choisissent un tétradécaèdre (polyèdre de 14 facettes) et Redouani [18,20] préfère un dodécaèdre (polyèdre de 12 facettes). Les facettes représentent les contacts entre les particules.

Les différents modèles proposées ont conduit à différentes équations et sont rapportées dans le tableau I.1.

c. Pression efficace

La pression efficace (P_{eff}) est la pression appliquée au niveau des contacts entre les particules. En effet, lors du processus CIC, une pression externe (P) est appliquée sur la poudre. Celle-ci est ensuite transmise aux contacts par la phase solide, c'est pour quoi elle se trouve amplifiée à ce niveau.

Le premier qui a évalué P_{eff} est Molerus [25]. Ensuite, Ashby, Redouani, etc. ont introduit quelques modifications et corrections qui ont permet d'évaluer ce paramètre en fonction de D (voir Tab. I.1).

Le tableau suivant regroupe les différentes équations, selon les différentes approches, établies pour Z, a et P_{eff}.

Tab. I.1. Récapitulatif des équations des paramètres des EADs de particules sphériques de même dimension.

Paramètre	Référence	Stade I	Stade II
Nombre de coordination	[24]	0,64≤D≤0,85 $Z = Z_0 + 9{,}5(D - D_0)$	0,85≤D≤1 $Z = Z_0 + 2 + 9{,}5(D - 0{,}85) + 881(D - 0{,}85)^3$
	[17]	0,64≤D≤1 (un seul stade)	$Z = 12D$
	[18]	0,64≤D≤0,75 $Z = Z_0 + 8{,}07(D - D_0)$ 0,75≤D≤0,92 $Z = Z_0 + 0{,}89 + 8{,}07(D - 0{,}75) + 4$	0,92≤D≤1 $Z = 12$
Surface moyenne de contact	[24]	0,64≤D≤1 (un seul stade)	$a = 3(D - D_0)R^2$
	[17]	0,64≤D≤1 (un seul stade)	$a = \frac{\pi}{3}\left(\frac{D - D_0}{1 - D_0}\right)R^2$
	[18]	0,64≤D≤0,92 $a = \frac{2\pi}{3}\left(\frac{D - D_0}{D_0}\right)R^2$	Stade II :0,92≤D≤1 $a = \frac{\pi}{3}\left[1 - 5\left(\frac{1 - D}{5D}\right)\right]R^2$
Pression efficace	[17]	0,64≤D≤0,92 $P_{eff} = \frac{(1 - D_0)}{D^2(D - D_0)}P$	0,92≤D≤1 $P_{eff} = P$
	[18]	0,64≤D≤0,92 $P_{eff} = \frac{D_0}{2D(D - D_0)}P$	0,92≤D≤1 $P_{eff} = \frac{1}{1 - 5\left(\frac{1 - D}{5D}\right)^{\frac{2}{3}}}P$

I.3.3. Mécanismes de densification

Lors du processus CIC, plusieurs mécanismes interviennent et ce sont eux qui contrôlent la densification. Ces mécanismes se regroupent en mécanismes de déformation tel que la déformation plastique et le fluage en loi de puissance, en mécanismes de diffusion qui sont la diffusion intergranulaire et la diffusion en volume à partir des joints de grains et enfin aux mécanismes qui rassemble les deux (déformation et diffusion), soit le fluage de Nabarro-Herring/Coble (ou écoulement diffusionnel).

a. Déformation plastique

La déformation plastique est le processus de déformation irréversible d'un matériau qui se produit par réarrangement des positions atomiques. Ce processus est souvent associé à la présence de dislocations dans le matériau [4]. La déformation plastique se produit par le glissement des plans atomiques les uns contre les autres, comme un jeu de cartes, et ce glissement est souvent facilité par des défauts présents dans la structure cristalline du matériau [2].

Au début du processus de densification par CIC, les contacts entre particules sont très petit (ponctuels). La pression appliquée engendre ainsi une contrainte locale très élevée et provoque la déformation plastique des zones en contact entre les particules.

En se basant sur le critère de plasticité des matériaux polycristallins de type Tresca, les partisans de l'approche microscopique supposent que, dans le cas d'un chargement hydrostatique, la déformation plastique des contacts n'a lieu que si la pression efficace satisfait à la condition suivante [20] :

$$P_{eff} \geq 3\sigma_y \tag{I.2}$$

où σ_y est la limite élastique du matériaux de base de la poudre considéré.

Dans les anciennes simulations [15-18,20], ce mécanisme est considéré actif au tout début du palier du cycle opératoire, ensuite c'est les autres mécanismes qui contrôlent la densification. De ce fait, une seule équation est établie (stade I) et donne la densité relative après déformation plastique de l'EAD (D_y). En 2019, Redouani [19] a développé une nouvelle technique de simulation où la déformation plastique peut être activée tout au long du processus à condition que le critère de plasticité (Eq. I.2) soit satisfait. Ainsi, on peut évaluer Dy dans les deux stades de densification (voir Tab. I.2).

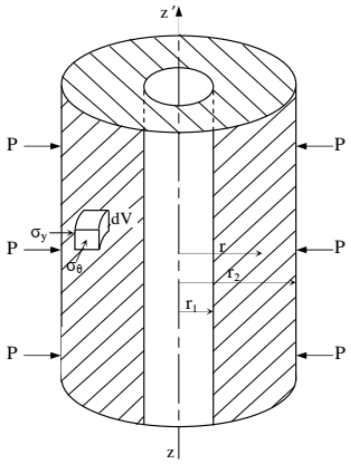
b. Fluage en loi de puissance

Quand un agrégat de poudre est soumis simultanément à une pression élevée et une haute température, comme c'est le cas lors du procédé CIC, des zones de fluage apparaissent au niveau des contacts entre particules, là où la pression appliquée se trouve amplifiée [26,20]. Ce fluage est régi par la loi en puissance suivante :

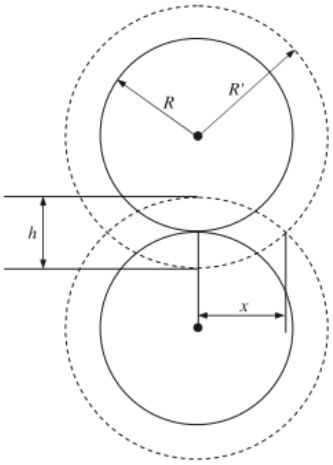
$$\dot{\varepsilon} = A\sigma^n \tag{I.3}$$

où $\dot{\varepsilon}$ est la vitesse de déformation, σ la contrainte appliquée, A et n des constantes des matériaux de base des poudres.

Afin d'évaluer la contribution du fluage en loi de puissance au premier stade de densification, Wilkinson et Ashby [26] ont estimé que la phase solide (poudre) qui entoure la porosité ouverte est interconnectée peut être modélisée par une coquille cylindrique creuse (Fig. I.8-a). Ce modèle a été abandonné dès les débuts des années 80 car le mécanisme de fluage, évalué par l'équation développée, se trouve surestimé. Ainsi, d'autres modèles ont vu le jour [15-18] en se concentrant sur le fluage du cou qui se forme entre les particules tout en assimilant la densification par un grossissement concentrique des particules de poudre (Fig. I.8-b).



a. Schéma d'une coquille cylindrique creuse soumise à une pression hydrostatique externe (Wilkinson et Ashby, 1975).



b. Imbrication de deux particules sphériques de même dimension (Redouani et Boudrahem, 2012).

Fig. I.8. Modèles géométriques à partir des quelles est calculée la contribution du fluage en loi de puissance au premier stade de densification de poudres par CIC.

Pour le stade II, le seul modèle proposé est celui d'Ashby [26] et qu'est resté utilisable jusqu'aujourd'hui. Il stipule que le système matière-pore correspond à une coquille sphérique tel que montré par la figure I.9.

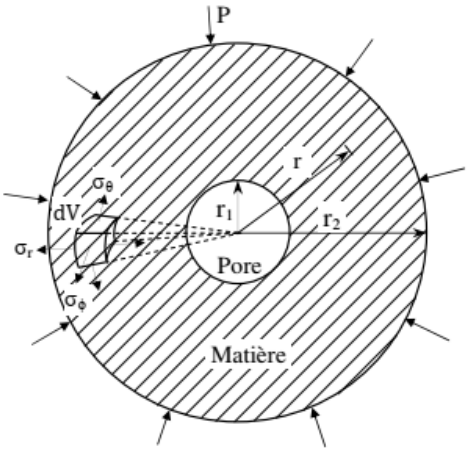


Fig. I.9. Schéma d'une coquille sphérique englobant une porosité où r_1 et r_2 sont respectivement les rayons interne et externe de la coquille [26].

Les différentes équations établies sont données dans le tableau I.2.

c. *Diffusion*

Deux mécanismes sont à considérer dans ce cas. Il s'agit de la :

- Diffusion intergranulaire
- Diffusion en volume à partir du joint de grain.

La diffusion en volume à partir de joint de grain correspond au mécanisme de transport de matière (atomes ou ions) à partir du joint entre les particules vers le cou en passant par la phase solide (particules).

Toutes les études menées jusqu'ici ont montré que ce mécanisme contribue très peu à la densification. Cependant, son importance apparait dans la consolidation du produit final.

Pour la diffusion intergranulaire, elle sera traitée de manière détaillée dans le chapitre II de ce manuscrit. Néanmoins, les équations établies seront présentées dans le tableau I.2.

d. *Fluage diffusionnel*

Quand les grains cristallographiques ont une taille moyenne beaucoup plus petites que celle des particules, un mécanisme de déformation par écoulement diffusionnel (ou fluage de Nabarro-Herring/Coble) doit être pris en compte pour simuler la densification par CIC. Ce mécanisme a été pris en compte dans les simulations développées par Ashby et ses collaborateurs à partir de l'année 1985 [20].

L'équation de la vitesse d'écoulement diffusionnel utilisée est [17] :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{12\Omega}{kT\overline{G}^2}\left(D_v + \frac{\pi\delta D_b}{\overline{G}}\right)\sigma \qquad (I.4)$$

où Ω le volume atomique, k la constante de Boltzmann, T la température, D_v le coefficient de diffusion en volume, $\overline{G}$ est la taille moyenne des grains cristallographiques dans les particules de poudre, δ l'épaisseur des joints de grains (contacts entre particules), D_b le coefficient de diffusion intergranulaire et 12 le nombre de proches voisins de la particule de poudre.

On remarque à partir de l'équation I.4 que l'écoulement diffusionnel prend en compte les deux mécanismes de diffusion (intergranulaire et en volume) et régie par la loi de fluage en loi de puissance (avec la constante n=1). Les équations des contributions à la densification de ce mécanisme sont également données dans le tableau I.2.

Tab. I.2. Récapitulatif des équations des mécanismes de densification.

