



HAL
open science

Contrôle acoustique et vibratoire de la mécano-synthèse des matériaux composites à matrice métallique nanostructurés

Laurianne Barguet

► **To cite this version:**

Laurianne Barguet. Contrôle acoustique et vibratoire de la mécano-synthèse des matériaux composites à matrice métallique nanostructurés. Acoustique [physics.class-ph]. Université du Maine, 2015. Français. NNT : 2015LEMA1027 . tel-01617164

HAL Id: tel-01617164

<https://theses.hal.science/tel-01617164>

Submitted on 16 Oct 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE DOCTORAT

Laurianne BARGUET

Exemplaire provisoire de soutenance du mémoire présenté en vue de l'obtention du
grade de Docteur de l'Université du Maine
sous le label de L'Université Nantes Angers Le Mans

École doctorale : SPIGA

Discipline : 60

Spécialité : Acoustique

Unité de recherche : Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine — UMR CNRS 6613

Soutenue sous réserve d'acceptation des rapporteurs le 30 mars 2015

CONTRÔLE ACOUSTIQUE ET VIBRATOIRE DE LA MÉCANO-SYNTÈSE DES MATÉRIAUX COMPOSITES À MATRICE MÉTALLIQUE NANOSTRUCTURÉS

JURY

Rapporteurs :	Natalie GODIN , Maître de conférences, Insa de Lyon Annie ROSS , Professeur, Polytechnique Montréal
Examineurs :	Philippe GUY , Maître de conférences, Insa de Lyon Guillaume RACINEUX , Professeur, Ecole centrale de Nantes Frédéric SCHUSTER , Docteur, CEA Saclay
Invité(s) :	Jean-Hugh THOMAS , Maître de conférences, Université du Maine (Le Mans) Vincent TOURNAT , Directeur de recherche CNRS, LAUM (Le Mans)
Directeur de thèse :	Rachid EL GUERJOUMA , Professeur, Université du Maine (Le Mans)
Co-directeurs de Thèse :	Mourad BENTAHAR , Maître de conférences, Université du Maine (Le Mans) Charles PEZERAT , Professeur, Université du Maine (Le Mans)

Université du Maine, Académie de Nantes
École Doctorale : Sciences Pour l'Ingénieur, Géosciences, Architecture

Thèse de doctorat
Spécialité : Acoustique

CONTRÔLE ACOUSTIQUE ET VIBRATOIRE DE LA MÉCANO-SYNTÈSE DES MATÉRIAUX COMPOSITES À MATRICE MÉTALLIQUE NANOSTRUCTURÉS

Laurianne BARGUET

Préparée au Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine, UMR CNRS 6613

Soutenue sous réserve d'acceptation des rapporteurs le 30 mars 2015 devant le jury composé de :

Mourad Bentahar	Maître de conférences, LAUM (Le Mans)	Co-directeur de thèse
Rachid El Guerjouma	Professeur, LAUM (Le Mans)	Directeur de thèse
Natalie Godin	Maître de Conférences, Mateis (Lyon)	Rapporteur
Philippe Guy	Maître de Conférences, Lva (Lyon)	Examineur
Charles Pezerat	Professeur, LAUM (Le Mans)	Co-directeur de thèse
Jean-Hugh Thomas	Maître de conférences, LAUM (Le Mans)	Invité
Vincent Tournat	Directeur de recherche CNRS, LAUM (Le Mans)	Invité
Guillaume Racineux	Professeur, Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (Nantes)	Examineur
Annie Ross	Professeur, CREPEC (Montréal)	Rapporteur
Frédéric Schuster	Directeur du Programme transversal "matériaux avancés", CEA (Saclay)	Examineur

RÉSUMÉ

Lors de la synthèse des aciers ODS (Oxide Dispersion Strengthened) la première étape consiste à réaliser un broyage actif entre les matériaux de départ qui sont la poudre métallique et les renforts d'oxyde, afin d'obtenir une poudre renforçante nanométrique. Ce procédé appelé mécano-synthèse peut se réaliser au moyen d'un broyeur à boulets, constitué d'une cuve cylindrique qui entre en rotation autour de son axe central et à l'intérieur de laquelle des billes en acier sont introduites en plus des matériaux à broyer. Le broyage résulte des combinaisons possibles de chocs entre billes, poudre et paroi de la cuve, ce qui conduit à une évolution de la morphologie des grains de poudre (tailles, forme des grains et distribution de leurs tailles).

La première partie de cette thèse s'attache à élaborer un moyen de caractérisation de la poudre par des mesures ultrasonores. Une méthode qui consiste à sonder une tranche d'échantillon de poudre métallique pour la mesure des paramètres acoustiques linéaires (vitesse de propagation, module élastique) s'est avérée adaptée pour la qualification de la poudre métallique à plusieurs étapes du procédé de mécano-synthèse. Une dépendance des paramètres acoustiques avec les caractéristiques morphologiques du milieu (polydispersité et non sphéricité) a également été mise en évidence pour des échantillons granulaires de faible densité et obtenus avec des préparations identiques. Dans une deuxième partie du travail, l'optimisation du procédé par l'identification de la vitesse optimale de rotation de la cuve est recherchée dans un premier temps. La mise en parallèle des signaux acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation de la cuve et du mouvement des billes filmé par caméra rapide, montre que les énergies acoustique et vibratoire sont des indicateurs susceptibles de conduire au bon réglage de la vitesse de rotation. Dans un second temps, il est montré comment des mesures acoustiques et vibratoires durant des broyages de durée variable (jusqu'à 176h) permettent de caractériser l'évolution de la nature des poudres et/ou identifier la présence de colmatage de la poudre sur les parois de la cuve.

REMERCIEMENTS

Je souhaite tout d'abord remercier mes co-directeurs Charles Pezerat, Rachid El-Guerjouma et Mourad Bentahar pour m'avoir confié ce travail et m'avoir accordé leur confiance durant ces trois années de thèse. Merci pour leurs conseils, leur disponibilité et leur soutien.

Je suis également très reconnaissante envers Vincent Tournat et Jean-Hugh Thomas pour avoir accepté de s'impliquer respectivement dans la première et deuxième partie de ce travail de thèse. Leur suivi, leurs conseils scientifiques et surtout leur disponibilité m'ont été d'une aide précieuse.

Je remercie Annie Ross et Natalie Godin, qui ont accepté de rapporter le manuscrit de thèse, ainsi que Frédéric Schuster, Guillaume Racineux et Philippe Guy pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail en acceptant d'être membres du jury.

Je remercie la Région des Pays de la Loire pour m'avoir accordé la moitié du financement de cette thèse de doctorat. Je remercie également Frédéric Schuster, Directeur du Programme transversal "matériaux avancés" du CEA de Saclay, pour avoir accordé la seconde moitié de ce financement ainsi qu'une extension pour me permettre de poursuivre encore quelques mois supplémentaires mes travaux dans de bonnes conditions. Ce travail a été réalisé dans le cadre du programme de recherche commun "CPR ODISSEE" entre le CEA, EDF, AREVA, CNRS et Mécachrome sous contrat n°070551. Je remercie les membres du conseil scientifique du CPR pour leur intérêt quant à ce travail ainsi que pour leurs questions et leurs remarques lors des présentations bi-annuelles, qui m'ont permis de ne pas perdre de vue l'objectif principal du projet. Je remercie vivement Laurent Chaffron, Chef du Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes du CEA de Saclay, pour son implication, pour son soutien et pour ses conseils qui m'ont permis d'appréhender les aspects liés à la physique des matériaux lors de ces travaux. Merci également à lui et à Pierre-François Giroux pour leur agréable accueil durant cette semaine de mesures au CEA de Saclay.

Je remercie Joël Gilbert et Laurent Simon, directeurs du Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine, pour leur accueil et la mise à disposition des moyens matériels. Merci à Anne-Marie Brulé, Julie Béhue et Valérie Hermann pour leur aide et leur disponibilité concernant les aspects administratifs. Merci à l'Ecole Nationale Supérieure d'Ingénieurs du Mans (ENSIM) et à son directeur Pascal Leroux pour m'avoir accueilli dans ses locaux.

Je remercie l'entreprise Mécachrome pour l'aide matérielle dont j'ai pu bénéficier, en particulier pour m'avoir fourni les matériaux nécessaires à mon étude et pour avoir mis à disposition les outils pour la caractérisation des poudres broyées. Je tiens à exprimer mes sincères remerciements auprès de Nikhil Karnatak, Responsable Matériaux Avancés chez Mécachrome jusqu'en juin 2013, pour m'avoir initié au broyage et aidé à saisir les problématiques liées au processus de la mécano-synthèse. Merci à Olivier Martin, responsable R & D en matériaux et procédés chez Mécachrome,

pour ses conseils scientifiques et techniques. Je remercie également Guillaume Racineux professeur à l'Ecole Centrale de Nantes, Gilles Patté et Daniel Lebreton pour l'élaboration, la fabrication et l'installation du broyeur au sein des locaux de l'ENSIM.

La réalisation des expériences n'aurait pu être possible sans l'aide et la disponibilité des équipes techniques du LAUM et de l'ENSIM, aussi je remercie Emmanuel Brasseur, James Blondeau, Stéphane Lebon, Hervé Mezière, Eric Egon, Patrick Collas, Mathieu Secail, Julien Nicolas et Nicolas Boissé. Un grand merci à Stéphane Letourneur pour l'aide précieuse qu'il m'a apporté en instrumentation durant ces trois ans, son expérience, son savoir faire et son implication ont été un atout majeur envers ces travaux, notamment pour l'instrumentation du broyeur. Je remercie Jean-Baptiste Legland pour m'avoir initié à la complexité des milieux granulaires et guidé pour l'utilisation de son banc expérimental qui était le fruit de ses travaux de thèse.

Enseigner dans le cadre d'une mission complémentaire d'enseignement durant ces trois ans a été une expérience enrichissante et formatrice. Je remercie les enseignants chercheurs qui m'ont fait confiance et qui ont partagé leur expérience. Je remercie également Maine Science pour m'avoir confié cette mission de diffusion qui m'aura permis de partager mon goût pour l'acoustique auprès du jeune public.

Le contexte de très bonne qualité du laboratoire dans lequel ces travaux ont été menés et l'excellente ambiance qui y règne ont donné lieu à de nombreux échanges scientifiques et humains. Pour cela je remercie l'ensemble des membres du laboratoire avec lesquels j'ai partagé ces moments.

