

# CÉLAJOAS ou Composés Lamellaires pour les JOINTS en Applications Sévères Programme MATETPRO 2008



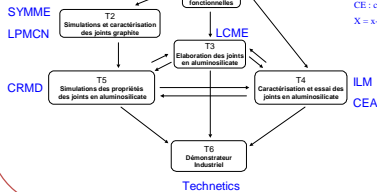
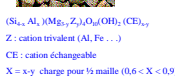
L. Duclaux, L. Reinert, JM Lévêque, A. Nguyen, LCME, Université de Savoie, 73376 Le Bourget du Lac  
 A. Delville, CRMD, CNRS-Université d'Orléans, 1B Rue de la Férollerie, 45071 Orléans Cedex 2  
 A. San Miguel, V. Pichedda, S. Le Floch, F. Balima, ILM, Université Lyon1, 10 rue Ada Byron, 69622, Villeurbanne Cedex  
 M. Lagache, S. Belhouideg, SYMME, Université de Savoie, 73376 Le Bourget du Lac  
 A. Beziat, L. Mirabel, Laboratoire Maestral, CEA, 2 rue James Watt, 26700, Pierrelatte  
 M. Lefrançois, J-F. Juliaa, Technetics Group France, 90 Rue de la roche du geai 42029 Saint-Etienne

## Objectifs et Tâches

Mettre au point un procédé d'élaboration de joints à base d'un matériau inorganique lamellaire pour les applications à haute température dans un domaine où le graphite n'est pas exploitable

**Caractéristiques recherchées :** Taux de fuite et restitution élastique de la température ambiante à 800°C comparable au graphite

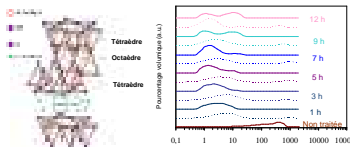
**Choix du matériau de base:** Vermiculite exfoliée



## Elaboration

Elaboration de poudres de vermiculite par traitement ultrasonore (T3 LCME)

Caractérisation par DRX, MEB, granulométrie laser, adsorption d'azote à 77 K, IR, potentiel zeta, ATG-SM.

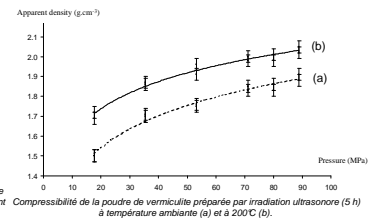


Structure de la vermiculite  
 Distribution de taille de particules de la vermiculite initiale et de vermiculites soniquées dans H<sub>2</sub>O (-) et H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (-) pendant 1 h, 3 h, 5 h, 7 h, 9 h, et 12 h.

Obtention par broyage de plaquettes de vermiculite exfoliée microniques et submicroniques (0.4 < D < 20 µm, épaisseur des cristallites ~10 nm)

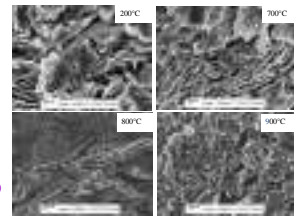
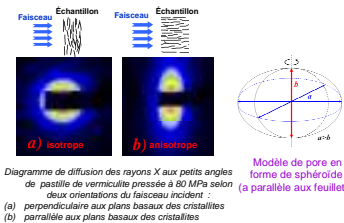
Mise en forme de joints par pressage uniaxial (T3 LCME et CEA)

Fabrication de joints manipulables (Ø 13 mm) par compression des poudres en faisant varier la granulométrie, la composition chimique (additifs), etc.



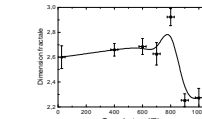
## Caractérisation

Caractérisation de la porosité par Diffusion aux Petits Angles (DPAX) *in situ* (T4 ILM)

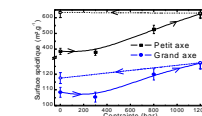


Images de Microscopie Electronique à balayage des sections de vermiculites pressées puis traitées thermiquement à 200°C, 700°C, 800°C, et 900°C (sections obtenues par coupe microtomique).