Mécanisme	Référence	Satde I	Stade 2
Déformation plastique	[15]	$D_y = \left[\frac{(1-D_0)P}{1{,}3\sigma_y} + D_0^3\right]^{1/3}$	
	[18,19]	$D_y = \frac{D_0}{2}\left[1+\left(1+\frac{2}{3D_0}\frac{P}{\sigma_y}\right)^{1/2}\right]$	$D_y = 1-\exp\left(-\frac{3}{2}\frac{P}{\sigma_y}\right)$
Fluage en loi de puissance	[26]	$\frac{dD}{dt} = 3AD_0^{1/3}D^{2(1/3-n)}\left(\frac{D-D_0}{1-D_0}\right)^{1/2-n}\left(\frac{P}{3}\right)^n$	$\frac{dD}{dt} = \frac{3}{2}A\frac{D(1-D)}{\left[1-(1-D)^{1/n}\right]^n}\left(\frac{3}{2n}P\right)^n$
	[18]	$\frac{dD}{dt} = 2A\left(\frac{D_0}{D}\right)^{1/3}\left[\frac{D(D-D_0)}{D_0}\right]^{1-n}\left(\frac{P}{6}\right)^n$	$\frac{dD}{dt} = \frac{3}{2}A\frac{D(1-D)}{\left[1-(1-D)^{1/n}\right]^n}\left(\frac{3}{2n}P\right)^n$
Diffusion intergranulaire	[15,17]	$\frac{dD}{dt} = 43\frac{\Omega\delta D_b}{kTR^3}\left(\frac{1-D_0}{D-D_0}\right)^2 P$	$\frac{dD}{dt} = 270\frac{\Omega\delta D_b}{KTR^3}(1-D)^{1/2}P$
	[18]	$\frac{dD}{dt} = 72\frac{\delta D_b\Omega}{kTR^3}\frac{D_0^{5/3}D^{1/3}}{(D-D_0)g(D)}P$ $g(D) = \left[(D/D_0)^{1/3}-1\right]\left\{2Z_0 + C\left[(D/D_0)^{1/3}-1\right]\right\}$	$\frac{dD}{dt} = 27\frac{\delta D_b\Omega}{kTR^3}\left\{D^2\Big/\left[1-5\left(\frac{1-D}{5D}\right)^{2/3}\right]\right\}P$
Diffusion en volume à partir du joint	[15,17]	$\frac{dD}{dt} = 43\frac{\Omega D_v}{kTR^2}\frac{(1-D_0)^2}{(D-D_0)}P$	$\frac{dD}{dt} = 149{,}5\frac{\Omega D_v}{KTR^2}(1-D)^{5/6}P$
	[18]	$\frac{dD}{dt} = 59\frac{D_v\Omega}{kTR^2}\frac{D_0^{7/6}D^{1/3}}{(D-D_0)^{1/2}g(D)}P$	$\frac{dD}{dt} = 15\frac{D_v\Omega}{kTR^2}\left\{D^2\left(\frac{1-D}{5D}\right)^{1/3}\Big/\left[1-5\left(\frac{1-D}{5D}\right)^{2/3}\right]\right\}P$
Fluage N-H/C	[17]	$\frac{dD}{dt} = 14{,}3\frac{\Omega}{kT\bar{G}^2}\left(\frac{D_0}{D^4}\right)^{1/3}\left(\frac{1-D_0}{D-D_0}\right)^{1/2}\left(D_v+\frac{\pi\delta D_b}{\bar{G}}\right)P$	$\frac{dD}{dt} = 31{,}5\frac{\Omega}{kT\bar{G}^2}(1-D)\left(D_v+\frac{\pi\delta D_b}{\bar{G}}\right)P$
	[18]	$\frac{dD}{dt} = 4\frac{\Omega}{kT\bar{G}^2}\left(\frac{D_0}{D}\right)^{1/3}\left(D_v+\frac{\pi\delta D_b}{\bar{G}}\right)P$	$\frac{dD}{dt} = 27\frac{\Omega}{kT\bar{G}^2}(1-D)\left(D_v+\frac{\pi\delta D_b}{\bar{G}}\right)P$

I.3.4. Simulation numérique

La simulation numérique du processus CIC permet de prédire l'évolution de la densité relative en fonction des paramètres des cycles opératoire (temps, température et pression). Ashby et ses collaborateurs [15-17] utilisent une méthode de simulation en considérant que la déformation plastique s'opère uniquement au tout début du palier, ensuite c'est les mécanismes dépendant du temps (fluage et diffusion) qui poursuivent la densification. D'autre part, un seul paramètre (température ou pression) est considéré variable, l'autre est gardé constant.

Afin de palier à certains inconvénients de la méthode décrite précédemment, Redouani (en 2019) [19] a proposé une nouvelle technique (Fig. I.10) qui prend en compte la densification réalisée au cours de la rampe des cycles CIC.

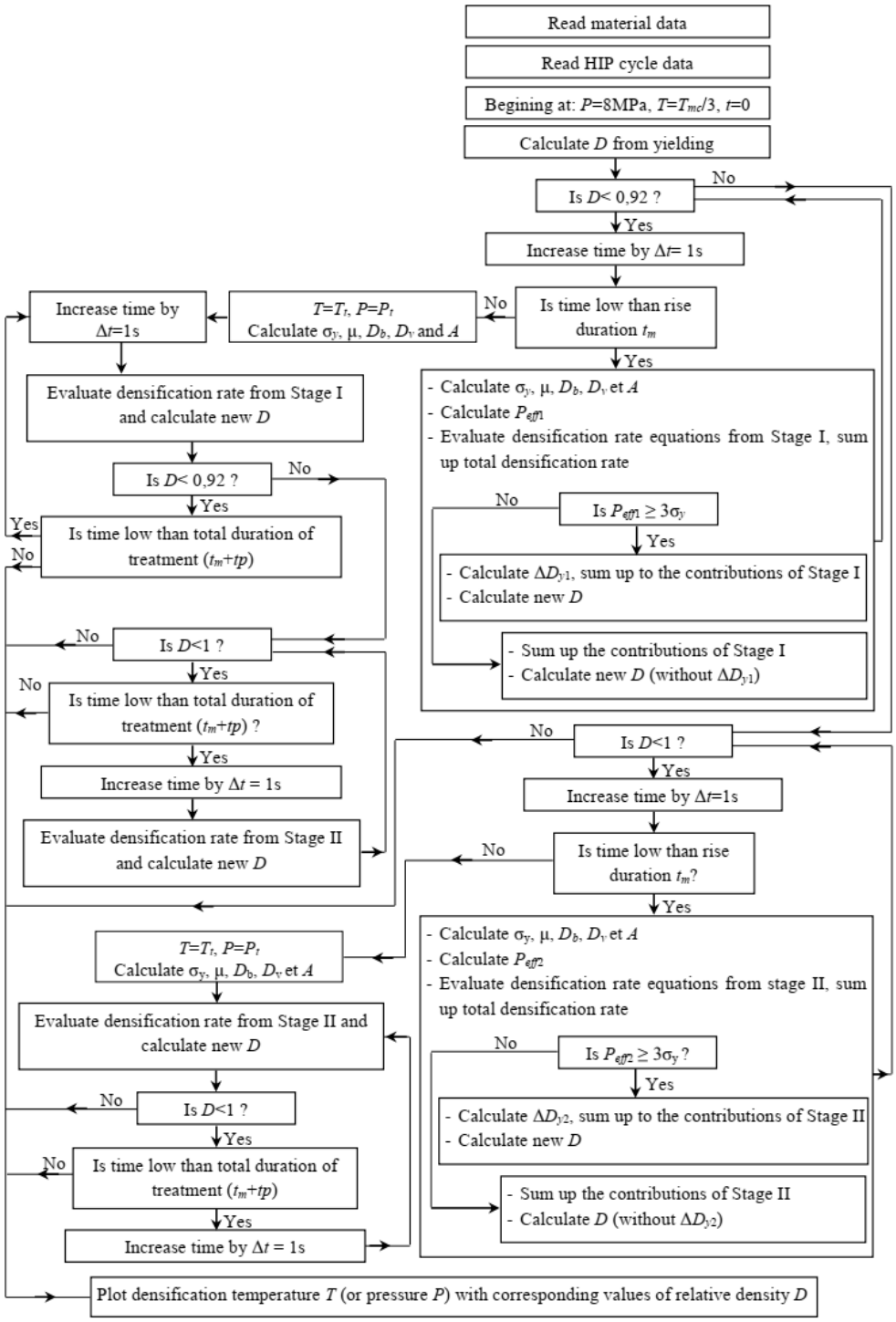


Fig. I.10. Diagramme de simulation CIC prenant en compte la rampe des cycles opératoires [19].

Les résultats des simulations sont représentés sous forme de diagrammes (ou cartes) de densification. Ce sont des abaques avec des courbes qui indiquent l'évolution de la densité relative du comprimé en fonction de la température (ou de la pression) pour différents temps de traitement. Un exemple de ces diagrammes est donné par la figure I.11 pour la poudre de tungstène.

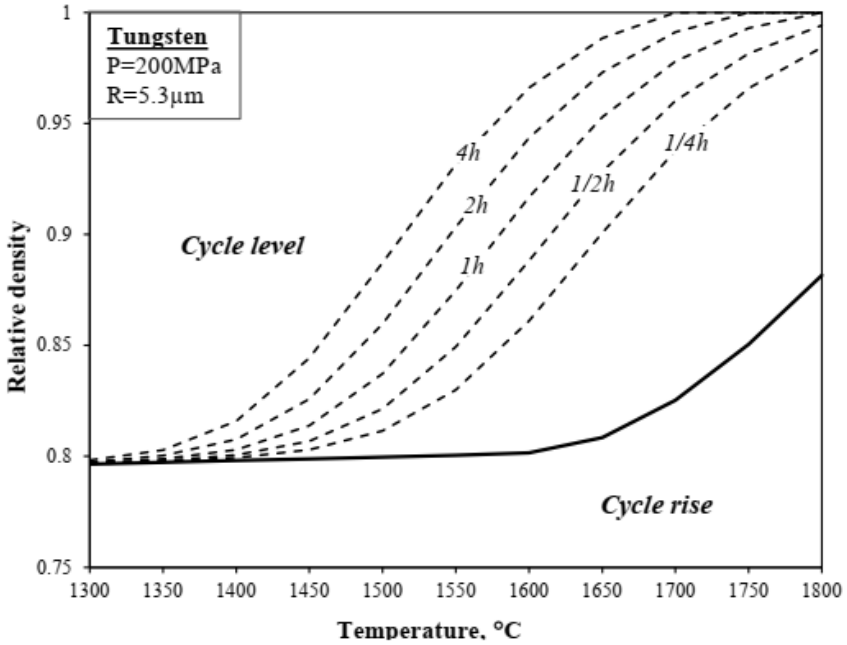


Fig. I.11. Diagramme de densification par CIC de la poudre de tungstène avec une pression du palier de 200MPa [19].

I.4. CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons passé en revue le procédé de compression isostatique à chaud de poudre. Il a été question de mettre en exergue les raisons et les étapes de modélisation de ce procédé. Néanmoins, nous nous sommes limités à présenter les systèmes modèles relatifs aux particules sphériques monodimensionnelles. Cet aspect permet d'appréhender le processus de densification par CIC avant de s'engager dans les calculs relatifs aux particules bidimensionnelles.

CHAPITRE II :

ASPECTS PHÉNOMÉNOLOGIQUES DE LA DIFFUSION

II.1. INTRODUCTION

Lors du frittage en phase solide, les mécanismes de transfert de matière (diffusion) jouent un rôle primordial dans la consolidation du produit finale. Dans le cas de la CIC, la ce phénomène contribue même à la densification et il peut aller jusqu'à le contrôle de la densification quant il s'agit de matériaux durs tels que le tungstène et les céramiques.

Un inventaire plus au moins général du phénomène de diffusion fera l'objet donc de ce chapitre. Les différents aspects relatifs à la diffusion intergranulaire (définition, contribution, modélisation, etc.) y seront également exposés.

II.2. PHENOMENE DE DIFFUSION

II.2.1. Définition

La diffusion est un phénomène de transport irréversible qui tend à homogénéiser la composition du milieu. Dans le cas d'un mélange binaire et en l'absence des gradients de température et de pression, la diffusion se définie par le processus par lequel les atomes, les molécules ou les ions se déplacent d'une région de haute concentration vers une région de faible concentration [27]. Dans le cas le plus général, la description précédente reste le plus souvent valable, mais l'on connaît des contre-exemples, où l'une des espèces migre d'une région de plus faible concentration vers une autre de concentration supérieure [28].

En physique, nous pouvons envisager une définition un peu plus précise. La diffusion est un déplacement aléatoire d'atomes ou de lacunes dans le réseau cristallin (migration), provoqué par l'agitation thermique, dont l'amplitude est au moins égale à une distance interatomique.
La diffusion a été observée au départ sur des cas simples pour comprendre les mécanismes au niveau du réseau cristallin et pour déterminer les paramètres physiques qui la caractérisent (coefficients de diffusion, énergies d'activation, facteurs de fréquence).

D'une manière approximative on peut considérer que la diffusion à l'état solide se manifeste seulement à haute température, approximativement entre $T_f/3$ et T_f (T_f étant la température de fusion du métal). Elle se produit lorsqu'existent des différences de composition chimique entre des zones voisines du même métal; elle tend à égaliser les concentrations. C'est l'agitation thermique qui provoque les déplacements des atomes, déplacements effectués depuis les zones riches en soluté vers les zones pauvres en soluté (voir Fig. II.1) [29].

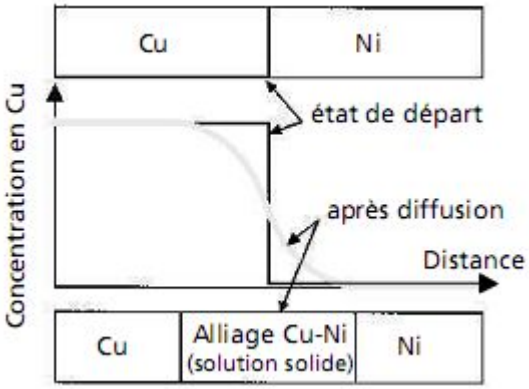


Fig. II.1. Expérience de la diffusion [29].