TABLE DES MATIÈRES

Résumé	i
Remerciements	iii
Introduction	1
1 Étude bibliographique du procédé de mécano-synthèse	5
1.1 Le procédé de mécano-synthèse	6
1.2 Paramètres influents lors d'un broyage réalisé par broyeur à boulets	9
1.2.1 Vitesse de rotation de la cuve du broyeur	9
1.2.2 Temps de broyage	13
1.2.3 Type de billes, taille, et distribution de la taille du milieu broyant	13
1.2.4 Rapport entre le poids des billes et celui de la poudre	13
1.2.5 Atmosphère de broyage	13
1.2.6 Température du broyage	14
1.3 Étude de l'évolution de la granulométrie d'une nuance de poudre Fe ₁₄ Cr à plusieurs étapes du procédé de mécano-synthèse	14
1.3.1 Images MEB à différentes étapes de broyage	14
1.3.2 Évolution de la granulométrie à différentes étapes du broyage	14
1.4 Conclusion	16
I Caractérisation ultrasonore des poudres extraites à différentes étapes de broyage	19
2 Propagation acoustique dans les milieux granulaires	21
2.1 Micro-mécanique des contacts	22
2.1.1 Contact de Hertz	22
2.1.2 Contact de Mindlin	24
2.2 Approche des milieux effectifs	26
2.2.1 Paramètres géométriques de l'assemblage	27
2.2.2 Conditions extérieures de l'assemblage	29
2.3 Méthodes expérimentales de sondage ultrasonores	30
2.3.1 Propagation acoustique sous contrainte uni-axiale	31
2.3.2 Propagation acoustique sous sollicitations douces	32
2.4 Conclusion	34

3	Mesures préliminaires pour la caractérisation ultrasonore	37
3.1	Caractérisation ultrasonore sous contrainte uni-axiale	38
3.1.1	Protocole expérimental	38
3.1.2	Evolution de la vitesse de propagation des ondes longitudinales pour différents échantillons de poudre	39
3.2	Caractérisation ultrasonore sous sollicitations douces	41
3.2.1	Protocole expérimental	42
3.2.2	Évolution des compacités pour trois échantillons de poudres métalliques	43
3.2.3	Mesure de la vitesse de propagation des ondes longitudinales	47
3.3	Conclusion du chapitre	49
4	Méthode de caractérisation ultrasonore de poudres métalliques	53
4.1	Abstract	54
4.2	Introduction	54
4.3	Mechanical alloying and ball-milling process	55
4.4	Experiments	56
4.4.1	Experimental setup	56
4.4.2	Results	58
4.5	Discussion and interpretations	59
4.5.1	Effective medium theories and origins of sound velocity variations	59
4.5.2	Compressional wave modulus evolution along the mechanical alloying process, interpretation	62
4.5.3	Further analysis of the role of polydispersity on the elastic parameters	63
4.6	Conclusions	65
II Optimisation et qualification du processus de broyage par mesures acoustiques et vibratoires		67
5	Détection de la vitesse optimale de rotation	69
5.1	Expérimentation mise en oeuvre et méthodes de traitements	71
5.1.1	Protocole expérimental	71
5.1.2	Méthodes de traitements	73
5.2	Détection de la vitesse optimale de rotation pour un remplissage de la cuve composé uniquement de billes	76
5.2.1	Evolution en fonction de la vitesse de rotation	76
5.2.2	Evolution en fonction du taux de remplissage de la cuve	81
5.3	Détection de la vitesse optimale de rotation pour un remplissage de la cuve composé de billes et de poudre	84
5.3.1	Mesures préliminaires avec un échantillon de poudre "témoin"	84
5.3.2	Mesures sur un échantillon de poudre d'acier ODS non broyée	88
5.4	Discussions et conclusion du chapitre	91
6	Ecoute acoustique et vibratoire lors du processus de broyage	93
6.1	Ecoute acoustique et vibratoire d'un broyage réalisé sous air	93
6.1.1	Choix de la bande fréquentielle pour le traitement	94
6.1.2	Evolution des énergies acoustiques et vibratoires	95
6.2	Mesures sur des échantillons de poudre d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage	97

6.3 Conclusion 100

Conclusion générale **103**

Références **107**

INTRODUCTION

L'un des axes principaux pour le développement des centrales nucléaires de Génération IV par rapport à celles en cours d'exploitation est la compétitivité économique [1, 2]. Cela suppose d'une part, d'augmenter la température du réacteur pour augmenter le rendement de conversion d'énergie et d'autre part, d'allonger la durée de vie des centrales avec pour conséquence l'augmentation du niveau de radiation reçu par les matériaux du coeur du réacteur. Il est alors nécessaire de disposer de matériaux capables de résister à des températures et des niveaux d'irradiation plus élevés. Du fait de leur faible gonflement et de leur résistance au fluage sous hautes températures, les aciers ODS (Oxide Dispersion Strengthened, c'est-à-dire renforcés par dispersion d'oxydes) sont alors apparus comme étant de très bons candidats. Les procédés de synthèse de ces matériaux sont néanmoins complexes et l'obtention d'une bonne reproductibilité des propriétés mécaniques fait encore l'objet de nombreuses études.

Les difficultés viennent principalement du procédé de synthèse lui-même, qui est multi-étapes et qui dépend donc de nombreux paramètres. Typiquement, la synthèse des aciers ODS se décompose en quatre étapes (figure 1). Tout d'abord les matériaux de départ, c'est-à-dire la poudre métallique et les renforts d'oxyde, sont cobroyés pour obtenir une poudre renforçante nanométrique. Ce procédé est appelé **mécano-synthèse**. La poudre produite est par la suite dégazée et mise en gaine. La consolidation est ensuite effectuée par filage à chaud ou par compression isostatique à chaud. Pour finir, des traitements thermomécaniques, comme du laminage à chaud ou à froid et des traitements thermiques, sont réalisés afin de mettre le matériau en forme et compenser l'anisotropie créée par le filage.

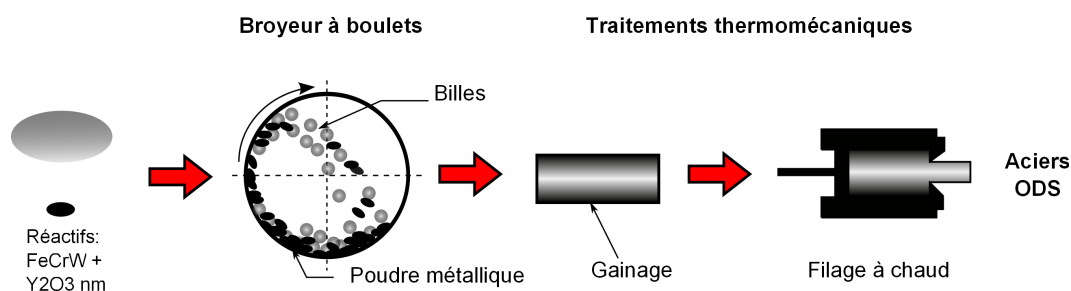


FIGURE 1: Principales étapes du procédé de synthèse des aciers ODS.

De récentes études ont montré que les propriétés mécaniques des matériaux dépendent de la dispersion des oxydes qu'ils contiennent. Or, durant chaque étape de la synthèse, plusieurs paramètres rentrent en jeu et chacun de ces paramètres est susceptible d'influencer la microstructure. Il convient donc de caractériser le matériau après chaque étape du procédé et d'en déduire les paramètres influents. Cette caractérisation s'effectue, entre autre, au moyen de microscopes électroniques à l'échelle microscopique, et à l'aide de sondes atomiques tomographiques à l'échelle

nanométrique. Ces outils de contrôle, bien qu'étant robustes et maîtrisés ne permettent néanmoins pas de suivre en temps réel l'état du matériau, notamment lors du procédé de mécano-synthèse qui fait l'objet de ces travaux de thèse. Ce procédé est une approche fondamentalement différente de la métallurgie classique car elle repose sur un mécanisme de déformation pour combiner les éléments. Plusieurs broyeurs permettent la réalisation d'un tel procédé (broyeur planétaire, broyeur vibrant, broyeur à boulet, attriteur, broyeur à billes), chacun d'eux consistant à exercer des impacts sur les matériaux à broyer à l'aide de billes (de tailles et de nombre plus ou moins importants). Ces travaux de thèse se focalisent uniquement sur le broyeur à boulets, constitué d'une cuve cylindrique qui entre en rotation autour de son axe central et à l'intérieur de laquelle des billes en acier sont introduites en plus des matériaux à broyer (figure 1). Le broyage résulte alors des différentes combinaisons possibles de chocs entre billes, poudre et paroi de la cuve. Ainsi, tout au long de ce mécanisme, la morphologie des grains de poudre va évoluer (tailles, forme des grains et distribution de leurs tailles) et les mécanismes de déformation (fracture et soudure des grains) vont se succéder.

Un tel procédé métallurgique est complexe et dépend de nombreux paramètres mécaniques et thermodynamiques (température de broyage, vitesse de rotation...). Des études empiriques ont permis de trouver les paramètres nécessaires à l'obtention d'une poudre renforçante nanométrique satisfaisante et ceci avec une bonne reproductibilité [2]. Néanmoins, l'optimisation du procédé de la mécano-synthèse implique de pouvoir suivre l'état de la poudre en temps réel et d'en déduire les paramètres influents (pour un broyeur en particulier). Par ailleurs, durant ce procédé dont la durée peut aller au delà de 176h lorsqu'il est réalisé par un broyeur à boulets, l'apparition de certains mécanismes parfois irréversibles pouvant altérer la qualité du broyage nécessite une modification des paramètres de broyage (vitesse de rotation, atmosphère de broyage) ou bien une interruption du procédé. Par exemple, la présence de colmatage de la poudre sur la cuve du broyeur pour un temps donné du broyage nécessiterait la modification de la vitesse de rotation de la cuve pour inverser cet effet. La détection de tels mécanismes apparaît donc comme nécessaire pour l'optimisation de ce procédé de broyage.

C'est dans ce contexte que s'inscrit ce travail de thèse dont le but est d'élaborer une instrumentation d'un broyeur à boulets installé spécifiquement au Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine afin d'optimiser, de suivre et de contrôler le broyage au moyen de mesures acoustiques (hautes et moyennes fréquences) et vibratoires (basses fréquences). Le travail qui a été réalisé s'est décomposé en deux parties. La première a consisté en l'élaboration d'une méthode de caractérisation ultrasonore de poudres métalliques d'aciers ODS extraites à différentes étapes de broyage. Cette partie propose une analyse de la poudre en tant que milieu de propagation de l'onde ultrasonore, de manière à extraire des informations liées aux caractéristiques morphologiques des grains qui évoluent tout au long du broyage et qui constituent une indication quant au déroulement du procédé de mécano-synthèse. Durant la seconde partie du travail de thèse, des mesures acoustiques et vibratoires ont été mises en oeuvre sur le broyeur à boulets instrumenté pour la recherche d'indicateurs permettant l'optimisation du procédé de broyage et son suivi pour la qualification de la poudre.