Les macropores (D=100-200 nm) et mésopores (D=20-50 nm) sont majoritairement ouverts et connectés et constituent les espaces entre les lamelles de vermiculite. Le frittage à T>800°C induit une diminution de la porosité et une modification de la texture (sphérisation des particules).

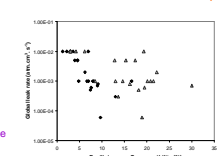
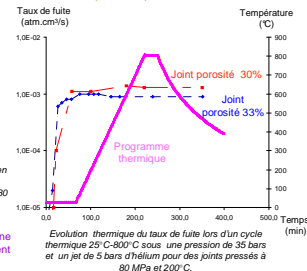


Evolution de la dimension fractale obtenue par DPAX en fonction de la température de traitement thermique. La chute de la dimension fractale à 800°C s'explique par le changement de texture (dû au frittage).



Evolution en fonction de la contrainte des surfaces spécifiques déterminées par DPAX suivant les deux axes des pores sphéroïdaux pour une vermiculite pressée à 35 MPa. L'augmentation des surfaces spécifiques indique la formation de fissures sous contrainte.

Propriétés d'étanchéité (T4 CEA)

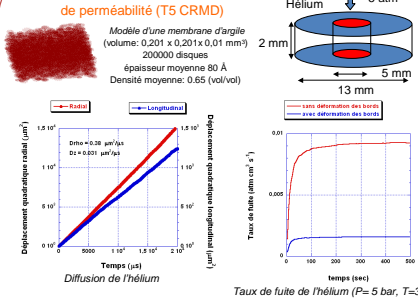


La fuite totale des joints diminue lors de l'augmentation de la résilience. Par contre, aucune relation entre la fuite totale et le taux d'écrasement n'a été observée.

La fuite comprend deux composantes : la fuite de contact déterminée par l'interface entre les joints et la bride, et la fuite de perméabilité liée à la porosité des joints. La fuite dominante est la fuite de contact (~10<sup>-3</sup> atm.cm<sup>3</sup>/s) qui augmente lors de l'accroissement de la température de recuit des joints. La fuite de perméabilité radiale (~10<sup>-4</sup> atm.cm<sup>3</sup>/s) est stable dans un intervalle de température de traitement thermique de 200°C à 800°C.

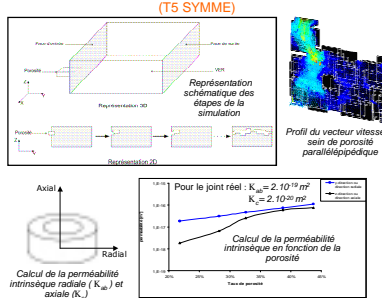
## Simulations

Simulation *ab initio* des taux de fuite de perméabilité (T5 CRMD)



Les coefficients de diffusion de l'hélium sont calculés à partir d'une membrane modèle de porosité totale, granulométrie, et orientation préférentielle identiques aux joints expérimentaux. La tortuosité n'est pas ajustée. Le taux de fuite de perméabilité radiale calculé dans un joint en vermiculite affecté par des défauts de bords est de 10<sup>-3</sup> atm.cm<sup>3</sup>/s

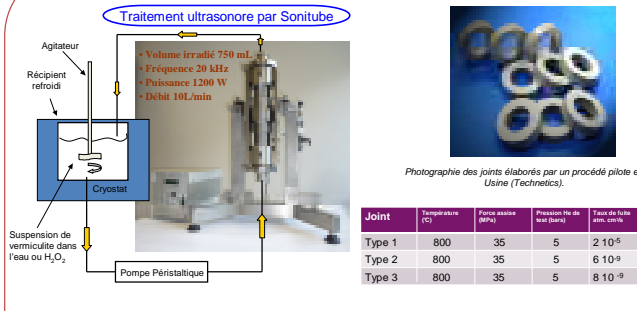
Simulation de la perméabilité par la méthode des éléments finis (T5 SYMME)