Aujourd'hui, les valeurs numériques propres à de nombreux systèmes (métal pur, impuretés dans un métal pur, alliages binaires, alliages ternaires, etc.) permettent de comprendre les applications possibles et existantes de ces recherches dans des domaines tels que le frittage, les traitements de surface, le soudage, la corrosion : connaissant les constantes de diffusion, on peut prévoir déjà dans des cas simples (carburation des aciers par exemple) les temps et les températures de traitement thermique [30].

Les phénomènes de diffusion régissent la cinétique de nombreux processus métallurgiques tels que [31] :

- la solidification,
- l'homogénéisation par recuit des alliages,
- les transformations de phases (à l'exception des transformations martensitiques),
- la précipitation,
- la restauration,
- la recristallisation.

II.2.2. Mécanismes de diffusion

Sous l'effet de l'agitation thermique, les atomes d'un solide peuvent effectuer des sauts d'un site à un site voisin au sein d'un solide, ce qui provoque leur migration progressive [32]. Quand les atomes d'un métal pur se déplacent dans leur propre réseau cristallin, on parle d'*autodiffusion*. Par contre, si l'on observe un mouvement d'atome d'un élément B (soluté) dans le réseau d'un élément A (solvant), on parle d'*hétérodiffusion*.

Les processus principaux qui sont à l'origine de ces déplacements atomiques à l'état solide sont définis par les mécanismes de diffusion. Les plus fréquents sont la diffusion lacunaire, la diffusion interstitielle, la diffusion superficielle et la diffusion aux joints de grains.

a. Diffusion lacunaire

Ce mécanisme concerne tous les cas classiques de diffusion d'atomes de substitution (autodiffusion ou hétérodiffusion). En raison de l'encombrement pris par chaque atome, la diffusion ne peut avoir lieu que s'il existe une lacune au voisinage immédiat de l'atome qui doit migrer (Fig. II.2). Cela nécessite une énergie libre qui est l'énergie d'activation de la diffusion ; c'est l'énergie minimale qu'un atome doit posséder pour passer dans une lacune voisine. On conçoit donc que ce mécanisme dépende étroitement du nombre de lacunes existantes. A une température donnée, la concentration en lacunes est de [30,33] :

$$\frac{n}{N} = C^{te} \exp \frac{-G_{\varphi}}{RT} \qquad (II.1)$$

avec n le nombre de lacunes par mole, N le nombre total d'atomes, G_{φ} l'enthalpie libre de formation de lacunes, R_g la constante des gaz parfaits et T la température.

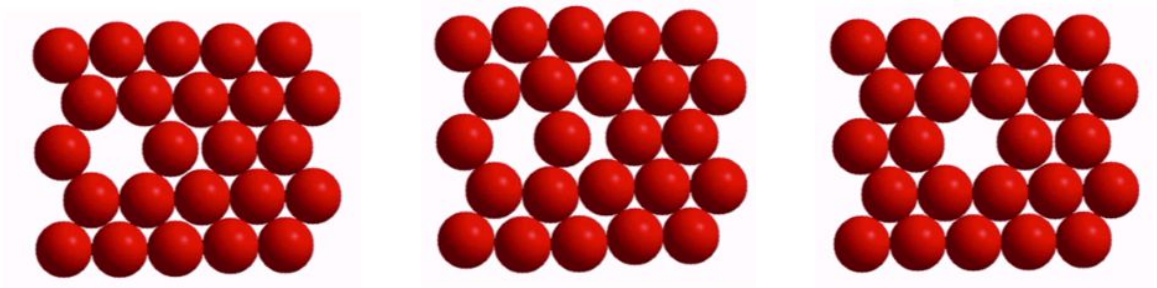


Fig. II.2. Déplacement d'un atome par diffusion lacunaire (autodiffusion) [29].

b. Diffusion interstitielle

Ce mécanisme intéresse des éléments de petits rayons ioniques, placés dans un réseau en position interstitielle. Ce n'est possible qu'avec les éléments ayant un rayon inférieur à 0,1 nm (1Å), comme le carbone, l'azote ou l'hydrogène dans le fer. L'atome interstitiel migre ainsi d'une position interstitielle à une autre position interstitielle sans nécessiter une trop grande déformation du réseau cristallin (Fig. II.3). Il y a, en général, un grand nombre de sites interstitiels et la présence de lacunes n'est plus nécessaire [30,33].

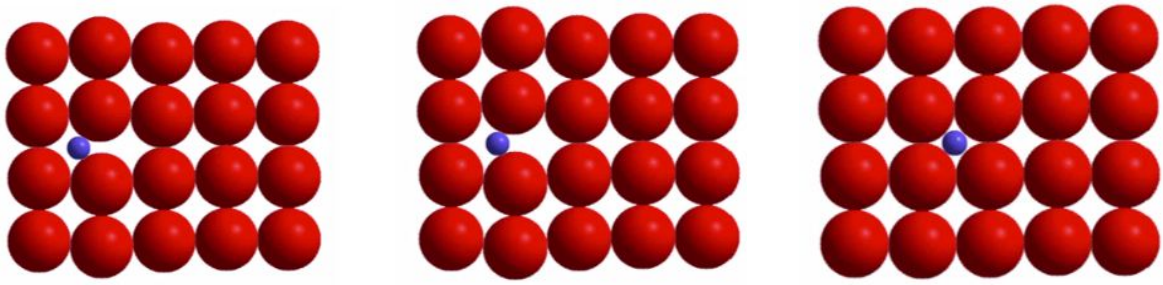


Fig. II.3. Déplacement d'un atome dans le cas de la diffusion interstitielle (hétérodiffusion) [31].

c. Diffusion superficielle

A basse température, loin de T_f (par exemple +200°C pour le nickel qui fond vers 1450°C, et –200°C pour le gallium dont la température de fusion se situe vers 30°C), il ne peut exister de mouvement atomique que dans les zones les plus libres du cristal, c'est-à-dire en surface où des liaisons sont coupées. On parle alors de diffusion superficielle [30].

On décrit généralement la surface d'un cristal comme une succession de terrasses de grande densité atomique séparées par des marches. On conçoit donc qu'au cours de sa migration à grande distance sur la surface, un atome devra nécessairement se propager sur les terrasses et franchir les marches qui les bordent [34]. C'est le phénomène généralement observé lors des traitements de surface (Nitruration, cémentation, etc.).

d. Diffusion dans un joint de grain

Les joints de grains, régions où le réseau cristallin est particulièrement perturbé, jouent un rôle important dans les phénomènes de diffusion, en particulier dans le domaine 0,3 T_f - 0,5 T_f (§ 1.2). Les atomes migrent alors préférentiellement en échangeant leurs positions avec les défauts du joint de grain [30]. Il s'agit de la diffusion intergranulaire (voir § II.3).

II.2.3. Lois de diffusion

C'est en 1855 que les bases théoriques des phénomènes de diffusion ont été établies par Fick, appelées communément les deux lois de Fick. Ce sont des lois macroscopiques établies par analogie avec des phénomènes similaires à la diffusion, tels que la conduction thermique et électrique [27,30]. Ces lois font intervenir une grandeur physique importante, appelée le coefficient de diffusion. Ce coefficient est défini par la loi d'Arrhénius.

a. 1ère Loi de Fick

La première loi de Fick décrit le flux de diffusion de particules dans un milieu homogène en fonction du gradient de concentration. Elle peut être utilisée pour décrire la diffusion dans les solides, les liquides et les gaz [35].

Envisageons deux plans atomiques (1) et (2) distants de a et de surface unité (Fig. II.4). Intéressons-nous à la diffusion d'une espèce dans la solution binaire étudiée. Soit N_1 le nombre d'atomes de cette espèce dans le plan (1) et N_2 le nombre d'atomes de la même espèce dans le plan (2). La densité de flux de matière D_j traversant le plan médian (pointillés) est la somme algébrique des flux J+ et J− respectivement dans les sens positif et négatif choisis. Ce flux net est le flux macroscopique mesurable à un instant donné [31]. Il est donné par :

$$J = -D' \frac{\partial C}{\partial x} \qquad \text{(II.2)}$$

où D' représente le coefficient de diffusion et C la concentration.

Le signe moins indique que, physiquement, le flux d'atomes va en sens inverse du gradient $\partial C/\partial x$ [30].

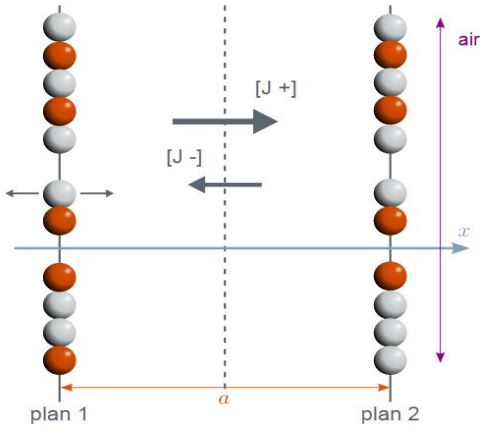


Fig. II.4. Démonstration de la première loi de Fick [31].

b. 2ème Loi de Fick

Elle exprime non plus un régime permanent de diffusion (tel que pour la 1ère loi de Fick), mais un régime transitoire où l'on suppose $\partial c/\partial t \neq 0$. La variation de la concentration en fonction du temps est alors définie par la relation [30] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(D' \frac{\partial C}{\partial x} \right) \qquad \text{(II.3)}$$

Cette loi signifie que la vitesse du changement de composition en un point donné est proportionnelle à la vitesse de variation de l'écart de concentration (le coefficient de proportionnalité est D'). Elle peut être appliquée à l'hétérodiffusion (diffusion d'un élément dans un autre élément) mais, en toute rigueur, elle n'est exacte que pour l'autodiffusion [29].

c. *Loi d'Arrhénius*

Le coefficient de diffusion D' est caractéristique d'une mobilité à une température définie. Ce phénomène, lié à l'agitation des atomes, se modifie donc avec la température dans le même sens que la concentration en défauts et l'entropie du système. Il obéit par conséquent, comme tous les phénomènes activés thermiquement, à une relation exponentielle, du type équation de Boltzmann. Appelée pour l'état solide relation d'Arrhénius, elle s'écrit sous la forme [29,30] :

$$D' = D_0\left(-\frac{Q}{R_g T}\right) \qquad \text{(II.4)}$$

avec Q : énergie d'activation du processus de diffusion (cal/at·g ou eV/at·g avec $1eV=0{,}38\cdot10^{-9}$ cal $= 1{,}6\cdot10^{-19}$ J),

T : température absolue (K),

R_g : constante des gaz parfaits (1,987cal/K·mole ou $5{,}192\cdot10^{19}$eV/K·mole ou 8,314J/K·mole),

D_0 : constante appelée facteur de fréquence.

On notera l'importance de l'influence de la température ; au voisinage du point de fusion, une variation de 20°C fait varier le coefficient D' d'un facteur 2. De même, le passage à l'état liquide entraîne une discontinuité ; la valeur de D' est environ 10 000 fois plus élevée dans le liquide qu'elle ne l'est en phase solide au voisinage de la fusion. Le coefficient D' et donc la vitesse de diffusion diminue très fortement si la température baisse pour devenir quasi nulle. Très généralement, dans le cas des métaux, on admettra que la vitesse de diffusion est très faible ou quasi nulle aux environs de l'ambiante [33].

II.3. CONTRIBUTION DE LA DIFFUSION A LA DENSIFICATION

Lors du frittage en phase solide, il a été démontré que le transfert de matière est directement relié aux courbures de surfaces qui génèrent des contraintes à l'intérieur des grains de poudre. Ces contraintes s'expriment au travers de la loi de Laplace suivante :

$$\Delta P = P_1 - P_2 = \gamma\left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}\right) \qquad \text{(II.5)}$$

où ΔP est la différence de pression qui existe de part et d'autre de deux phases séparées par une surface courbe (P_1 est la pression à la phase I et P_2 la pression à la phase II), r_1 et r_2 sont les rayons principaux de courbure de l'interface en un point donné et γ est la tension superficielle de cette interface.

L'application de l'équation de Laplace au cas précis du frittage de deux sphères (Fig. II.5) permet d'identifier les mécanismes qui provoquent un transfert de matière de la surface libre des particules vers le cou [20].