Le travail réalisé depuis le début de la thèse a consisté en premier lieu en un travail de recherche bibliographique sur le mécanisme de mécano-synthèse et le fonctionnement du broyeur à boulets. La compréhension de ce processus et des changements qui peuvent avoir lieu lors du broyage tant à l'échelle des grains qui composent la poudre métallique que sur les mécanismes de déformation, a conduit à l'élaboration de la démarche scientifique qui a rythmé le travail de thèse. Le chapitre 1 décrit le processus de mécano-synthèse, puis inventorie l'influence des paramètres de broyages sur la réalisation du processus et enfin propose une analyse granulométrique des échantillons de

poudres d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage et sur lesquels ont portés les différentes expérimentations mises en oeuvre. Les trois chapitres suivants sont focalisés sur la première partie du travail de thèse. En assimilant les poudres métalliques à un milieu granulaire non cohésif et désordonné, le travail bibliographique s'est orienté sur des études qui permettent une qualification des caractéristiques morphologiques du milieu par des méthodes acoustiques. Le chapitre 2 regroupe ainsi les notions de base de la mécanique des contacts et de la propagation acoustique dans les milieux granulaires. Les principales méthodes de caractérisation des milieux granulaires par des mesures d'acoustique linéaire proposées dans la littérature y sont également présentées. Le chapitre 3 décrit ensuite les expérimentations préliminaires qui ont été réalisées pour la caractérisation d'échantillons de poudre d'aciers ODS extraits à différentes étapes de broyage. Les évolutions des paramètres acoustiques ainsi que les conclusions qui en ont résulté ont servi de base de réflexion pour l'élaboration de la méthode de caractérisation des poudres métalliques proposée dans le chapitre 4. L'étude abordée dans ce chapitre, ayant été soumise au journal *Ultrasonics*, sera présentée sous la forme d'un article. De ce fait, ce chapitre est auto suffisant et quelques redondances sont susceptibles d'apparaître sur l'ensemble de cette première partie de manuscrit. Les chapitres suivants regroupent les études réalisées pour l'optimisation et la qualification du processus de broyage par des mesures acoustiques et vibratoires. Dans le chapitre 5, une étude visant à l'optimisation de la vitesse de rotation du broyeur est présentée. L'expérimentation mise en oeuvre a notamment consisté à corrélérer le mouvement des billes qui réalisent le broyage en impactant les grains de poudres avec les signaux acoustiques et vibratoires émis par la cuve du broyeur. Enfin, une dernière étude consistant au suivi du processus de broyage par des mesures acoustiques et vibratoire est présentée dans le dernier chapitre. Cette dernière étude démontre l'intérêt de telles méthodes expérimentales pour d'une part le suivi de la nature des poudre en cours de broyage et d'autre part l'identification de la présence du mécanisme de colmatage.

Chapitre 1

ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE DU PROCÉDÉ DE MÉCANO-SYNTÈSE

De par leur faible gonflement sous irradiation et leur résistance au fluage sous haute température, les aciers ODS (Oxide Dispersion Strengthened) font l'objet d'un grand intérêt auprès de la communauté de l'énergie nucléaire. En effet, l'un des axes principaux pour le développement des centrales de Génération IV par rapport à celles en cours d'exploitation est la compétitivité économique [1, 2]. Cela suppose d'une part, d'élever la température du réacteur pour augmenter le rendement de conversion d'énergie et d'autre part, d'allonger la durée de vie des centrales avec pour conséquence l'augmentation du niveau de radiation reçu par les matériaux du coeur du réacteur. Il est alors nécessaire de disposer de matériaux capables de résister à des températures et des niveaux d'irradiation plus élevés.

Les matériaux qui seront utilisés dans un premier temps pour les gaines du démonstrateur RNR-sodium ASTRID¹ seront des aciers austénitiques avancés (15/15Ti), pour lesquels le procédé de fabrication est aujourd'hui bien maîtrisé. Néanmoins, ils devront être remplacés par des matériaux plus performants, car ils ne permettent pas de tenir les exigences du cahier des charges dans la durée, en particulier pour le gonflement sous irradiation [2]. Le choix des matériaux s'est alors orienté vers des nuances d'aciers ferritiques et ferritiques/martensitiques qui possèdent une meilleure résistance au gonflement sous irradiation que les aciers austénitiques. Toutefois, leurs propriétés sous haute température, notamment en fluage, sont insuffisantes.

C'est dans ce contexte qu'ont été développés les aciers ODS. L'ajout d'une dispersion de nanoprécipités d'oxydes au sein de la matrice ferritique a permis d'obtenir un matériau avec un comportement mécanique à haute température prometteur, rendant ainsi leur utilisation intéressante pour la construction des futurs réacteurs, en particulier pour la fabrication des gaines de combustibles.

Le procédé de synthèse des aciers ODS se décompose en plusieurs étapes (figure 1), et débute par une étape de broyage au cours de laquelle est réalisée la mécano-synthèse. Cette dernière est un procédé couramment utilisé lors de l'élaboration de matériaux par métallurgie des poudres. Il consiste en un broyage actif de poudre métallique et de renforts d'oxyde dans une cellule, afin d'obtenir une dispersion renforçante nanométrique. Cela revient en un procédé métallurgique réalisé à l'état solide impliquant une succession de soudages, fractures et re-soudages des particules de poudre dans un broyeur à billes de forte énergie. La mécano-synthèse permet alors d'obtenir des matériaux avec des micro-structures faites de fortes densités de renforts, ce qui est difficilement atteignable par métallurgie classique.

1. L'abréviation RNR désignant la technologie de réacteur à neutrons rapides.

Tout au long de ce procédé différents mécanismes de déformation ont lieu, conduisant à des transformations de la poudre métallique à différentes échelles [3, 4, 5].

Ce chapitre se décompose en trois sections. Le procédé de mécano-synthèse, c'est à dire les mécanismes de déformation plastiques qui sont mis en jeu et les transformations des grains qui en résultent, sont présentés dans un premier temps.

L'objectif de la thèse étant de suivre, contrôler et optimiser le procédé de broyage, il est apparu nécessaire d'inventorier les paramètres pouvant être influents lors du broyage. La description de ces paramètres fait ainsi l'objet de la section suivante.

Enfin, pour observer les évolutions granulométriques qui ont lieu durant le broyage et dans le cas spécifique de la nuance d'aciers ODS du CPR Odissée², une analyse de l'évolution de la morphologie des grains de poudre extraits à différentes étapes de broyage sont présentés dans la dernière section. Ces données granulométriques serviront par la suite de données de références lors de l'utilisation de ces échantillons dans les différentes expérimentations mises en oeuvre au cours de ces travaux de thèse.

1.1 Le procédé de mécano-synthèse

La mécano-synthèse (MA) est une approche fondamentalement différente de la métallurgie classique car elle repose sur un mécanisme de déformation pour combiner les éléments. À l'inverse, les techniques traditionnelles utilisent les traitements thermiques et les réactions physico-chimiques pour combiner les composants métalliques [3].

Les fortes déformations exercées sur les matériaux broyés constituent en grande partie le procédé de MA. Les impacts subis par les grains de poudre, lorsqu'ils sont piégés entre deux billes qui se heurtent, produisent continuellement des mécanismes de soudage et de fragmentation (figure 1.1 (a))[4].

En dépit du fait que les matériaux réagissent au broyage de manière différente suivant le type de broyeur et la nature des composants, Benjamin et Volin [6] identifient 5 états progressifs de synthèse (figure 1.1 (b))[3].

1. **Applatissage des particules** : l'intensité des impacts déforme plastiquement les particules de poudre, leur donnant ainsi la forme de flocons.
2. **Prédominance des soudures** : les particules aplaties se soudent entre elles pour former des particules composites en lamelles.
3. **Formation des particules équiaxiales** : depuis le début des états de broyage, les particules sont ductiles et ont tendance à se souder entre elles, formant ainsi de nouvelles particules plus épaisses et arrondies.
4. **Orientation aléatoire des soudures** : sous l'effet des chocs continuellement exercés, les particules fatiguent et les mécanismes de fragmentation commencent à apparaître. L'effet conjugué des mécanismes de fragmentation et de soudage entraîne la formation de nouvelles particules composites avec une orientation aléatoire.
5. **Etat d'équilibre du procédé** : la structure du matériau est progressivement affinée sous l'effet conjugué des mécanismes.

2. Programme de recherche commun entre le CEA, EDF, AREVA, CNRS et Mécachrome sous contrat n070551

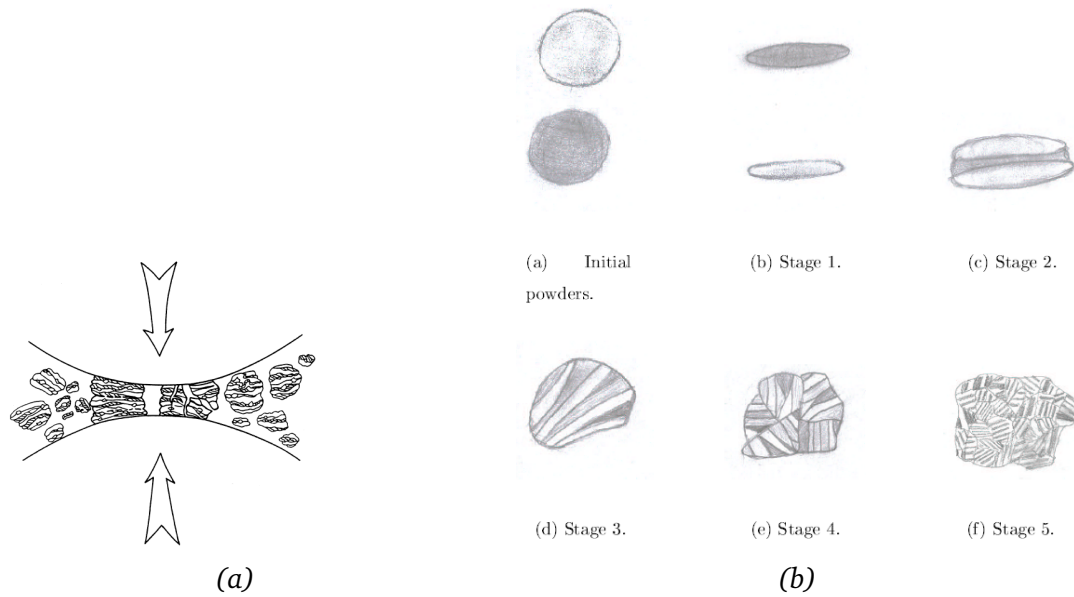


FIGURE 1.1: (a) Schématisation de la collision balle/poudre/balle lors de la mécano-synthèse [4]. (b) Les 5 états de la mécano-synthèse décrits par Benjamin et Volin [3]

L'illustration des cinq états de Benjamin et Volin se focalise sur l'évolution de la forme et de la structure des grains, toutefois, ces observations entraînent implicitement une variation de la taille des particules.

Typiquement, une poudre broyée passe par un état où le soudage prédomine (état 2) et pour lequel la taille des grains augmente rapidement. Plus tard, durant le broyage, le procédé de soudage devient moins fréquent, et la fragmentation devient prédominante jusqu'à l'état 5, où les deux mécanismes s'équilibrent. Le changement d'équilibre entre le soudage et la fragmentation a été attribué à l'écroutissage et les effets de surface [4, 5]. Le broyage initial qui déforme les grains a pour effet de diffuser les couches supérieures, exposant ainsi la surface de métal qui soude facilement à froid. Si la déformation continue, les grains se durcissent, devenant moins susceptibles de se déformer et encore plus sujets à se fracturer.