Les perméabilités prédites par les calculs (éléments finis) sont supérieures aux perméabilités expérimentales (simplification de la forme des pores et non prise en compte de la tortuosité)

## Démontreurs Industriels

Production de joints à l'échelle pilote (T6 Technetics et LCME)



Joint	Température (°C)	Force presse (MPa)	Pression de test (bars)	Taux de fuite (atm.cm <sup>3</sup> /s)
Type 1	800	35	5	2 10 <sup>-4</sup>
Type 2	800	35	5	6 10 <sup>-4</sup>
Type 3	800	35	5	8 10 <sup>-4</sup>

Plusieurs kilogrammes de poudres sont préparés par irradiation ultrasonore en continu à l'aide d'un Sonitube (Synthelab, Chambéry, France). Les joints produits à partir des poudres possèdent des performances d'étanchéité à notre connaissance égales à ces températures (800°C).

## Conclusion

Un procédé d'élaboration de joints compressibles à base de vermiculite pour les applications à haute température [25°C-800°C] a été mis au point. Les joints ont été élaborés par pressage de poudres de vermiculite de composition et granulométrie bien définies, obtenues par irradiation ultrasonore. Les propriétés de reprise élastique et d'étanchéité (débit de fuite à l'hélium) dans les domaines de pression et de température d'utilisation (35 MPa, T=800°C) ont été étudiées. Ces joints ont été caractérisés du point de vue de la structure et texture poreuse à plusieurs échelles et à plusieurs pressions et températures de mise en forme. Des simulations de dynamique moléculaire par la méthode de Monte Carlo et par les éléments finis ont permis de simuler les taux de fuites de perméabilité des joints en vermiculite. Un procédé semi-pilote d'élaboration des joints en vermiculite a été développé.

## Production scientifique (publications, brevets)

- Preparation and characterization of micron and submicron-sized vermiculite powder by ultrasonic irradiation, N-A. Nguyen, L. Reinert, J-M. Lévêque, A. Beziat, P. Dohaut, J-F. Juliaa, L. Duclaux, Applied Clay Science 72, (2013) 9-17.
- Crystal Structure of Cold Compressed Graphite, M. Amsler, J. A. Flores-Livas, L. Lehtoavaara, F. Balima, S. A. Ghasemi, D. Machon S. Pailhes, A. Willand, D. Caliste, S. Scott, A. San Miguel, S. Goedecker, M.A.L. Marques, Physical Review Letters, 108, (2012) 065601
- An *in situ* small angle neutron scattering study of expanded graphite under a uniaxial stress, F. Balima, V. Pichedda, S. Le Floch, A. Brûlet, P. Lindner, L. Duclaux, A. San Miguel, Carbon 57, (2013) 460-469.
- Effect of sonication conditions: solvent, time, temperature and reactor type on the preparation of micron sized vermiculite particles, F. Ali, L. Reinert, J-M. Lévêque, L. Duclaux, S. Saeed, S. Sakhrat, Ultrasonics Sonochemistry (2013) accepté.
- Procédé de fabrication d'un objet en vermiculite par pressage de poudre de taille micrométrique ou submicrométrique, L. Duclaux, An Ngoc Nguyen, L. Reinert, JF Juliaa, A. Beziat, L. Mirabel, Brevet soumis le 10 Juin 2013.
- Experimental determination of the mechanical behavior of Compacted exfoliated vermiculite, S. Belhouideg, M. Lagache, soumis à Applied Clays Science (2013)
- Prediction of the effective permeability coefficient in random porous media using the finite element method, S. Belhouideg, M. Lagache, soumis à J. of Porous Media (2013)

## CONTACTS :

LCME : laurent.duclaux@univ-savoie.fr  
 ILM : alfonso.san-miguel@univ-lyon1.fr  
 SYMME : manuel.lagache@univ-savoie.fr  
 CRMD : alfred.delville@cnrs-orleans.fr  
 CEA : alain.beziat@cea.fr  
 TECHNICS : michel.lefrancois@techneticsgroup.com