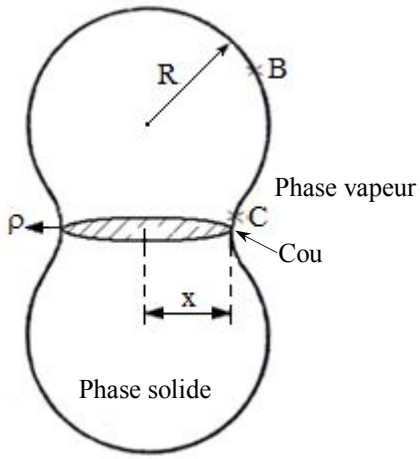


Fig. I.5. Schéma de deux particules sphériques au cours du frittage [20].

La loi de Laplace s'écrit alors :

$$P_s - P_v = \Delta P_s - \Delta P_v = \gamma_{sv}\left(\frac{1}{x} - \frac{1}{\rho}\right) \qquad \text{(II.6)}$$

où ΔP_s et ΔP_v représentent les gradients de pression qui apparaissent respectivement dans les deux phases solide et vapeur en équilibre. R, x et ρ représentent respectivement les rayons des deux sphères, du cou et de courbure de la surface extérieure du cou.

Le développement de l'équation II.6 par Redouani [20] a démontré que la concentration de lacunes au point C est supérieure à celle au point B. Il peut se produire donc un écoulement de matière par diffusion du point B (surface libre des particules) au point C (porosité). La figure

II.6 représente les différents chemins qui peuvent être suivis par la matière lors du processus de frittage des deux particules.

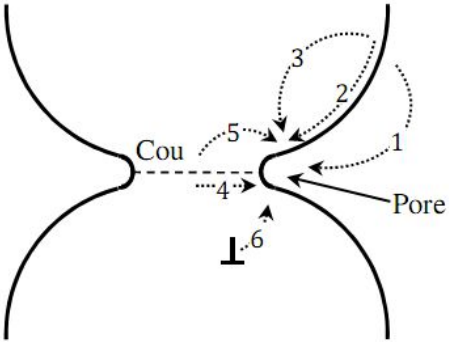


Fig. I.6. Chemins de transport de matière au cours du frittage en phase solide [20].

On suppose que ces six mécanismes distincts contribuent au frittage d'un agrégat de poudres. Ces mécanismes sont répertoriés dans le tableau I.1.

Tab. II.1. Différents mécanismes qui interviennent au cours du frittage en phase solide [20].

Mécanisme	Type de transport	Source de matière
1	Transport en phase vapeur	Surface
2	Diffusion en surface	Surface
3	Diffusion en volume	Surface
4	Diffusion dans les joints de grains	Joints de grains
5	Diffusion en volume	Joints de grains
6	Diffusion en volume	Dislocations

Il est évident qu'aucun de ces processus de transport de matière n'aura les mêmes conséquences sur l'évolution de la microstructure du matériau fritté. En effet, les mécanismes de diffusion qui contribuent à la densification sont ceux qui provoquent un transfert de matière des surfaces des contacts (joints) qui se forment entre les particules vers les surfaces libres des particules (porosités) ; deux mécanismes sont alors pris en compte [20,36] :

- la diffusion intergranulaire qui correspond à un déplacement de matière du joint et à travers celui-ci vers les porosités (mécanisme 4) ;
- la diffusion en volume à partir du joint (contact) mais qui s'effectue à travers le réseau atomique de la phase solide (mécanisme 5).

Plusieurs études menées sur la simulation de la CIC [19,18,20], tels que le tungstène et les céramiques, ont montré que la contribution de la diffusion en volume à la densification des matériaux durs est négligeable. En effet, la vitesse très faible de ce mécanisme lors du

processus de densification fait que le mécanisme de diffusion intergranulaire prenne le dessus (voir Fig. II.7). Ainsi, nous allons nous intéressé dans ce qui suit à la méthode de modélisation de ce dernier.

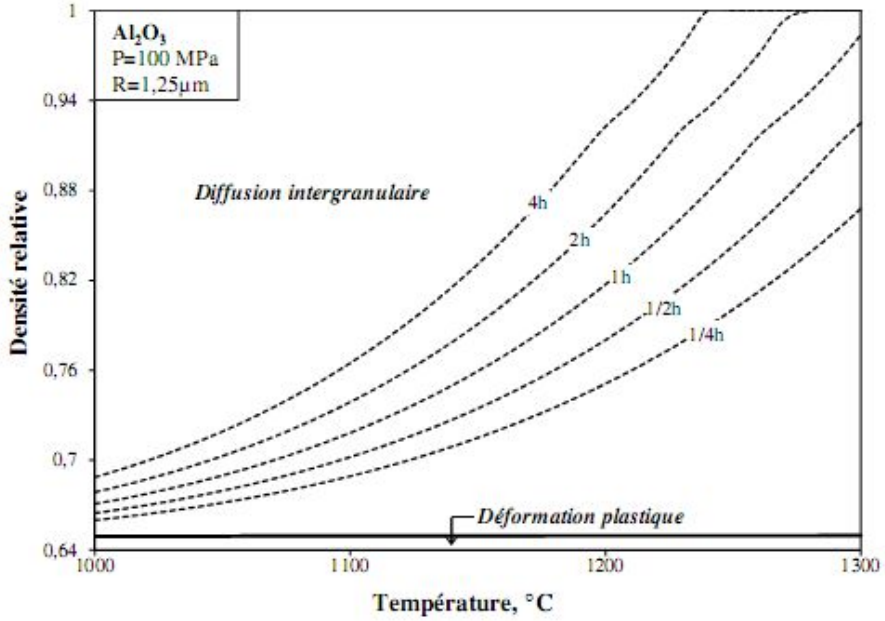


Fig. II.7. Diagramme de densification par CIC de poudre d'alumine soumise à une pression de 100MPa [20].

II.4. MODELISATION DE LA DIFFUSION INTERGRANULAIRE

Le mécanisme de diffusion aux joints de grains est souvent prédominant dans le frittage de poudres métalliques. Quand une pression s'ajoute au frittage, tel qu'est le cas pour la CIC, ce mécanisme est prédominant dans le cas des poudres dures, et dans tous les cas il joue un rôle considérable dans la consolidation des pièces frittées.

Outre les différentes équations relatives au phénomène de diffusion (telles que les lois de Fick), la modélisation de la diffusion intergranulaire fait intervenir les paramètres des EADs pour évaluer ce mécanisme au cours de la densification (Z, a et P_{eff}). Les équations de ces paramètres présentées dans le chapitre I (§ I.3.2) sont donc nécessaires.

Le transfert de matière par diffusion intergranulaire est régi par la migration des lacunes des surfaces des pores (zones sous tension) vers les centres des cous (contacts). On peut utiliser la 1ère loi de Fick pour évaluer le flux de lacunes qui est à l'origine de ces phénomènes. En effet, comme on est en présence d'une symétrie radiale, l'équation II.2 peut s'écrire de la manière suivante :

$$J_L = -D'_L \frac{\Delta C_L}{\Delta x} \qquad (II.7)$$

où D'_L est le coefficient de diffusion en lacunes et C_L leur concentration.

La variation du volume du cou par unité du temps engendrée par ce flux de lacunes est [20] :

$$\frac{dV}{dt} = J_L S_L \Omega \qquad (II.8)$$

où S_L est la surface traversée par les lacunes et Ω le volume atomique.

Au stade initial de densification (stade I), le volume de matière à déposer sur la surface des cous d'une particule par diffusion intergranulaire par unité de temps est évalué par Arzt [15] à l'aide de l'équation :

$$\frac{dV}{dt} = \frac{4\pi\delta D_b}{kT} \Omega Z P_{eff} \qquad (II.9)$$

où δ est l'épaisseur moyenne des joints de grains, D_b le coefficient de diffusion intergranulaire, k la constante de Boltzmann et T la température de traitement.

Le développement des calculs, ont permis d'établir l'expression de la vitesse de densification correspondant au mécanisme de diffusion intergranulaire au premier stade de densification, on obtient :

$$\Delta D = \frac{12 D^{1/3} D_0^{2/3}}{g(D)} \frac{\delta D_b \Omega Z}{kTR^3} P_{eff} \Delta t \qquad (II.10)$$

où

$$g(D) = \left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]\left\{2Z_0 + C\left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]\right\} \qquad (II.11)$$

Ce résultat donne la contribution de la diffusion intergranulaire en tenant compte de l'évolution du nombre de coordination qui se produit au cours de la densification. On insiste sur le fait que pour ce mécanisme, c'est la surface moyenne de contact qui détermine le taux de densification et non l'aire totale de contact. Par conséquent, la contribution à la densification de la diffusion est d'autant plus importante que le nombre de petits contacts est élevé [15].

Ashby et ses collaborateurs ont proposé en 1985 [17] une équation simplifiée et approximative de l'équation II.10 pour évaluer la contribution de la diffusion intergranulaire à la densification par CIC. Elle est donnée par :

$$\Delta D = \frac{43(1 - D_0)^2}{(D - D_0)^2} \frac{\delta D_b \Omega}{kTR^3} P \Delta t \qquad (II.12)$$

Redouani [18,20] a proposé une nouvelle approche pour l'étude de la densification des EADs monodimensionnels. Par conséquent, de nouvelles expressions des paramètres des EADs sont développées. Ceci a évidement affecté les équations des mécanismes de densification. Il propose donc une nouvelle équation pour la diffusion intergranulaire au stade I. Elle s'écrit :

$$\Delta D = 72\frac{\delta D_b \Omega}{kTR^3}\frac{D_0^{5/3} D^{1/3}}{(D-D_0)g(D)}P\Delta t \qquad (II.13)$$

Dans le stade II, la contribution à la densification par CIC de ce mécanisme a été évaluée par Arzt [15] par l'équation:

$$\Delta D = 54\left\{\frac{1-(1-D)^{2/3}}{3(1-D)^{2/3}-[1+(1-D)^{2/3}]\ln(1-D)-3}\right\}\frac{\Omega\delta D_b}{kTR^3}P\Delta t \qquad (II.14)$$

Une expression approximative et plus simplifiée de l'équation II.14 a été également proposée par Ashby et ses collaborateurs en 1985 [17], soit :

$$\Delta D = 270\sqrt{1-D}\,\frac{\Omega\delta D_b}{kTR^3}P\Delta t \qquad (II.14)$$

De même que pour l'équation II.13, en 2012, Redouani [18] a proposé une nouvelle équation pour le stade II, soit :

$$\Delta D = 27\frac{\delta D_b \Omega}{kTR^3}\frac{D^2}{\left[1-5\left(\frac{1-D}{5D}\right)^{2/3}\right]}P\Delta t \qquad (II.15)$$

II.5. CONCLUSION

Il faut bien noter que la formulation présentée précédemment correspond aux empilements aléatoires denses de particules sphériques de même rayon. Ceci constitue évidement la base théorique de l'approche micromécanique. Cependant, l'aspect monodimensionnel des particules de poudres est très loin de la réalité. En effet, la littérature a montré que les agrégats de poudres densifiés par CIC présentent une dispersion, parfois même importante, de la granulométrie. Ceci influe relativement, parfois considérablement, sur les résultats des simulations. En conséquence, il y a lieu de réfléchir à des modèles qui prennent en charge néanmoins une partie de cette distribution tel que par exemple un système de particules bidimensionnelles.

CHAPITRE III :

ÉVALUATION DE LA DIFFUSION INTERGRANULAIRE

III.1. INTRODUCTION

Comme nous l'avons déjà signalé ultérieurement, la modélisation du processus CIC en utilisant l'approche micromécanique repose essentiellement sur l'étude des EADs de particules sphériques. Donc pour évaluer la contribution du mécanisme de diffusion intergranulaire à la densification des poudres, nous sommes tenus d'appréhender l'évolution de la morphologie des particules de poudres lors de la densification.

Dans ce chapitre, nous allons tenter d'établir de nouvelles équations de la diffusion intergranulaire dans les deux stades de densification en considérons des particules sphériques à deux rayons. Il faut noter, par ailleurs, que nous allons nous servir des travaux récents de Khilouf et Redouani [37,38] pour réaliser ce travail. En effet, ces derniers ont pu proposer un système modèle permettant d'estimer les paramètres des EADs bidimensionnels (Z, a et P_{eff}) en utilisant des particules sphériques à deux rayons (R_1 et R_2). Ces travaux feront l'objet d'une synthèse dans le paragraphe III.2.

Une fois les équations du mécanisme de diffusion sont établies, elles seront comparées à celles des travaux antérieures citées dans le chapitre précédent.