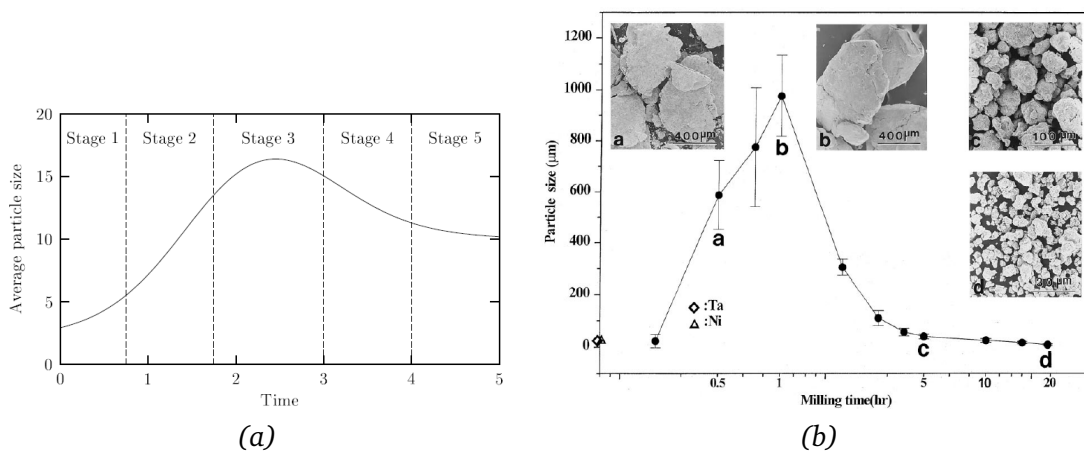


FIGURE 1.2: (a) Schématisation du changement de taille moyenne d'une particule durant les 5 états de mécano-synthèse de Benjamin et Volin [3], (b) Exemple d'évolution de la taille moyenne et de la forme des grains de poudre pour différentes étapes de la mécano-synthèse de matériaux $\text{Ni}_{50}\text{Ta}_{50}$ [4]

La compréhension du mécanisme permettant la combinaison des métaux avec les alliages nécessite de s'intéresser à l'échelle de l'évolution micro-structurale. C. Suryanarayana [4] distingue trois types de combinaisons possibles en fonction de la ductilité des matériaux : (1) ductile-ductile, (2) ductile-cassant, (3) cassant-cassant.

Si l'on se focalise au cas des aciers ODS, c'est la deuxième catégorie qui nous intéresse. En effet, les particules d'oxyde étant cassantes, elles sont dispersées dans une matrice ductile. Lors de l'état 1 de la MA, la poudre d'acier ductile devient aplatie sous l'effet des chocs exercés par les billes lors de leurs collisions, tandis que les particules d'oxyde cassantes se fragmentent. Les fragments de particules cassantes tendent à être enfermés par les composants ductiles et piégés dans les particules ductiles. Le composé d'oxyde est alors étroitement espacé le long des surfaces inter-lamelles (figure 1.3 (a)).

Au cours du broyage, les flocons subissent encore plus de travail, les lamelles se vrillent, et la micro structure de la particule se raffine (figure 1.3 (b)). Progressivement, les lamelles s'affinent, les espaces inter-lames diminuent et la dispersion des particules d'oxydes s'uniformise (figure 1.3 (c)).

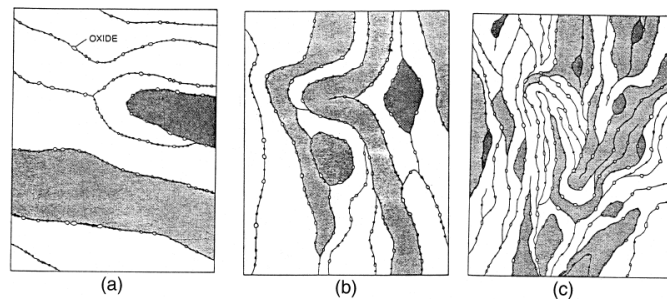


FIGURE 1.3: Schématisation de l'évolution microstructurale durant le broyage dans le cas de la combinaison de poudres ductile-cassantes [4].

La qualité de la production de la poudre dépend en grande partie du traitement transmis par le milieu, ainsi les paramètres du broyage doivent être ajustés pour optimiser le procédé. Ces paramètres dépendent principalement du type de broyeur utilisé.

Quelle que soit la conception, le principe de piéger la poudre avec un milieu mobile est toujours appliqué, néanmoins plusieurs méthodes peuvent être employées pour mettre le milieu en mouvement. Les broyeurs à billes sont usuellement classifiés en fonction de leur mécanisme d'entraînement et rentrent dans 4 catégories (figure 1.4) :

- Broyeur à boulets conventionnel
- Broyeur à billes planétaire
- Broyeur à billes vibratoire (mouvement de la bille oscillant)
- Attriteur

Dans le cadre du projet, il a été décidé d'utiliser un broyeur à boulets conventionnel, de la même taille que ceux utilisés dans les laboratoires. Celui-ci est composé d'une cuve cylindrique qui entre en rotation autour de son axe horizontal et d'un moteur qui l'entraîne. Comme le décrit la figure 1.4 (a), le broyage est réalisé par des billes qui sont introduites avec la poudre dans le tambour. Les avantages principaux de ce type de broyeur résident en la robustesse du procédé, le passage plus aisé de la dimension de laboratoire aux grandes dimensions et la possibilité de réaliser de gros volumes de production.

L'objectif de la thèse étant d'élaborer une instrumentation des broyeurs à boulets afin de suivre, contrôler et optimiser le procédé, il paraît important d'inventorier les paramètres pouvant être

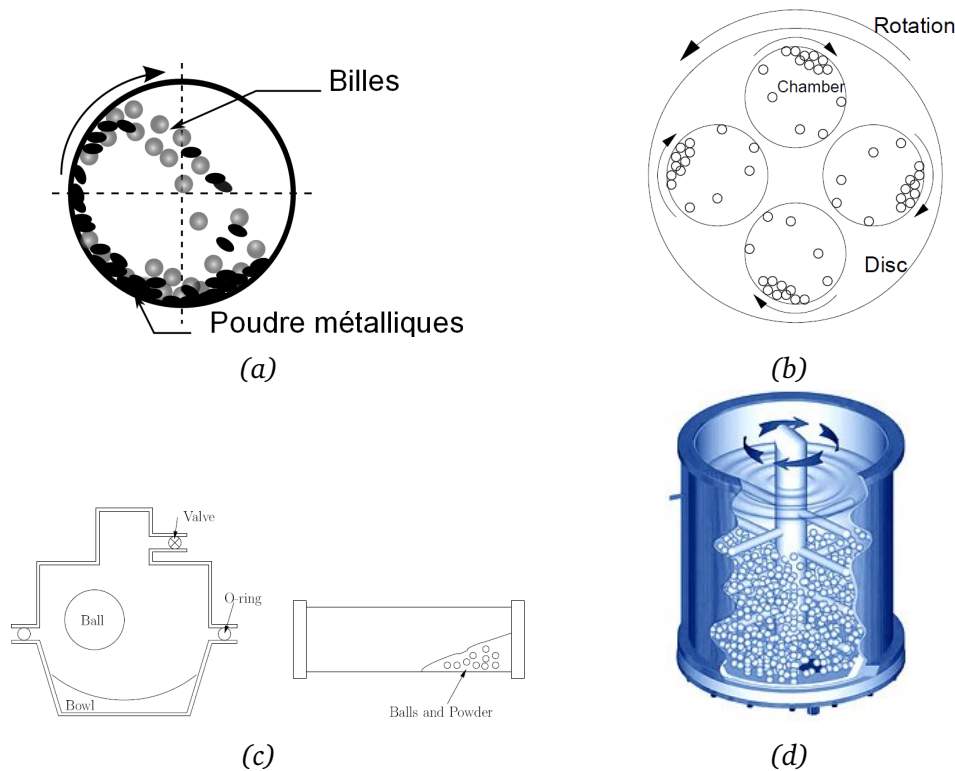


FIGURE 1.4: Schématisation des différents types de broyeur existants. (a) Broyeur à boulets conventionnel, (b) Broyeur à bille planétaire [3], (c) Broyeur à billes vibrant [3], (d) Attriteur [3]

influents lors du broyage. C'est l'objet de cette seconde partie.

1.2 Paramètres influents lors d'un broyage réalisé par broyeur à boulets

La mécano-synthèse est un procédé complexe qui nécessite l'optimisation d'un certain nombre de variables pour aboutir à un matériau présentant la micro-structure désirée. Les paramètres les plus importants dans le cas du broyeur à boulets conventionnel sont les suivants [4] :

- vitesse de rotation de la cuve,
- temps du broyage,
- type de billes, taille, et distribution de la taille du milieu broyant,
- rapport entre le poids des billes et celui de la poudre,
- atmosphère de broyage,
- temps du broyage.

Même si certaines de ces variables ne peuvent pas être ajustées indépendamment des autres du fait de leur interdépendance, chacune d'elles sont présentées brièvement dans les paragraphes qui suivent.

1.2.1 Vitesse de rotation de la cuve du broyeur

Plus la vitesse de rotation est grande, plus l'énergie transmise à la poudre est importante [7, 8]. Toutefois, la géométrie du broyeur impose une vitesse limite, qualifiée plus généralement de vitesse critique, pour laquelle les billes sont plaquées à la paroi et ne peuvent plus exercer d'impacts sur la

poudre [9, 10]. Ainsi, la vitesse maximum doit être ajustée de manière à ce que sa valeur soit juste en dessous de la vitesse critique, telle que la hauteur de chute de la bille soit la plus importante possible afin de transmettre lors de l'impact le maximum d'énergie. La section suivante présente de manière détaillée la méthode de détermination de la vitesse critique d'un broyeur à billes.

Rose et Sullivan, cités dans [9, 10], ont montré qu'en fonction de la vitesse de rotation, les billes adoptent des mouvements aux comportements différents (figure 1.5). Lorsque la vitesse de rotation de la cuve est très faible, les billes glissent sur le fond la cuve (mode glissement), tandis que lorsqu'elle est trop importante, la vitesse produit une force centrifuge conséquente qui maintient les billes sur la paroi de la cuve (mode centrifuge). Pour les vitesses intermédiaires, les billes sont entraînées du côté supérieur de la cuve au côté opposé avant de percuter le matériau (mode cascade et cataracte).

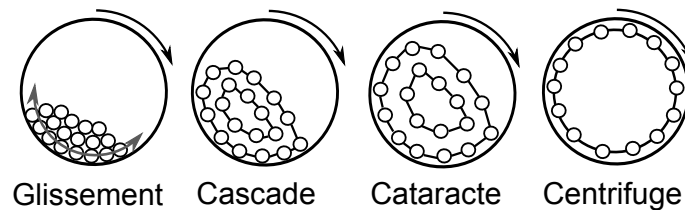


FIGURE 1.5: Description des différents modes de mouvements des billes [10]

Lorsque le mode centrifuge est atteint, les billes prennent la forme d'une couche qui épouse la géométrie interne de la cuve. La vitesse limite pour laquelle ce mouvement est adopté définit la vitesse critique. Une confusion dans la définition de ce terme subsiste néanmoins dans la littérature. L'expression première qui a été démontrée par Rose et Sullivan en 1957, définit la vitesse critique comme étant la vitesse pour laquelle une première rangée de billes est plaquée à la paroi. Toutefois, pour cette vitesse le reste de charge de billes continue à produire des chocs et donc à contribuer au broyage. C'est pourquoi une seconde définition est proposée bien plus tard par H. Watanabe en 1999 [9] en partant du postulat que la vitesse critique est réellement atteinte lorsque la totalité des billes se répartit autour de la paroi interne de cuve.

Les démonstrations qui conduisent aux expressions des vitesses critiques pour ces deux définitions sont présentées dans les parties qui suivent.

Première définition de la vitesse critique

La vitesse critique de rotation a tout d'abord été définie comme étant la vitesse de rotation pour laquelle les actions des composantes radiales de la force centrifuge (F_c) et de la force de pesanteur (P) d'une seule bille s'annulent au point B (figure 1.6). Le frottement entre les parois du cylindre et la surface de la bille est supposé assez grand pour négliger le glissement.

La bille de centre B, de masse m et de rayon r est en contact avec la paroi intérieure de la cuve de rayon R , et la position de son centre forme un angle Φ par rapport à l'horizontale. La cuve est en rotation autour de son axe central à la vitesse angulaire de rotation Ω . Soit F_r la somme des composantes radiales des forces exercées au point B, il vient alors

$$F_r = m\Omega^2(R - r) - mg\sin\Phi = 0, \quad (1.1)$$

où g désigne l'accélération gravitationnelle.

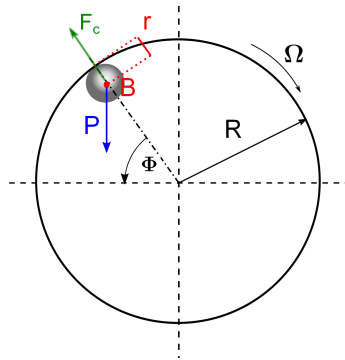


FIGURE 1.6: Schématisation des forces agissant sur une seule bille dans le cadre de la première définition de la vitesse critique

En définissant la vitesse angulaire de rotation telle que

$$\Omega = 2\pi n, \quad (1.2)$$

où n est la vitesse de rotation en nombre de révolutions par seconde, et en l'introduisant dans l'expression 1.1, il vient

$$n = \sqrt{\frac{g \sin \Phi}{(R - r)}} \frac{1}{2\pi}. \quad (1.3)$$

Le point pour lequel la bille fournit la quantité d'énergie la plus importante au broyeur, est le point pour lequel la hauteur de la chute est maximale, donc pour $\Phi = \frac{\pi}{2}$.

La vitesse critique de rotation n_c , devient donc

$$n_c = \sqrt{\frac{g}{(R - r)}} \frac{1}{2\pi} = \sqrt{\frac{2g}{(D - 2r)}} \frac{1}{2\pi} \quad (1.4)$$

en tours par seconde où D désigne le diamètre de la cuve, soit $n_c = \frac{43.5}{\sqrt{D}}$ tours par minute.

Cette relation démontrée en 1957 par Rose et Sullivan et couramment utilisée dans la littérature, définit donc la vitesse critique de rotation comme étant une constante qui dépend uniquement des dimensions du broyeur et du diamètre des billes.

Deuxième définition de la vitesse critique

La redéfinition de l'expression de n_c part du constat que la vitesse critique de rotation est atteinte lorsque qu'aucune bille ne contribue au broyage et donc que les billes se répartissent sous forme d'anneaux stationnaires autour de la paroi interne du broyeur. La force centrifuge exercée sur les billes localisées au niveau de l'anneau le plus éloigné de la paroi de rayon R_1 , doit alors compenser la composante radiale de la force de pesanteur exercée sur ces billes (figure 1.7).

En considérant une seule bille appartenant à l'anneau de rayon R_1 et en négligeant le rayon de la bille, il vient à partir de l'équation (1.4)

$$n_c = \sqrt{\frac{g}{(R_1)}} \frac{1}{2\pi}. \quad (1.5)$$

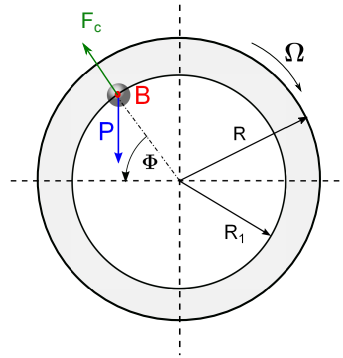


FIGURE 1.7: Schématisation des forces agissant sur une seule bille pour la deuxième définition de la vitesse critique [10]

Des mesures expérimentales observant l'évolution de la valeur de la vitesse critique de rotation en fonction du taux de remplissage de la cuve du broyeur (figure 1.8 (a)), ont montré que cette évolution n'était pas linéaire et qu'il était nécessaire qu'elle tienne compte du taux de remplissage. Ce dernier, décrit par la figure 1.8 (b), est défini tel que

$$\alpha = \frac{V_{billes}}{V_{cuve}}. \quad (1.6)$$

avec V_{cuve} le volume de la cuve et V_{billes} le volume occupé par la charge des billes.

Lorsque la vitesse critique est atteinte, la surface totale des anneaux doit être équivalente au rapport volumique de remplissage α [11, 12, 13]. L'égalité de surface revient donc à écrire

$$\pi(R^2 - R_1^2) = \alpha\pi R^2. \quad (1.7)$$

La relation entre la vitesse de rotation critique et le taux de remplissage se déduit de ces équations. Une nouvelle expression de la vitesse critique de rotation dépendant du rayon de la cuve et du rapport de volumique de remplissage est alors obtenue telle que

$$n_c = \sqrt{\frac{g}{(R\sqrt{1-\alpha})}} \frac{1}{2\pi}. \quad (1.8)$$

On peut également remarquer que la valeur de la vitesse critique définie par l'équation (1.4) est atteinte pour un taux de remplissage proche de 0.

Dans la littérature et dans un contexte industriel, c'est principalement l'expression provenant de la première définition qui est utilisée.

Par ailleurs, une faible vitesse de rotation peut être compensée en introduisant des barres de levage [10, 11, 12, 13]. Ces dernières consistent en des moulages d'acier, de section rectangulaire ou circulaire, et sont fixées à la partie circulaire de la cuve. De nombreuses études se sont intéressées aux effets induits par l'introduction de tels moulages dans la cuve. Les conclusions principales sont que la valeur de la vitesse critique minimum, pour obtenir le matériau désiré, diminue avec l'augmentation du nombre de barres de levages. Ce qui revient à dire que les mouvements de glissement des billes, qui ont lieu pour des faibles vitesses, sont limités au profit des mouvements susceptibles d'apporter le maximum d'énergie lors de l'impact. Enfin, une autre limitation aux grandes vitesses de rotation, provient de l'augmentation de la température dans la cuve, ce qui est susceptible de perturber le mécanisme de la mécano-synthèse [4].

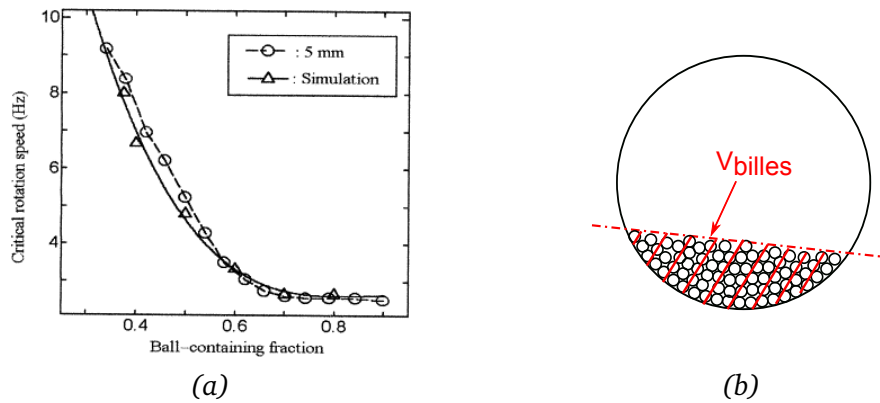


FIGURE 1.8: (a) Relation entre la vitesse critique de rotation définie par la deuxième définition et le rapport volumique de remplissage [9]. (b) Schématisation pour le calcul du rapport volumique de remplissage. La partie hachurée correspond au volume occupé par les billes.

1.2.2 Temps de broyage

Le temps de broyage est l'un des paramètres les plus importants [4]. Normalement la durée du broyage est fixée de telle sorte que la stabilisation entre les mécanismes de fracturation et de soudage soit atteinte (état 5 [3]). Le temps requis dépend en grande partie de l'intensité du broyage, du rapport billes/poudre et de la température du broyage. Il paraît évident qu'une durée importante de broyage permet de s'approcher au mieux d'une bonne dispersion des oxydes dans la matrice ductile. Néanmoins, il a été observé que le niveau de contamination de la poudre augmente et que des phases non désirables peuvent apparaître si la poudre a été broyée plus longtemps que nécessaire.

1.2.3 Type de billes, taille, et distribution de la taille du milieu broyant

Pour que l'énergie transmise à la poudre lors de l'impact entre les billes soit la plus forte possible, la densité du milieu broyant doit être la plus importante possible. Toutefois, afin d'éviter les contaminations croisées, le matériau constituant la cuve et les billes devrait être le même que celui de la poudre [4].

Par ailleurs, la taille du milieu broyant a également une influence sur l'efficacité du broyage. Une grande taille des billes est susceptible d'apporter une énergie plus importante lors de l'impact, alors que des billes de plus petite taille vont produire une action de friction intense. Suivant l'effet désiré il convient donc de choisir la distribution de la taille des billes.

1.2.4 Rapport entre le poids des billes et celui de la poudre

Le rapport entre le poids des billes et celui de la poudre (**BPR**) est étroitement lié au temps de broyage. Plus le BPR est important, plus court sera le temps de broyage nécessaire. En effet, puisque la proportion de billes augmente, le nombre de collisions par unité de temps est plus important ce qui permet de transférer plus d'énergie à la poudre et ainsi réaliser la mécano-synthèse plus rapidement [4].

1.2.5 Atmosphère de broyage

Le principal effet de l'atmosphère de broyage est le risque de contamination de la poudre. Il a été montré que la présence d'air dans la cuve a pour effet de contaminer et de modifier la nature

finale de la poudre. C'est pourquoi, le matériau est broyé dans une cuve mise sous vide ou remplie d'un gaz inerte tel que l'argon ou l'hélium.

1.2.6 Température du broyage

La température de broyage est un paramètre supplémentaire ayant une grande influence sur la constitution de l'état final de la poudre. Les modifications induites par ce paramètre étant à l'échelle de la micro-structure, elles ne feront pas l'objet d'une description approfondie.

1.3 Étude de l'évolution de la granulométrie d'une nuance de poudre Fe14Cr à plusieurs étapes du procédé de mécano-synthèse

Les sources bibliographiques qui portent sur le mécanisme de mécano-synthèse suggèrent une évolution de la morphologie des grains constituant les poudres métalliques (figure 1.1 et 1.2). Les évolutions annoncées sont néanmoins théoriques et diffèrent en fonction des matériaux utilisés [4]. C'est pourquoi cette section propose une étude approfondie de l'évolution, en cours de broyage, de la géométrie des grains (tailles et formes) constituant les poudres utilisées spécifiquement dans le cas de la synthèse des aciers ODS pour le projet Odissée (nuance Fe14Cr avec renforts de TiH₂ et Y₂O₃).