III.2. EAD BIDIMENSIONNEL

III.2.1. Description

La figure III.1 représente une poudre d'un acier inoxydable 316L obtenue par atomisation à gaz. A partir de cette image, on remarque la distribution importante de la taille des particules de poudre. Cependant, nous somme contraint de choisir une approximation raisonnable afin de simplifier le problème. Ainsi, il nous semble adéquat de représenter l'agrégat de poudre par des sphères à deux rayons.

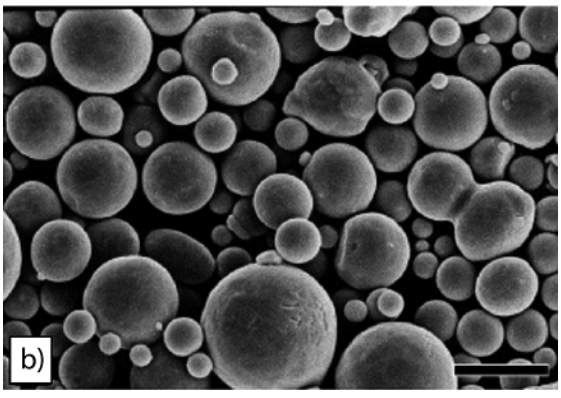


Fig. III.1. Image MEB d'une poudre d'un acier inoxydable 316L obtenue par atomisation à gaz [39].

Le modèle choisi dans ce cas pour les agrégats de poudres est un EAD de sphères bidimensionnelles (Fig.III.2). Dans ce qui suit, nous présenteront mes expressions établies par Khilouf pour le nombre de coordination, la surface de contact et la pression efficace.

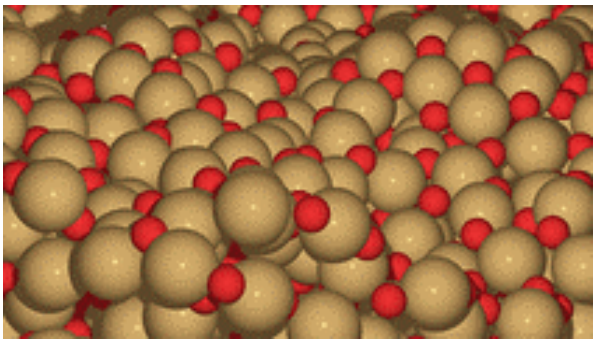


Fig. III.2. Présentation schématique d'un EAD bidimensionnel [40].

III.2.2. Nombre de coordination

On considère que Z évolue en deux étapes au premier stade de densification. Quand D est proche de sa valeur initiale ($0{,}64 \leq D_0 \leq 0{,}75$), on admet que l'expression du nombre de coordination peut être obtenue à partir du développement limité à l'ordre un de l'expression donnant le rayon des particules en fonction de la densité relative D (Eq. III.1) établie par E. Arzt [15] combinée à la distribution radiale cumulée (Eq. I.1).

$$R' = R\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} \qquad \text{(III.1)}$$

avec R' le rayon des particules après le grossissement concentrique (voir Fig. III.3).

La deuxième étape du stade I correspond à une densité relative comprise entre 0,75 et 0,92 où Z évolue rapidement jusqu'à atteindre la valeur maximale de 14. L'expression de Z est obtenue avec un développement limité de troisième à l'ordre 3.

Enfin, l'expression permettant d'évaluer Z au cours des deux stades de densification pour des EAD de particules sphériques bidimensionnelles est donnée par :

$$\begin{cases} Z = Z_0 + 8{,}07(D - 0{,}75) & \text{pour } 0{,}64 \leq D_0 \leq 0{,}75 \\ Z = Z_0 + 0{,}89 + 8{,}07(D - 0{,}75) + 903(D - 0{,}75)^3 & \text{pour } 0{,}75 < D_0 \leq 0{,}92 \\ Z = 14 & \text{pour } 0{,}92 < D_0 \leq 1 \end{cases} \qquad \text{(III.2)}$$

III.2.3. Surface de contact

La densification d'un EAD est accompagnée d'un élargissement de l'aire des contacts entre les particules. Nous avons mentionné précédemment (§ I.3.2.a) qu'au stade I le

processus de densification est modélisé par le grossissement des particules, c'est-à-dire que chaque particule sphérique augmente son rayon autour de son centre considéré fixe (Fig. III.3). Ainsi, les rayons initiaux des deux particules sont R_1 et R_2 et leurs nouveaux rayons sont respectivement R'_1et R'_2.

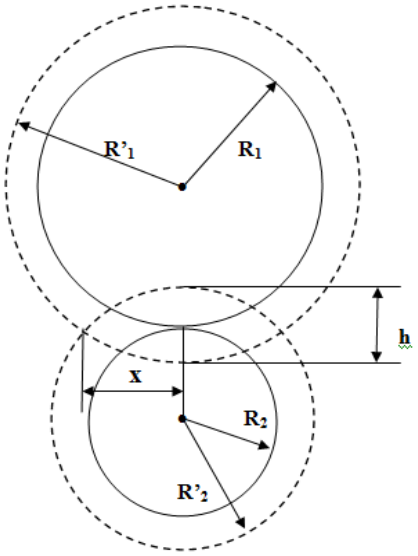


Fig. III.3. Grossissement et Imbrication de deux particules sphériques de rayons différents [37].

En reprenant l'équation III.1 et en utilisant les rayons des deux sphères, on aboutit à l'expression suivante donnant les nouveaux rayons des particules en fonction des rayons initiaux et de la densité relative, soit :

$$\begin{cases} R'_1 = R_1 \left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} \\ R'_2 = R_2 \left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} \end{cases} \quad \text{(III.3)}$$

On défini un rayon équivalent (R) pour chaque paire de particules en contact [41], soit :

$$R = 2\left(\frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2}\right) \quad \text{(III.4)}$$

Après calcul et simplification, l'équation finale de la surface moyenne de contact au premier stade de densification est donnée par :

$$a = \pi R_1 R_2 \left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right] \quad \text{(III.5)}$$

Dans l'ultime stade de densification, les pores sont isolés et de forme sphérique. Comme le nombre de contact dans ce stade est égal à 14, on adopte le tétradécaèdre (polyèdre de

Kelvin), dont les sommets sont occupés par les pores résiduels et ses 14 facettes correspondent aux surfaces de contacts, pour décrire la forme des particules (Fig. III.4).

On observe dans la figure III.2 que le polyèdre comporte deux types de facettes. Le premier correspond à des hexagones réguliers, qu'on peut adopter pour les facettes des particules de grand rayon (R_1), et le deuxième, qu'on adopte pour les facettes des particules de petit rayon (R_2), correspond à des carrés.

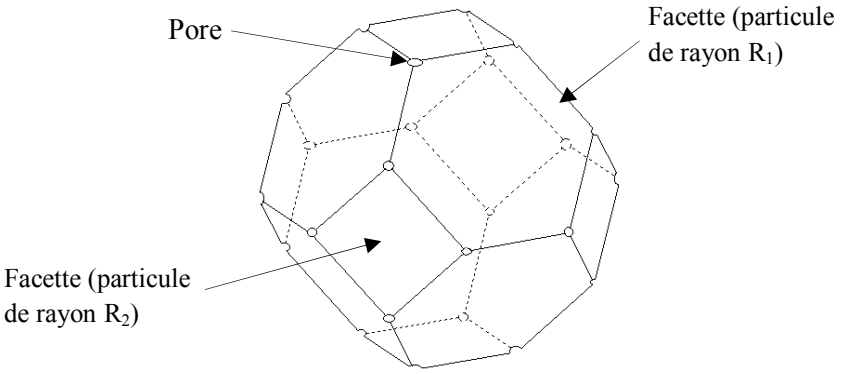


Fig. III.4. Modèle géométrique pour décrire la forme des particules bidimensionnelles au dernier stade de densification des EAD [37].

Le rayon moyen des pores sphériques en fonction de la densité relative s'exprime par :

$$r_p = R\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{1/3} \tag{III.6}$$

Comme dans le stade final Z=14, on évalue la surface moyenne de contact au deuxième stade de densification par :

$$a = \frac{8}{7}\pi\frac{(R_1R_2)^2}{(R_1+R_2)^2}\left[1-6\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{2/3}\right] \tag{III.7}$$

III.2.4. Pression efficace

La pression efficace correspond à la pression au niveau des contacts entre particules. Elle peut s'exprimer en fonction du nombre de coordination et la surface moyenne de contact par [18] :

$$P_{eff} = \frac{4\pi R^2}{aZ}P \tag{III.8}$$

Cette expression est établit pour étudier la transmission des contraintes à travers un EAD de particules sphériques.

Dans le stade I, l'expression de P_{eff} est donnée en fonction du Z, soit :

$$P_{eff} = \frac{16}{Z\left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]} \frac{R_1 R_2}{(R_1 R_2)^2} P \qquad \text{(III.9)}$$

Dans le deuxième stade $(0{,}92 \leq D < 1)$, la pression efficace est évaluée par :

$$P_{eff} = \frac{1}{\left[1 - 6\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{2/3}\right]} \qquad \text{(III.10)}$$

III.3. DIFFUSION INTERGRANULAIRE

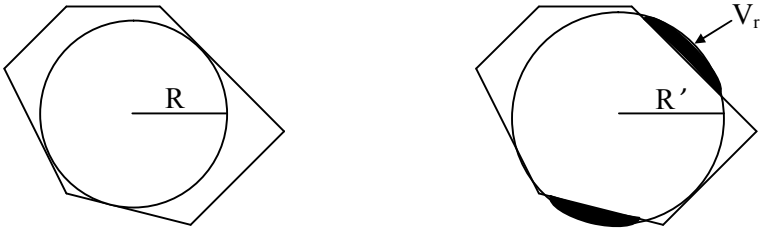
Comme nous l'avons signalé au chapitre II, la diffusion des lacunes présente une symétrie radiale. Le flux de lacunes donné par l'équation II.7 est dirigé de la surface de la porosité vers le centre du cou qui se forme entre deux particules.

Dans ce qui suit, nous allons évaluer les contributions du mécanisme de diffusion intergranulaire à la densification d'un agrégat de poudre par CIC dans les deux stades définis selon l'évolution de la morphologie des particules de poudres.

III.3.1. Stade I

Dans ce stade, les porosités sont interconnectées et les particules de l'agrégat restent distinctes.

La densification d'un EAD est simulée par un accroissement des rayons des particules autour de leurs centres qui restent fixes. Le nouveau rayon amène les particules à s'imbriquer les unes dans les autres. Des cellules appelées cellules de Voronoï sont utilisées pour déterminer le volume de matière en excès (V_r) qui apparaît (figure II.5) [20]. La distribution de ce volume de matière sur les surfaces libres des particules permet à la densification de s'opérer.



a- Avant densification b- Après densification

Fig. III.5. Formation du volume en excès (V_r) à partir de la cellule de Voronoï où R' est le nouveau rayon des particules [24].

La variation par unité de temps du volume total de matière en excès a été évaluée par Redouani [18,20], elle est donnée par :

$$\frac{dV_{ex}}{dt} = \frac{\pi}{3}\frac{R^3}{D_0^{2/3}D^{1/3}}g(D)\frac{dD}{dt} \qquad (III.11)$$

où $g(D)$ est une fonction de la densité relative donnée par :

$$g(D) = \left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]\left\{2Z_0 + C\left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]\right\} \qquad (III.12)$$

La variation par unité de temps du volume total de matière en excès est égale à la variation du volume du cou par unité du temps engendré par le flux de lacunes donnée par l'équation II.19, soit :

$$\frac{4\pi\delta D_b}{kT}\Omega Z P_{eff} = \frac{\pi}{3}\frac{R^3}{D_0^{2/3}D^{1/3}}g(D)\frac{dD}{dt} \qquad (III.13)$$

En remplaçant R et P_{eff} par leurs équations (respectivement Eq. III.4 et Eq. III.9) et après réarrangement, on obtient :

$$\frac{dD}{dt} = \frac{3\delta D_b\Omega}{2kT}\left(\frac{R_1+R_2}{R_1R_2}\right)^3 \frac{D_0^{2/3}D^{1/3}}{g(D)} Z \frac{16}{Z\left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]} \frac{R_1R_2}{(R_1+R_2)^2} P \qquad (III.14)$$

Ainsi, la contribution de la diffusion intergranulaire au premier stade de densification par CIC est donnée par :

$$\Delta D = 24\frac{\delta D_b\Omega}{kT}\frac{R_1+R_2}{(R_1R_2)^2}\frac{D_0^{2/3}D^{1/3}}{\left[\left(\frac{D}{D_0}\right)^{1/3} - 1\right]g(D)} P\Delta t \qquad (III.15)$$

III.3.2. Stade II

Dans le stade final, la porosité est fermée et la variation par unité de temps du volume d'un pore au cours de la densification est donnée par [20] :

$$\frac{dV}{dt} = -4\pi r_p^2\frac{dr_p}{dt} \qquad (III.16)$$

où r_p est le rayon du pore.

En se basant sur la forme tétraédrique des particules, le rayon des pores est donné par l'équation III.6.

En remplaçant r_p par son expression dans l'équation III.16, on obtient :

$$\frac{dV}{dt} = \frac{4\pi R^3}{18D^2}\frac{dD}{dt} \qquad \text{(III.17)}$$

Au cours de l'étape finale de densification (D > 0.92), les particules de poudre sont assimilées à des tétradécaèdres (Fig.III.4). Comme un pore est partagé entre 6 particules, la surface traversée par les lacunes est évaluée par :

$$S_L = 6\left(2\delta r_p \theta\right) \qquad \text{(III.18)}$$

où $2\delta r_p\theta$ représente la surface du pore en contact avec le joint entre deux particules (Fig.III.6). On suppose dans ce cas que l'ongle moyen est $\theta = 108°$.

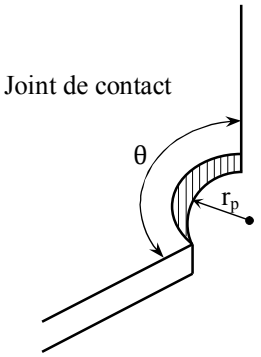


Fig. III.6. Surface du joint en contact avec la porosité [20].

La variation du volume du pore par unité de temps est donnée ainsi par [20] :

$$\frac{dV}{dt} = 7{,}2\pi D_b \delta \frac{\Omega}{kT} P_{eff} \qquad \text{(III.19)}$$

En remplaçant P_{eff} par son expression donnée par l'équation III.10 et en égalisant l'expression obtenue avec celle de l'équation III.17, on aboutit à :

$$\frac{4\pi R^3}{18D^2}\frac{dD}{dt} = 7{,}2\pi\delta D_b \frac{\Omega}{kT}\frac{D^2}{\left[1-6\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{2/3}\right]}P \qquad \text{(III.20)}$$

Après calcul, on obtient :

$$\frac{dD}{dt} = 32{,}4\frac{\delta D_b \Omega}{kTR^3}\frac{D^2}{\left[1-6\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{2/3}\right]}P \qquad \text{(III.21)}$$

Ainsi, l'expression de la contribution du mécanisme de diffusion intergranulaire au stade finale de densification par CIC est donnée par :

$$\Delta D = 4\frac{\delta D_b \Omega}{kT}\left(\frac{R_1 + R_2}{R_1 R_2}\right)^3 \frac{D^2}{\left[1 - 6\left(\frac{1-D}{6D}\right)^{2/3}\right]} P\,\Delta t \qquad \text{(III.22)}$$

III.4. APPLICATION

Le plus souvent, les résultats des simulations CIC donnent lieu u la construction des diagrammes de densification. Cependant, dans notre cas, nous allons isolés les autres mécanismes et présenter la contribution de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative. Ceci nous permettra de comparer notre approche aux différents modèles cités ultérieurement.

Les poudres à étudier sont celle du tungstène, d'alumine (Al_2O_3) et du superalliage à base de nickel. Les valeurs de leurs caractéristiques sont récapitulées dans le tableau III.1.

Tab. IV.1. Valeurs des constantes utilisées dans les simulations de la densification de poudres de tungstène, d'alumine et du superalliage à base de nickel [15,17,42,43].

Constantes	Tungstène	Alumine	Superalliage
R (m)	10^{-5}	$1{,}25 \times 10^{-6}$	50×10^{-6}
Ω (m^3)	1.59×10^{-29}	$4{,}25 \times 10^{-29}$	$1{,}1 \times 10^{-29}$
δD_{0b} ($m^3 s^{-1}$)	5.48×10^{-13}	$8{,}6 \times 10^{-10}$	$2{,}8 \times 10^{-15}$
Q_b ($KJmole^{-1}$)	378	419	115

Remarque : pour notre approche, les rayons R1 et R2 sont choisis de telle manière à ce que leur moyenne arithmétique sera égale à R (pour chacune des poudres).

Le coefficient de diffusion intergranulaire en fonction de la température peut être calculé par la loi d'Arrhénius (Eq. II.4), soit :

$$D_b = D_{0b} \exp\left(\frac{-Q_b}{R_g T}\right) \qquad \text{(III.23)}$$

D_{0b} Coefficient d'autodiffusion intergranulaire ($m^2 s^{-1}$)

Q_b Energie d'activation de la diffusion intergranulaire ($Jmol^{-1}$)

III.4.1. Comparaison entre approches

Les figures III.6, III.8 et III.10 représentent les courbes de l'évolution de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour les poudres respectivement du tungstène, de l'alumine (Al_2O_3) et d'un superalliage à base de nickel pour différents modèles (Helle, 1983 [17], Redouani, 2012 [18] et la nouvelle approche). Les paramètres de densification utilisés (pression et température) sont donnés dans les figures selon les poudres.

Pour les figures III.7, III.9 et III.11, elles représentent les mêmes résultats que les figures précédentes respectivement mais avec une échelle algorithmique. Ceci permet de mettre en évidence les différences quand les valeurs sont très faibles.

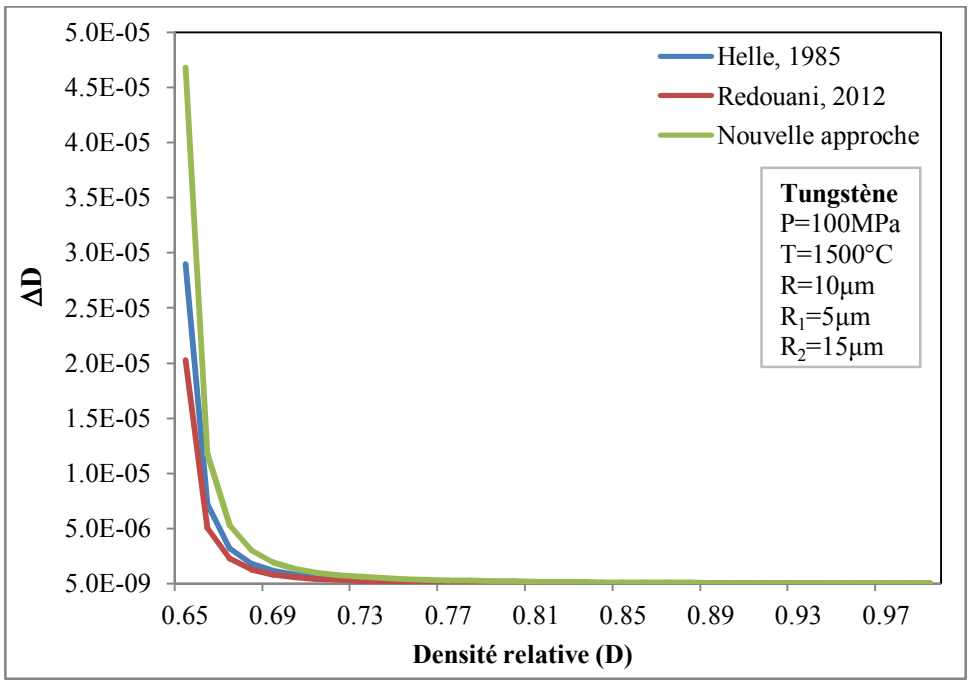


Fig. III.6. Représentation de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre de tungstène.

Pour le tungstène et le superalliage, on remarque que les résultats obtenus par notre approche sont relativement supérieurs à ceux de Helle et Redouani. Par contre, pour l'alumine nos résultats sont inférieurs.

Le constat important à tirer de ces figures est que tous les modèles donnent des résultats pratiquement de même ordre et que le comportement des courbes reste le même. Ceci nous permet de confirmer la validité de notre modèle. Cependant, pour le classement des courbes

(ordres des valeurs), cela dépend évidement des caractéristiques des poudres ainsi que des paramètres de traitement.

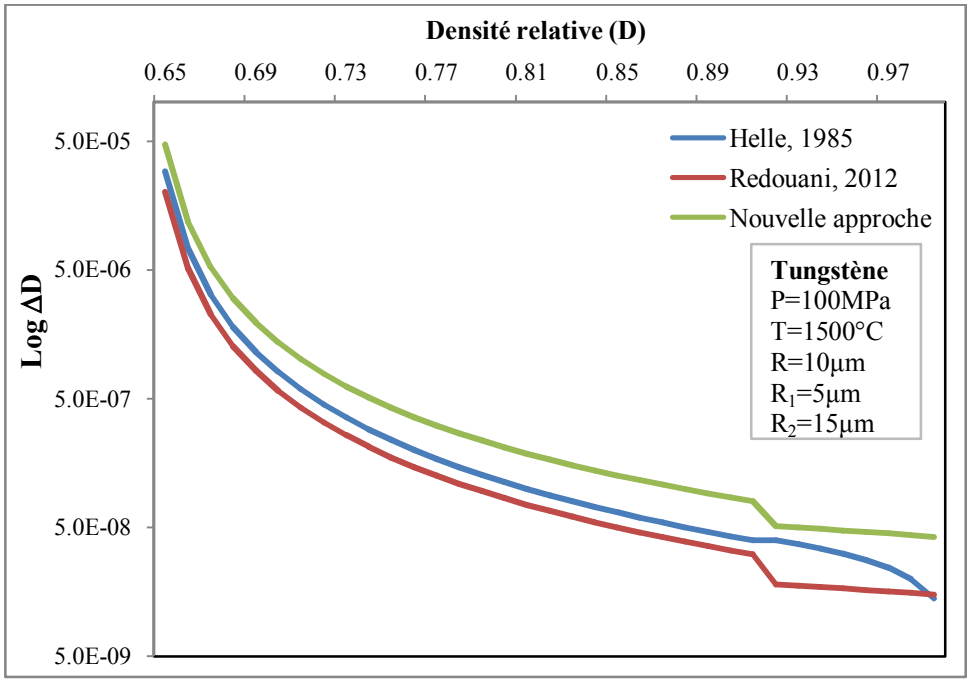


Fig. III.7. Représentation du logarithme décimal de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre de tungstène.

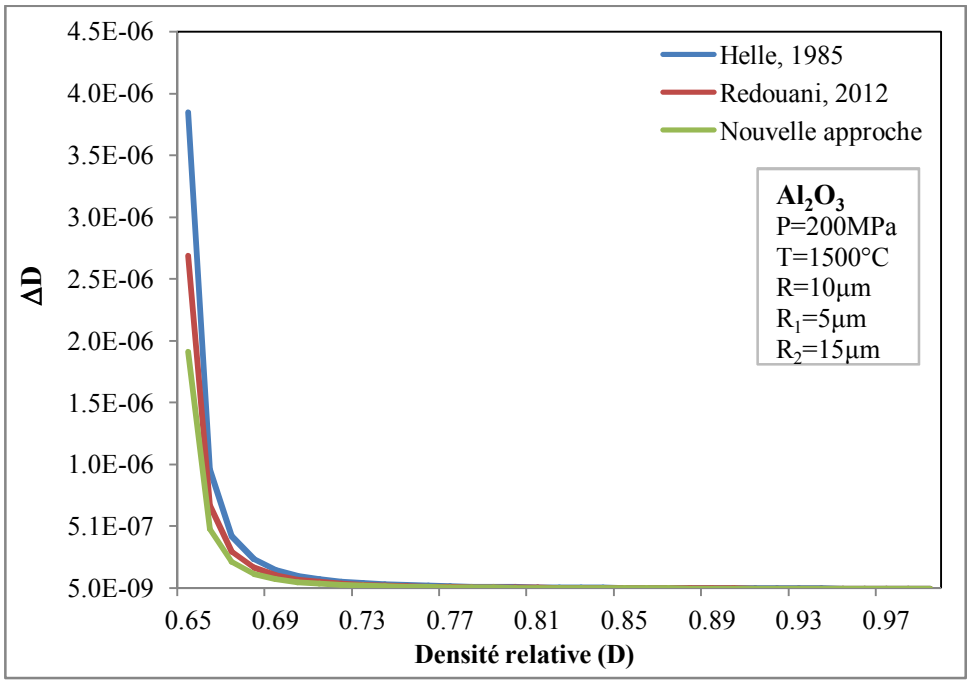


Fig. III.8. Représentation de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre de l'alumine.