Les caractérisations des poudres qui sont proposées ont été fournies par Mécachrome et consistent en deux méthodes. La première consiste en la réalisation de clichés par microscopie électronique à balayage (MEB) de manière à suivre qualitativement l'évolution de la forme des grains. Une seconde analyse permettant la caractérisation de la taille des grains des poudres obtenues à différentes étapes de broyage par granulométrie laser est ensuite présentée.

1.3.1 Images MEB à différentes étapes de broyage

Les différents clichés pris par microscopie électronique à balayage, avec le même grossissement et à différentes étapes du broyage (0h, 44h, 88h, 176h et 352h), témoignent d'une évolution rapide en début de cycle de la morphologie des grains de poudre (figure 4.2). Dès 44h de broyage, les grains ont pris une forme aplatie qui tend par la suite à s'effacer au profit de formes de moins en moins aplaties. Cette évolution témoigne donc de l'intensité des chocs et des fortes sollicitations plastiques subies par les grains.

1.3.2 Évolution de la granulométrie à différentes étapes du broyage

La granulométrie laser est une méthode couramment utilisée dans la métallurgie des poudres pour la détermination de la taille et de la fréquence statistique des différentes tailles de l'ensemble étudié. Cette technique de caractérisation s'appuie sur le principe de diffraction et de diffusion laser. La figure 1.10 (a) présente les distributions moyennes sur cinq échantillons de la taille des grains de poudres obtenues à différentes étapes de broyage. Cette figure met clairement en évidence les changements qui s'opèrent sur la taille moyenne et sur la largeur de la distribution de taille des grains lors du broyage. Pour visualiser ces deux évolutions, les tailles pour lesquelles les distributions sont à leur maximum sont relevées et reportées sur la figure 1.10 (b). Leurs largeurs à mi-hauteur, qui donne des indications quant à l'évolution de la polydispersité (largeur de la distribution de la taille des grains) des différents échantillons, sont également reportées et représentées sur cette figure sous la forme de barres d'erreurs. Pour visualiser davantage les changements de la polydispersité, cette dernière est représentée figure 1.11 à travers l'évolution en fonction du temps

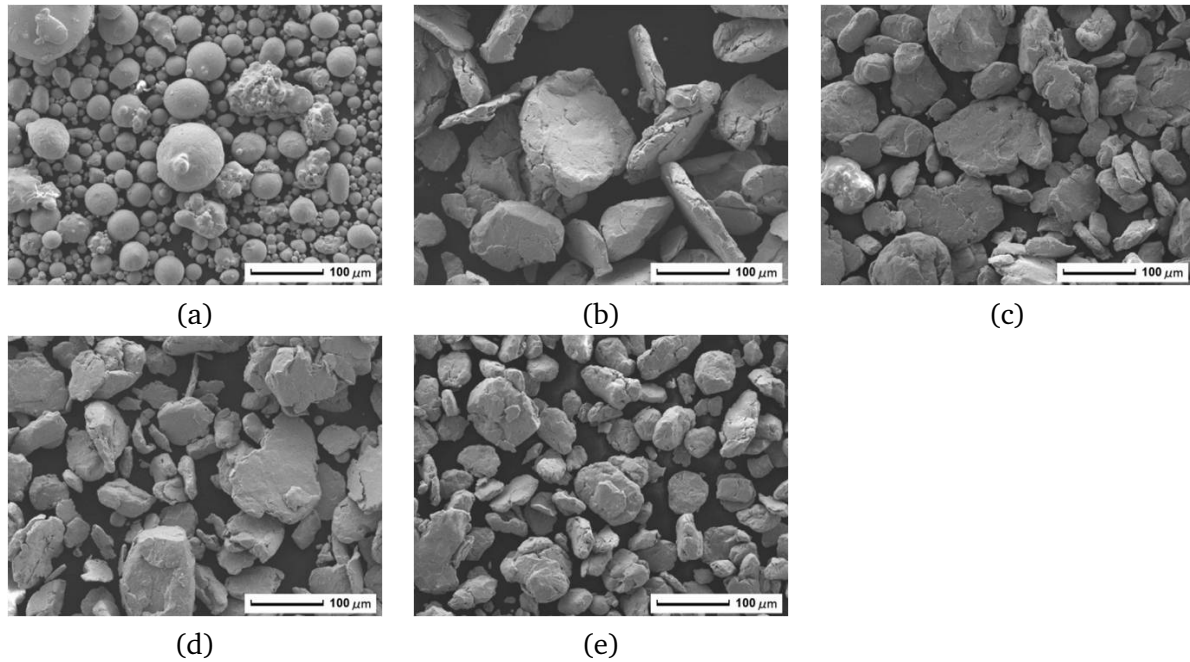


FIGURE 1.9: Images réalisées par microscope électronique à balayage avec le même grossissement sur des échantillons de poudres extraits à différentes étapes de broyage, (a) en début de broyage, (b) après 44h de broyage, (c) après 88h de broyage, (d) après 176h de broyage et (e) après 352h de broyage.

de broyage de la distribution relative de la taille des grains $\overline{\Delta W} = \Delta W / \langle a \rangle$, où $\langle a \rangle$ est le rayon moyen des grains et ΔW la largeur à mi-hauteur de la fonction de distribution de la taille des grains.

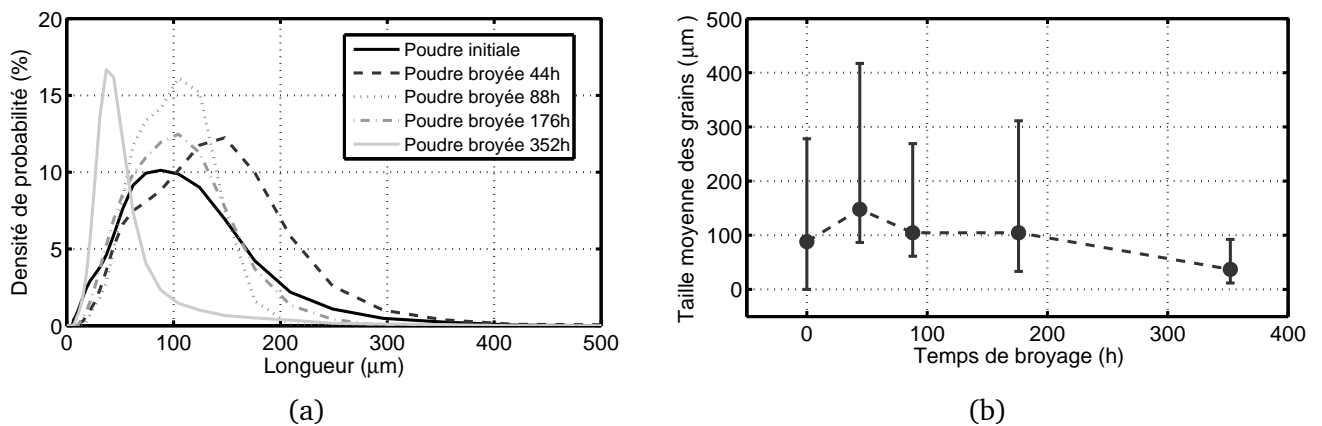


FIGURE 1.10: (a) Distributions moyennes en nombre de la longueur des grains mesurées par granulométrie laser. (b) Taille moyenne des grains et largeur de la distribution de la taille des grains (barres d'erreurs) en fonction du temps de broyage

Bien qu'elle s'étende sur une durée plus longue que celle présentée figure 1.2, cette évolution est en accord avec celle qui a été décrite et représentée par Suryanarayana [4]. En début de broyage, le mécanisme de soudage prédomine, ce qui conduit à une augmentation de la taille moyenne des grains jusqu'à 44h de broyage. Au delà de la durée de 44h de broyage, une partie des grains ont atteint leur limite de déformation plastique et se fracture ce qui se traduit par une diminution de leur taille. Cette diminution de la taille se poursuit ensuite tout au long du broyage en suivant une

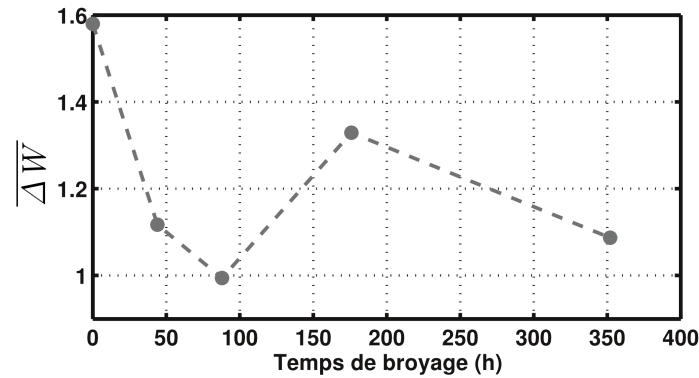


FIGURE 1.11: Distribution relative de la taille des grains en fonction du temps de broyage.

évolution non monotone. La forte décroissance observée entre 44h et 88h pourrait être caractéristique de l'état pour lequel le mécanisme de fracture prédomine. La diminution de l'inclinaison de la pente après 88h de broyage pourrait être représentative d'un état où les deux mécanismes s'équilibrent puis se raréfient. De même la polydispersité évolue de manière non-monotone tout au long du broyage.

La mesure des évolutions morphologiques donne donc des indications sur la présence des mécanismes élastiques qui se succèdent en cours de broyage.

1.4 Conclusion

Ce chapitre a consisté dans un premier temps en la présentation du mécanisme de la mécano-synthèse, des mécanismes de déformation qui sont mis en jeu et des transformations des grains de poudres qu'elles soient d'ordre morphologique ou microstructurale qu'ils entraînent. Les caractérisations morphologiques d'échantillons extraits à différentes étapes de broyage ont permis d'illustrer les évolutions annoncées dans la littérature et de donner des indications quant aux présences des mécanismes élastiques qui se succèdent au cours du broyage de la nuance d'acier ODS du CPR Odissée.

La méthode de mesure par granulométrie laser présente l'avantage d'obtenir des données avec une bonne représentativité statistique, toutefois des sources d'erreurs notamment dans les cas de poudres métalliques avec des morphologies et des distributions de tailles complexes ont été relevées [14]. Des travaux réalisés lors d'un stage au CEA portant sur la comparaison des données granulométriques avec ceux obtenus par analyses d'images fait état de trois principaux biais :

- le modèle de calcul du diamètre des grains repose sur la sphéricité des particules ce qui engendre une approximation au niveau de la détermination de la taille,
- la méthode présente une limite inférieure de mesure ce qui peut entraîner une surestimation de la taille des populations,
- lors du passage des grains devant le faisceau laser, les grains sont susceptibles de former des amas qui seront détectés comme un seul grain de grande taille.

En dépit des limitations qui ont été évoquées, les évolutions de la taille de grains mesurées par analyse d'image sont similaires aux données obtenues par granulométrie laser [14]. Aussi, ces dernières serviront de données de référence lors de l'utilisation de ces échantillons pour l'élaboration de méthodes de caractérisation ultrasonores ou pour les mesures in-situ sur le broyeur installé au

LAUM.

Par ailleurs, dans ce chapitre, les paramètres de broyage influents sur le bon déroulement du procédé de mécano-synthèse ont été présentés. Ces connaissances serviront de base pour la prise en main du broyeur installé au LAUM et dédié spécifiquement à ces travaux de thèse.