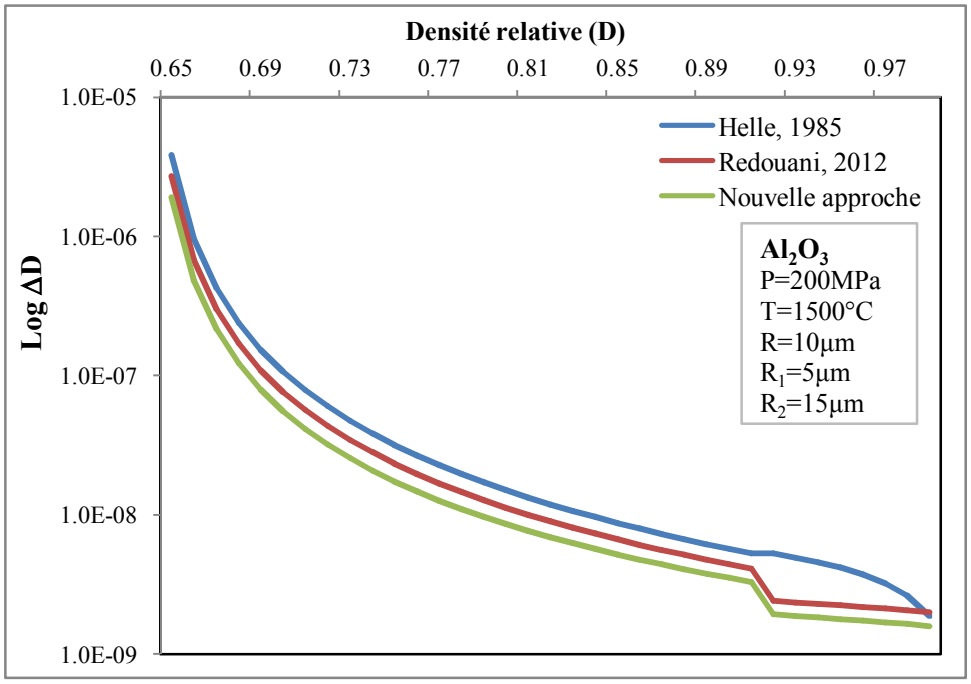


Fig. III.9. Représentation du logarithme décimal de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre de l'alumine.

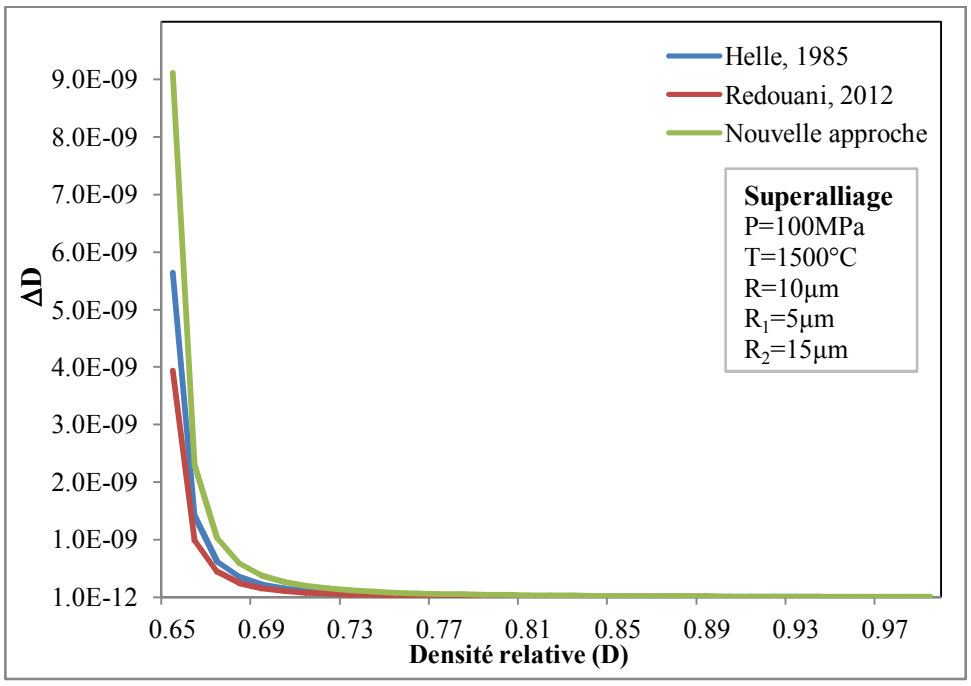


Fig. III.10. Représentation de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre d'un superalliage à base de nickel.

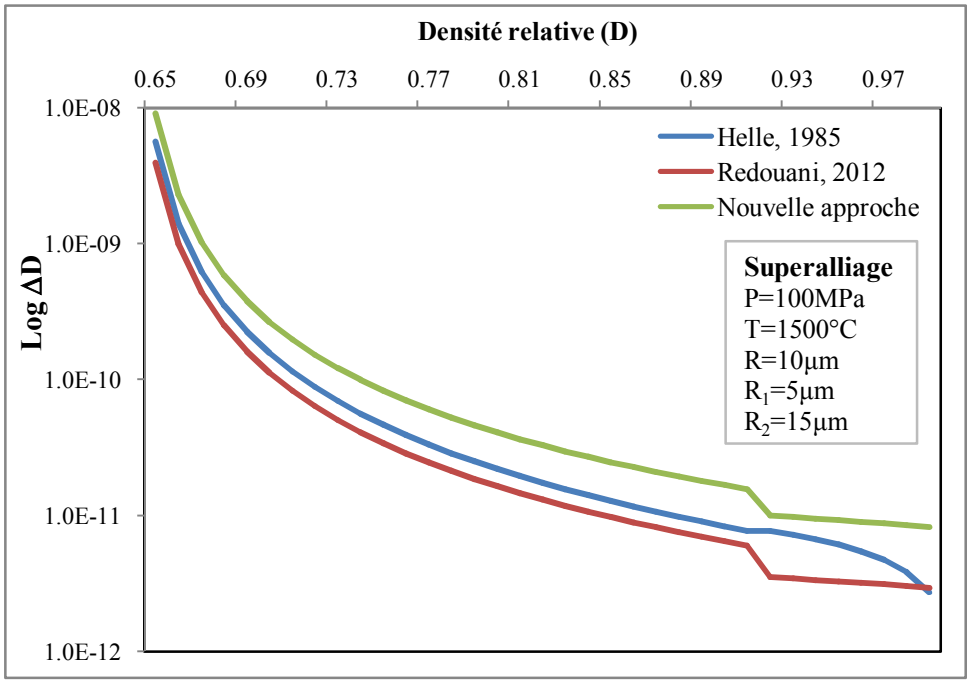


Fig. III.11. Représentation du logarithme décimal de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour la poudre d'un superalliage à base de nickel.

III.4.2. Comparaison entre poudres

Les figures III.12 et III.13 représentent respectivement la contribution et son logarithme décimal de la diffusion intergranulaire à la densification par CIC des poudres du tungstène, de l'alumine et d'un superalliage à base de nickel. Les paramètres de densifications utilisés sont les mêmes pour toutes les poudres, soient une pression de 100MPa et une température de 1200°C.

On remarque que, dans les conditions choisies, la contribution de la diffusion intergranulaire à la densification de la poudre de tungstène est la plus importante. Cela s'explique par le fait que la diffusion s'opère facilement dans les métaux et que la densification des matériaux durs s'effectue essentiellement par diffusion. En outre, les valeurs pour le l'alumine sont relativement faibles, ceci est dû aux conditions de densification choisies. En effet, comme les céramiques sont très dures, ça nécessite des pressions et températures assez importantes pour que les mécanismes de diffusion opèrent au cours du processus de densification.

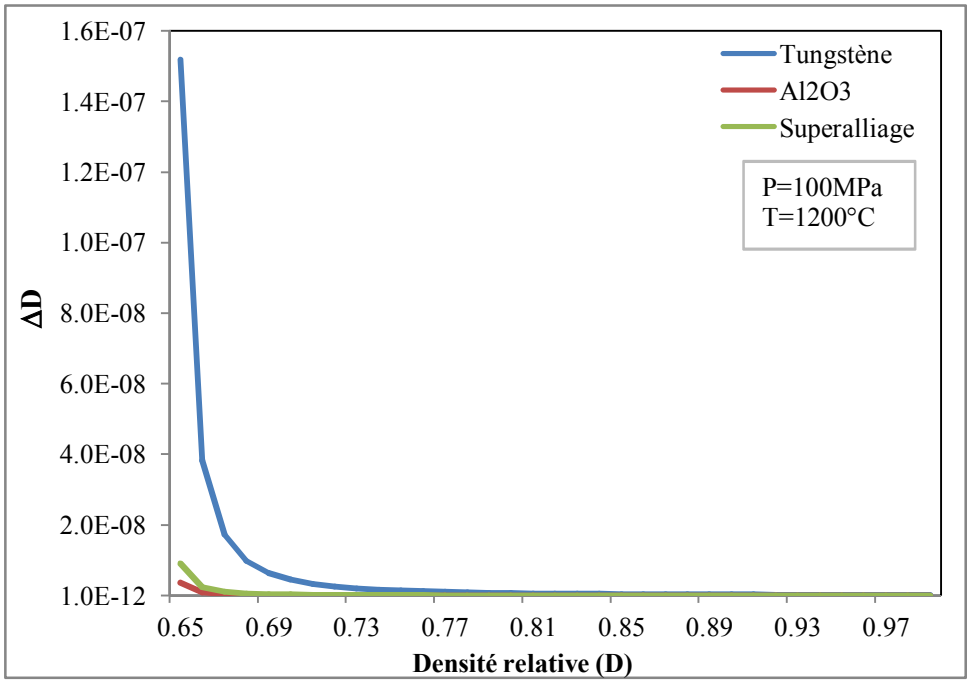


Fig. III.12. Représentation de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour les différentes poudres en utilisant notre approche.

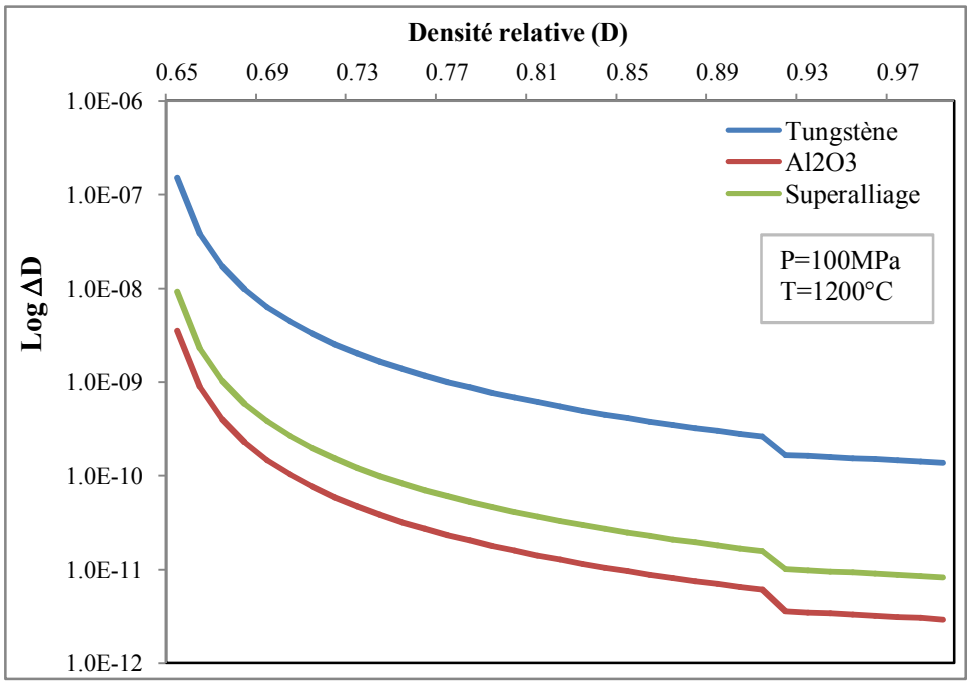


Fig. III.13. Représentation du logarithme décimal de la contribution à la densification par CIC de la diffusion intergranulaire en fonction de la densité relative pour les différentes poudres en utilisant notre approche.

III.5. CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous avons présenté les démarches suivies pour établir un système modèle permettant de déterminer les équations de la contribution du mécanisme de diffusion intergranulaire à la densification par CIC des empilements aléatoires denses de particules sphériques bidimensionnelles. Ensuite, des applications aux poudres de tungstène, de l'alumine et d'un superalliage à base de nickel sont réalisées. Les résultats obtenus sont exprimés par des courbes qui représentent les contributions (ou leurs logarithmes décimaux) en fonction de la densité relative.