Première partie

CARACTÉRISATION ULTRASONORE DES POUDRES EXTRAITES À DIFFÉRENTES ÉTAPES DE BROYAGE

Chapitre 2

PROPAGATION ACOUSTIQUE DANS LES MILIEUX GRANULAIRES

La description du procédé de mécano-synthèse, qui a fait l'objet du chapitre précédent, fait état des modifications de la morphologie des grains en cours de broyage. Ces évolutions morphologiques, qui sont la conséquence de la succession des processus de soudure et de fragmentation, constituent donc une information clé pour le suivi des différentes étapes du procédé de broyage.

En partant du constat que les poudres d'acier ODS peuvent être assimilées à un milieu granulaire non cohésif, le travail bibliographique s'est principalement orienté sur des études qui permettent une qualification des caractéristiques morphologiques du milieu par des méthodes acoustiques.

Les milieux granulaires sont des milieux bi-phasiques. L'une des phases est composée des grains et forme le squelette solide et la seconde est constituée d'un fluide saturant l'ensemble. Cette composition entraîne dans le cas d'un empilement granulaire une hétérogénéité de la répartition spatiale des contraintes mécaniques et donc une forte instabilité de l'ensemble. Lorsqu'il est soumis à des perturbations extérieures, certains grains vont se mouvoir et occuper progressivement les espaces vides de la partie fluide du matériau. La capacité des grains à occuper les espaces vides dépend principalement de leur forme et de leur taille [15, 16, 17]. En comblant ces intervalles les grains augmentent la densité du matériau, on parle alors de compaction, ce qui conduit à une réorganisation de la répartition des chaînes de forces et des interactions entre les grains. Par conséquent, le suivi de la réorganisation de l'ensemble granulaire sous l'effet d'une sollicitation extérieure peut conduire à l'identification des caractéristiques géométriques du milieu (tailles moyenne, dispersion de la taille et formes des grains).

De nombreux travaux antérieurs, théoriques et expérimentaux, ont montré que l'étude de la propagation des ondes ultrasonores à travers un milieu granulaire confiné peut fournir des indications sur la structure et les propriétés visco-élastiques du réseau de contacts de l'assemblage granulaire [18, 19, 20, 21]. L'étude du comportement mécanique et acoustique du milieu granulaire, lorsqu'il est soumis à des efforts extérieurs, est donc susceptible d'apporter des informations quant à l'évolution du réseau de contacts et des interactions tout au long de ces sollicitations.

Ce chapitre regroupe les notions de base de la mécanique des contacts et de la propagation acoustique dans les milieux granulaires. Les notions de base de la micro-mécanique des contacts sont tout d'abord abordées. Les lois de contacts qui sont présentées constituent la base de la théorie des milieux effectifs qui décrit la propagation des ondes acoustiques à travers un assemblage granulaire, lorsque ce dernier est vu comme un milieu effectif et que les ondes se propagent de la même manière que le ferait les ondes cohérentes. La description de cette théorie, qui donne entre autre l'expression de la vitesse propagation de l'onde cohérente en fonction de différents paramètres

dont les caractéristiques géométriques de l'assemblage, fait l'objet de la section suivante. Enfin, les deux principales méthodes de caractérisation ultrasonore qui permettent de sonder l'élasticité du milieu granulaire par la mesure des ondes cohérentes sont présentées dans la dernière partie de ce chapitre.

2.1 Micro-mécanique des contacts

Les comportements mécaniques des milieux granulaires dépendent des interactions des grains entre eux, mais aussi des grains avec leur environnement (le fluide saturant, les parois, etc...). Lorsque l'interaction avec le fluide saturant l'espace inter-grains est négligeable, le milieu granulaire est dit "sec". Le comportement macroscopique des milieux granulaires secs est alors en partie conditionné par les propriétés mécaniques des contacts inter-grains. En effet, les diverses manifestations exhibées sous sollicitations extérieures sont principalement déterminées par la nature des interactions mécaniques des particules entre elles et avec les parois. Ainsi, le point de départ de la compréhension de la physique de ces milieux et de la plupart des études sur les milieux granulaires est la théorie du contact.

A l'échelle du contact, c'est en 1880 que Hertz a pour la première fois utilisé l'élasticité linéaire des milieux continus pour calculer la relation force/déplacement entre deux sphères en contact, lorsqu'elles sont soumises à une force normale F_n [22].

2.1.1 Contact de Hertz

La théorie de Hertz permet de modéliser les contacts entre deux billes supposées purement élastiques et subissant une compression comme illustré figure 2.1. Cette théorie exprime la pression au niveau du contact (P_0), la distance d'interpénétration (ξ) et l'aire de la surface de contact de deux billes écrasées l'une sur l'autre par une force normale (F_n) [22].

On considère deux billes de même matériau et de rayon moyen $R = R_i R_j / (R_i + R_j)$.

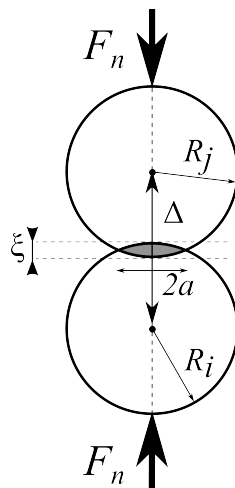


FIGURE 2.1: Contact de Hertz : lorsque deux sphères élastiques (i, j) d'une distance d'inter-centre $\Delta_0 = R_i + R_j$, sont comprimées l'une contre l'autre par une force normale F_n . Elles subissent une déformation au voisinage de la zone de contact, l'aire de contact ainsi formée prend la forme d'un disque de rayon a . La distance entre les centres des sphères diminue alors de $\xi = \Delta_0 - \Delta$ [22].

Lorsque les grains sont simplement en contact, sans contrainte extérieure appliquée, alors le contact est ponctuel (figure 2.1). En revanche, lorsque les grains sont comprimés les uns contre les

autres en exerçant une force F_n , ils s'aplatissent, une déformation locale apparaît dans une petite région de forme circulaire autour du point de contact initial et la distance inter-centre diminue de $\Delta_0 - \Delta$ (figure 2.1). On suppose que ce plan tangent de contact reste stationnaire au cours de la compression et que ξ caractérise la distance d'interpénétration des centres des sphères au cours de la compression (figure 2.1). Dans l'état comprimé, la force F_n est essentiellement répartie dans la zone de contact de surface πa^2 . Soit σ la contrainte moyenne agissant sur la surface de contact. La loi de Hooke énonce que la déformation relative ε entre les deux sphères est proportionnelle à la pression (ou contrainte σ) exercée selon :

$$\sigma = E\varepsilon, \quad (2.1)$$

où E représente le module de Young du matériau constituant les billes. L'ordre de grandeur de la déformation relative correspond au rapport de l'écrasement sur le rayon de l'air de contact et peut s'exprimer de la forme

$$\varepsilon \approx \frac{\xi}{a}. \quad (2.2)$$

En appliquant le théorème de Pythagore, $R^2 = (R - \xi)^2 + a^2$ et en négligeant les termes d'ordre supérieur en ξ^2 , il vient la relation entre le rayon de la zone de contact et la déformation imposée telle que

$$a \approx \sqrt{\xi R}. \quad (2.3)$$

De plus en supposant une distribution de la force homogène à l'aire de contact a , la contrainte σ supportée par chaque bille est

$$\sigma = \frac{F_n}{\pi a^2} \propto E \sqrt{\frac{\xi}{R}}. \quad (2.4)$$

Ainsi, en réinjectant les équations (2.2) et (2.4) dans l'équation (2.1), la distance d'interpénétration devient

$$\xi \approx \left(\frac{F_n}{ER^{1/2}} \right)^{2/3}. \quad (2.5)$$

Cette loi connue sous le nom de loi de Hertz, montre que l'interpénétration entre les billes est une fonction non linéaire de la force qui les comprime.

De même en combinant les équations (2.3) et (2.5), il vient comme expression du rayon de l'aire de contact

$$a \approx \left(\frac{F_n R}{E} \right)^{1/3}. \quad (2.6)$$

En faisant l'hypothèse que les sphères sont élastiques, il est possible de calculer exactement l'état des contraintes. Pour obtenir l'expression exacte de a et ξ il faut faire appel à la loi de Hertz qui établit la théorie du contact statique entre deux corps solides en résolvant les équations de l'élasticité linéaire. Hertz se place dans le cas limite des faibles déformations ($\xi \ll a \ll R$) et se pose les hypothèses de calcul suivantes :

- Les surfaces de chaque corps sont supposées sans frottement pour que seule une force normale puisse se transmettre au cours de la compression.
- La rugosité des sphères est négligée, le contact est supposé continu.

- Pour calculer les déformations locales, chaque corps est considéré comme un milieu semi-infini.

Partant de l'équation de la surface de chaque corps au voisinage de leur point de contact, Hertz écrit ensuite deux relations entre la distribution de la pression de contact et chaque composante normale des déplacements des deux surfaces sous l'effet de cette pression. En combinant ces deux relations et en faisant une analogie avec un problème d'électrostatique, la distribution de la pression à l'intérieur de la surface de contact a pu être déterminée.

Pour la configuration de contact sphère-sphère, l'ouvrage de K.L. Johnson [22] donne les expressions

$$a = \left(\frac{3F_n R}{4E^*} \right)^{1/3} \quad (2.7)$$

et

$$\xi = \frac{a^2}{R} = \left(\frac{9F_n^2}{16R(E^*)^2} \right)^{1/3}, \quad (2.8)$$

où $E^* = E/2(1 - \nu^2)$ est le module réduit. Cette relation force-déplacement est non linéaire, en effet le déplacement est proportionnel à la puissance 2/3 de la force normale appliquée. En outre, cette non-linéarité provient uniquement de la géométrie du problème, elle est induite par l'augmentation de la surface de contact avec la force de contact. La force de contact (F_n) peut alors s'exprimer en fonction de l'écrasement telle que

$$F_n = \frac{2}{3} R^2 k_n \left(\frac{\xi}{R} \right)^{3/2}, \quad (2.9)$$

où $k_n = 4\mu/(1 - \nu) = 2E^*$ est la raideur normale, avec μ le module de cisaillement et ν le coefficient de Poisson.

2.1.2 Contact de Mindlin

Si une force tangentielle F_t est appliquée en plus de la force normale F_n , comme illustré sur la figure (2.2), elle cause une déformation élastique à l'interface. La relation entre le déplacement tangentiel pour deux grains soumis à une force oblique de confinement a été étudiée par *Mindlin* dans les années 1950 [22]. Son modèle prend en compte le glissement associé à la force de frottement de *Coulomb* $F_t = \mu F_n$, où μ_d est le coefficient de friction dynamique. D'après la loi de frottement de *Coulomb*, si $F_t < \mu F_n$, les deux billes restent en contact du fait de la friction. Contrairement au problème normal, les contraintes tangentielles appliquées à la surface sont nulles au centre du contact et augmentent en s'écartant du centre. Dans le cas général, la surface de contact est donc séparée en deux parties, une surface d'adhérence au centre et un anneau extérieur de glissement. C'est le phénomène d'adhésion/glissement (*stick/slip*). La relation entre le déplacement relatif tangentiel des billes τ , la composante tangentielle de la force F_t et la composante normale F_n de la force appliquée s'écrit alors

$$\tau = \mu(2 - \nu)(1 + \nu) \left(\frac{9}{16} \frac{F_n^2}{R(1 - \nu^2)E^2} \right)^{1/3} \left[1 - \left(1 - \frac{F_t}{\mu F_n} \right)^{2/3} \right]. \quad (2.10)$$

Cette relation est également non linéaire, mais ici, les possibilités de glissement peuvent faire apparaître un effet d'hystérésis [22].