Les résultats ont montrés la dépendance du mécanisme de diffusion intergranulaire de la taille des particules, c'est pourquoi nous avons réfléchi, tout d'abord, à des particules avec deux tailles différentes, puis à tiliser un rayon équivalent plutôt qu'un rayon moyen. D'autre part, les caractéristiques des poudres et les conditions de traitement jouent également un rôle important sur la manière dont le mécanisme de diffusion intergranulaire s'opère au cours de la densification.

CONCLUSION GÉNÉRALE

La modélisation du procédé de compression isostatique à chaud est une opération très délicate. En effet, le processus de densification par cette technique fait intervenir plusieurs facteurs. Nous pouvons citer entre autres :

- la taille et la morphologie des particules de poudres ;
- les caractéristiques physiques et mécaniques des matériaux de base ;
- les conditions de manipulation (pression, température et temps) ; etc.

D'autre part, selon les études antérieures consacrées à ce sujet, les seuls mécanismes dont les contributions à la densification par CIC dépendent de la taille des particules sont les mécanismes de diffusion (intergranulaire et en volume à partir de joint). De plus, la diffusion en volume reste très négligeable par rapport aux autres mécanismes.

Toutes ces considérations nous ont encouragées à mener des investigations afin de développer une nouvelle approche, pour l'évaluation de la diffusion intergranulaire, permettant de prendre en considération la différence de la taille des particules de poudres. Pour se faire, nous nous sommes basés sur l'assimilation des agrégats de poudres à des empilements aléatoires denses de particules sphériques bidimensionnelles. Cela nous a permet de considérer un rayon équivalent et de choisir une forme géométrique tétraèdrique pour décrire la morphologie des particules dans le dernier stade de densification.

Les calculs réalisés ont permet de proposer deux équations pour évaluer les contributions du mécanisme de diffusion intergranulaire dans les deux stades de densification de poudres par CIC. Des applications, en utilisant ces équations, ont pu également êtres réalisées pour les poudres de tungstène, de l'alumine et d'un superalliage à base de nickel.

Les résultats obtenus, représentées par des courbes donnant les contributions en fonction de la densité relative, ont mis en évidence l'influence de la taille des particules sur la contribution de la diffusion intergranulaire à la densification des poudres par CIC. Cependant, des applications plus étendues, à d'autres poudres et pour différents rayons, sont nécessaires pour une étude approfondie de ce phénomène.

Il faut, en outre, noter que ce genre de simulations est souvent influencé par d'autres facteurs tels que les caractéristiques des matériaux de base des poudres et les conditions des cycles opératoires. C'est pourquoi l'étude d'un mécanisme doit souvent être associes aux autres afin d'avoir un aperçu global du phénomène étudié. Dans ce cadre, il y a lieu de reproduire les simulations antérieures en remplaçant les équations de la diffusion intergranulaire par les

nouvelles, mais également d'évaluer le mécanisme de diffusion en volume à partir des joints de grains en prenant en compte la taille des particules.

BIBLIOGRAPHIE

[1] A. Zouaghi, *Étude de la compaction isostatique à chaud de l'acier inox 316L : Modélisation numérique à l'échelle mésoscopique et caractérisation expérimentale*, Thèse de doctorat, École nationale supérieure des mines de Paris, France (2013).

[2] https://www.malvernpanalytical.com/fr/industries/advanced-manufacturing/powder-metallurgy/isostatic-pressing

[3] M. Ahlfors, F. Bahbou, A. Eklund, U. Ackelid, *HIP for AM - Optimized material properties by HIP*, Materials Research Proceedings 10 (2019) 1-10.

[4] N. C. Hyatt, *Theramin Technical Training School: Hot Isostatic Pressing*, Theramin Summer School, Université de Sheffield, Angleterre (2019).

[6] https://www.bodycote.com/

[7] L. Robert, *Présentation de la compression isostatique à chaud*, Séminaire Bodycote/Air Liquide, France (2012).

[8] A. Konak, S Kulturel-Konak, A Smith, I Nettleship, *Estimation of shrinkage for near net-shape using a neural network approach*, Journal of Intelligent Manufacturing 14 (2003) 219-228.

[9] N. Bouquet, *Etude de la formation des joints soudés par diffusion : application aux échangeurs de chaleur compacts*, Thèse de doctorat, Université de Bourgogne, France (2013).

[10] L. R. Olmos Navarrete, *Etude du frittage de poudres par microtomographie in situ et modélisation discrète*, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France (2013).

[11] A. Svoboda, L. Björk, H. A. Häggblad, *Determination of material parameters for simulation of hot isostatic pressing*, Transactions on Modeling and Simulation 10 (1995) 29-39.

[12] H. S. Kim, D. N. Lee, *Power-law creep model for densification of powder compacts*, Materials Science and Engineering A271 (1999) 424-429.

[13] H. S. Kim, *Densification mechanisms during hot isostatic pressing of stainless steel powder compacts*, Journal of Materials Processing technology 123 (2022) 319-322.

[14] Y. Deng, A. Kaletsch, A. Bezold, C. Broeckmann, *precise prediction of near-net-shape HIP components through DEM and FEM modeling,* Materials Research Proceedings 10 (2019) 182-189.

[15] E. Arzt, M. F. Ashby, K.E. Easterling, *Practical applications of hot isostatic pressing diagrams: Four case studies*, Metallurgical transactions A 14A (1983) 211-220.

[16] F. B. Swinkels, D. S. Wilkinson, E. Arzt, M. F. Ashby, *Mechanisms of hot isostatic pressing*, Acta Metallurgica 31(11) (1983) 1829-1840.

[17] A.S. Helle, K.E. Easterling, M. F. Ashby, *Hot isostatic pressing diagrams: new developments*, Acta Metallurgica 33(12) (1985) 2163-2174.

[18] L. Redouani, S. Boudrahem, *Hot isostatic pressing process simulation: application to metal powders*, Canadian Journal of physics 90 (2012) 573-583.

[19] L. Redouani, S. Boudrahem, S. Alem, *New hot isostatic pressing (HIP) simulation method with taking into account of the operating cycle ramp*, The International Journal of Advanced Manufacturing Technology 102 (2019) 3291–3299.

[20] L. Redouani, *Nouvelle approche de la modélisation de la densification de poudres par Compression isostatique à chaud*, Thèse de Doctorat, Université Abderahmane Mira de Béjaia, Algérie (2013).

[21] A Donev, R. Connelly, *Jamming in hard sphere and disk packings*, Journal of Applied Physics 95(3) (2004) 989-999.

[22] G.D. Scott, K. R. Knight, J. D. Bernal, J. Mason, *Radial distribution of the random close packing of equal spheres*, Nature 194 (1962) 956-957.

[23] G. Mason, *Radial distribution functions from small packing of spheres*, Nature 217 (1968) 733-735.

[24] E. Arzt, *The influence of an increasing particle coordination on the densification of spherical powders*, Acta Metallurgica 30 (1982) 1883-1890.

[25] O. Molerus, *Theory of yield cohesive powders*, Powder Technology 12 (1975) 259-275.

[26] S. Wilkinson, M. F. Ashby, *Pressure sintering by power law creep*, Acta Metallurgica 23 (1975) 1277-1285.

[27] D. A. Skoog, D. M. West, F. J. Holler, S. R. Crouch, *Fundamentals of Analytical Chemistry*, Belmont, CA : Brooks/Cole, Cengage Learning, Etats Unis d'Amérique (2013).

[28] C. Crussard, *Sur le mécanisme de la diffusion dans les solutions solides*, Acta Metallurgica 2 (1954) 296-301.

[29] G. Murry, *Aide-mémoire Métallurgie : Métaux • Alliages • Propriétés*, 2e édition, Dunod, Paris, France (2010).

[30] P. Guiraldenq, *Diffusion dans les métaux*, Techniques de l'Ingénieur, traité Matériaux métalliques, M 55.

[31] IMT, École des Mines d'Albi-Carmaux https://nte.mines-albi.fr/SciMat/fr/co/SM5uc1-1.html

[32] M. Dupeux, *Aide-mémoire science des matériaux*, 2ème Edition, Dunod, France (2008).

[33] M. Colombié et coll., *Matériaux métalliques*, 2ème Edition, Dunod, France (2008).

[34] J. Cousty, R. Peix, B. Perraillon, *Diffusion superficielle sur le cuivre: influence des marches,* Surface Science 107 (1981) 586-604.

[35] https://staff.univ-batna2.dz/sites/default/files/sobti_nadjah/files/chapitre_2-phenomene_de_diffusion_02_01.pdf.

[36] H. V. Atkinson, S. Davies, *Fundamental Aspects of Hot Isostatic Pressing: An Overview*, Metallurgical and Materials Transactions A 31A (2000) 2981-3000.

[37] S. khilouf, *Caractérisation des empilements aléatoires denses des poudres métalliques*, Mémoire de Master, Université Chadli Bendjedid – El Tarf, Algérie (2019).

[38] L. Redouani, S. Khilouf, R. Laidi, S. Alem, *Random dense packing parameters of two-dimensional spherical powders for hot isostatic pressing process modeling*, Journal Of Materials And Engineering Structures 9 (2022) 267–275.

[39] S. Cooke, K. Ahmadi, S. Willerth, R. Herring, *Metal additive manufacturing : Technology, metallurgy and modelling*, Journal of Manufacturing Processes 57 (2020) 978–1003.

[40] Y. Xia, P. Sautet, *Plasma oxidation of copper : Molecular dynamics study with neural network potentials*, ACS Nano 16(12) (2022) 20680–20692.

[41] L. R. Olmos Navarrete, *Etude du frittage de poudres par microtomographie in situ et modélisation discrète*, Thèse de Doctorat, Institut Polytechnique de Grenoble, France (2009).

[42] M.F. Ashby, Background reading HIP 6.0 : *Sintering and isostatic pressing diagrams*, Engineering Department Trumpington, Université de Cambridge, Angleterre (1990).

[43] H. J. Frost, M. F. Ashby, *Deformation-mechanism maps, the plasticity and creep of metals and ceramics*, Pergamon Press, Oxford, Angleterre (1982).

RÉSUMÉ

Résumé

Des recherches antérieures ont montré que le mécanisme de diffusion intergranulaire est celui qui contribue le plus à la densification par compression isostatique à chaud (CIC) des poudres à base de matériaux durs comme le tungstène, la céramique, etc. La modélisation de ce mécanisme est basée sur l'étude de l'évolution de la densification de particules sphériques de même taille. Cependant, dans la plupart des cas réels, il existe une distribution complexe de la taille des particules de poudre. Ce travail fournit de nouvelles équations, pour ce mécanisme, basées sur des travaux antérieurs établis pour l'étude de l'évolution de la densité de l'empilement aléatoire dense (EAD) de particules sphériques bidimensionnelles. Ainsi, les résultats seront présentés sous forme de courbes permettant de comparer les nouvelles équations à celles disponibles dans la littérature.

Abstract

Previous research has shown that intergranular diffusion mechanism is the one that contributes most to hot isostatic pressing (HIP) densification of powders based on hard materials such as tungsten, ceramics, etc. The modeling of this mechanism is based on the study of the densification evolution of the same size spherical particles. However, in most real cases, there is a complex distribution of powder particle size. This work provides new equations for this mechanism based on previous work established for the study of the density evolution of the dense random packing (RDP) of two-dimensional spherical particles. Thus, the results will be presented in the form of curves to compare the new equations to those available in the literature.

ملخـــص

أظهرت الأبحاث السابقة أن آلية الانتشار بين الخلايا الحبيبية هي التي تساهم بشكل أكبر في التكثيف عن طريق الضغط المتساوي الساخن للمساحيقً المبنية على المواد الصلبة مثل التنجستن والسيراميك وما إلى ذلك. تعتمد نمذجة هذه الآلية على دراسة تطور تكثيف الجسيمات الكروية من نفس الحجم. ومع ذلك، في معظم الحالات الحقيقية، هناك توزيع معقد لحجم جسيمات المسحوق. يقدم هذا العمل معادلات جديدة لهذه الآلية بناءً على عمل سابق تم إنشاؤه لدراسة تطور كثافة الحشو العشوائي الكثيف للجسيمات الكروية ثنائية الأبعاد. وبالتالي، سيتم تقديم النتائج في شكل منحنيات مما يجعل من الممكن مقارنة المعادلات الجديدة بتلك المتوفرة في المؤلفات.