Dans le cas de petites perturbations autour d'un chargement statique appliqué sur le contact (avec une force statique appliquée F_0 et $F_t \ll F_0 \mu_f$), les relations de *Hertz - Mindlin* peuvent

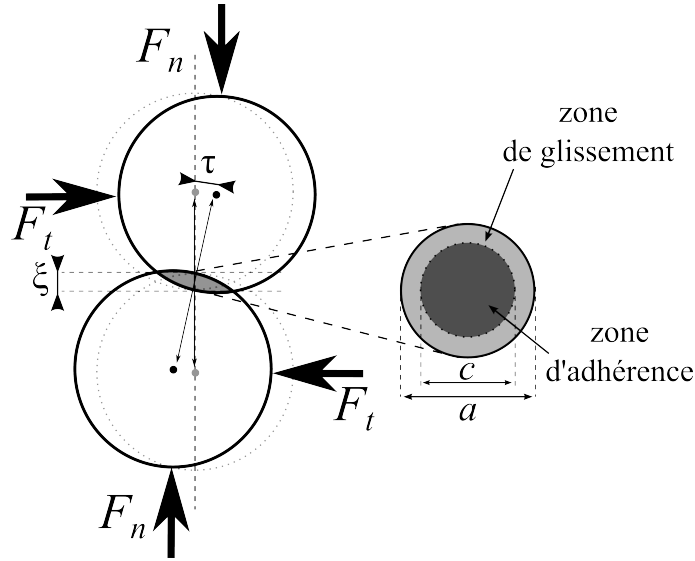


FIGURE 2.2: Contact de Mindlin : lorsque l'on tient compte des forces tangentielles F_t , par frottement solide, le centre des grains se déplace d'une distance τ . La contrainte tangentielle diverge à proximité des bords du contact, entraînant des micro-glissements et une relaxation de la contrainte dans une région périphérique annulaire de rayon intérieur $c = a(1 - F_t/\mu F_n)^{1/3}$ et de rayon extérieur a .

être linéarisées. En prenant l'exemple de la force normale appliquée par une bille 2 sur une bille 1, la relation force-déplacement exprimée par la relation (2.9), peut également s'écrire

$$F_n^{2 \rightarrow 1} = \frac{E\sqrt{2R}}{3(1-\nu^2)} \xi^{3/2}. \quad (2.11)$$

En décomposant le déplacement relatif $\xi = \xi_0 + \xi'$ en une partie statique ξ_0 et une partie dynamique ξ' avec $\xi' \ll \xi_0$, un développement de Taylor autour de ξ_0 à l'ordre 1 de l'équation (2.11) donne

$$F_n^{2 \rightarrow 1} = F_n^{1 \rightarrow 2}(\xi_0) + \frac{\partial F_n^{1 \rightarrow 2}}{\partial \xi} \Big|_{\xi_0} (\xi - \xi_0) + R((\xi - \xi_0)^2) = F_n + \left(\frac{3R}{4} F_0\right)^{1/3} E^{2/3} (1-\nu^2)^{-2/3} \xi' + R(\xi'^2). \quad (2.12)$$

Dans un système en équilibre, les forces statiques appliquées par les billes voisines sur une bille s'annulent, ce qui permet de ne considérer que la partie dépendante de ξ' de l'équation (2.12) dans la résolution du problème dynamique. Ceci permet de considérer chaque contact comme un simple ressort [23], un premier ressort pour les interactions normales avec la raideur

$$K_n = \left(\frac{3R}{4} F_n\right)^{1/3} E^{2/3} (1-\nu^2)^{-2/3}, \quad (2.13)$$

et un deuxième ressort pour les interactions transverses avec la raideur

$$K_t = (6RF_n)^{1/3} E^{2/3} \frac{(1-\nu^2)^{1/3}}{(1+\nu)(2-\nu)}. \quad (2.14)$$

Dans ce cas, la variation de force par de petits déplacements est considérée proportionnelle aux déplacements relatifs. La dépendance importante des rigidités sur la force normale statique appliquée conduit à la propriété intéressante que les propagations d'ondes de volumes peuvent être modifiées en faisant varier le chargement appliqué sur l'assemblage granulaire.

2.2 Approche des milieux effectifs

L'idée principale de la théorie des milieux effectifs est que le travail macroscopique effectué dans le milieu est équivalent à la somme du travail microscopique exercé sur chaque contact entre les grains et que ce dernier est remplacé par une moyenne appropriée. Cette théorie est basée sur la loi de contact du modèle de *Hertz – Mindlin* [24].

Comme il a été vu précédemment, l'amplitude de la force de contact F_n entre deux sphères identiques est reliée au déplacement normal ξ selon une loi d'élasticité non linéaire du type $F_n \propto \xi^{2/3}$, qui conduit à des raideurs K_n et K_t dépendantes de $F_n^{1/3}$.

Pour assurer le passage micro/macroscopique - d'un seul contact à un réseau de contacts- il est nécessaire de se reporter à la théorie des milieux effectifs [17, 22, 21, 24]. Cette théorie repose essentiellement sur une approche statistique de champ moyen et nécessite l'introduction de deux nouvelles variables : la coordinance (Z) et la compacité (ϕ). Z est définie comme le nombre moyen de contacts par grains et ϕ correspond au rapport du volume occupé par les grains sur le volume total de la cellule, aussi appelé fraction volumique.

Dans le cas d'un empilement de sphères élastiques identiques aléatoirement réparties sous compression isotrope, les modules élastiques effectifs de compression et de cisaillement sont respectivement de la forme

$$K_{eff}(P) = \frac{k_n}{12\pi} (\phi Z)^{2/3} \left(\frac{6\pi P}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (2.15)$$

et

$$\mu_{eff}(P) = \frac{k_n + (3/2)k_t}{20\pi} (\phi Z)^{2/3} \left(\frac{6\pi P}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (2.16)$$

où $k_n = 4\mu/(1 - \nu)$ et $k_t = 8\mu/(2 - \nu)$, μ et ν étant respectivement le module de cisaillement et le coefficient de Poisson des grains. L'indice "*eff*" signifie que le module est calculé en considérant le milieu granulaire comme étant purement élastique et comme étant un milieu effectif. On considère donc que les ondes acoustiques se propagent de la même manière que le ferait des ondes cohérentes à travers un solide homogène. Par ailleurs, deux hypothèses sont indissociables de la théorie des milieux effectifs. En premier lieu, les sphères sont considérées comme étant statistiquement identiques et autour de chaque sphère la distribution des contacts est isotrope. En second lieu, du fait de la distribution isotrope des contacts, les grains sont toujours en équilibre ce qui exclue les effets de relaxation. Ainsi, cette théorie des champs moyens est assimilable à une moyenne de nombreux ressorts identiques et non linéaires.

Les expressions des vitesses de propagation des ondes effectives longitudinales (V_p) et transversales (V_s) sont alors données par

$$V_p = \sqrt{\frac{K_{eff} + \frac{4}{3}\mu_{eff}}{\rho_{eff}}} = \sqrt{\frac{E_{eff}}{\rho_{eff}}} \quad (2.17)$$

et

$$V_s = \sqrt{\frac{\mu_{eff}}{\rho_{eff}}}. \quad (2.18)$$

Le symbole (*eff*) renvoie aux quantités effectives qui sont ρ_{eff} la densité effective du matériau granulaire et E_{eff} le module de Young. En combinant les équations (2.15), (2.16), (2.18) et (2.17), on trouve que la loi d'échelle associée aux vitesses longitudinales et transversales, dépend de la

fraction volumique (ϕ), du nombre de coordiance (Z) et de la pression de confinement (P) telle que :

$$2V_s \sim V_p = \left\{ \frac{1}{\rho_{mat}^{1/2}} \left[\frac{k_n}{12\pi} + \frac{k_n + \frac{2}{3}k_t}{15\pi} \right]^{1/2} \left(\frac{6\pi}{k_n} \right) \right\}^{1/6} \phi^{-1/6} Z^{1/3} P^{1/6}. \quad (2.19)$$

Cette expression peut être décomposée en trois parties distinctes. La première partie contenue dans les accolades dépend uniquement des paramètres du matériaux formant les grains (les paramètres élastiques et la masse volumique du matériau). La seconde partie de cette expression regroupe les paramètres géométriques du milieu granulaire avec les termes $\phi^{-1/6} Z^{1/3}$. Ces quantités sont fortement dépendantes des caractéristiques morphologiques du milieu granulaire (taille de grain, formes et polydispersité) [15, 17, 25, 26, 27, 28, 29, 30]. Enfin, la dernière partie dépend des conditions extérieures de l'assemblage à travers la dépendance en $P^{1/6}$ où P est la pression exercée sur l'assemblage granulaire. Les variables contenues dans ces deux dernières parties sont fortement dépendantes de la configuration de l'assemblage granulaire (profondeur du milieu, distance entre les différentes parois de la cellule qui contient le milieu,...etc) et de son histoire (protocole de préparation). Ces paramètres et leur dépendances sont explicités dans les sous parties suivantes [17, 25, 31, 32].

2.2.1 Paramètres géométriques de l'assemblage

Fraction volumique

La fraction volumique (ou compacité) ϕ caractérise l'empilement des particules. Ce paramètre est défini comme le rapport du volume occupé par les grains sur le volume total occupé par l'empilement tel que

$$\phi = \frac{V_{grains}}{V_{total}}. \quad (2.20)$$

Comme le laisse entrevoir cette expression, la fraction volumique ne peut dépasser la limite de 1. Ce cas correspondrait à un empilement où les grains occuperait la totalité de l'espace. Si l'on s'intéresse aux cas réels d'empilements sous gravité de grains frottant, il existe une gamme de fractions volumiques correspondant à des empilements stables. Suivant le mode de préparation les empilements peuvent être plus ou moins lâches (ϕ faible) ou dense (ϕ élevé). La fraction volumique est alors comprise entre un minimum correspondant à un empilement le plus lâche et un maximum correspondant à l'empilement le plus dense. Sous l'action de sollicitations extérieures le milieu peut également voir sa fraction volumique varier dans le temps.

La manière dont l'empilement se réarrange que ce soit sous l'action de compaction uniaxiale ou de vibrations dépend d'un nombre important de paramètres physiques du milieu, tels que la distribution des tailles et de la forme des grains, les frottements entre grains (friction) et les frottements entre grains et parois latérales du récipient [15, 17, 25, 31]. Dans le cas d'un empilement monodisperse, c'est-à-dire d'un milieu composé de billes de même taille, il a été montré expérimentalement que la compacité des empilements désordonnés gravitationnels (mécaniquement stables sous gravité) reste comprise entre deux valeurs limites [25, 33, 34]. La valeur inférieure est celle de "l'empilement aléatoire lâche" ou "random loose packing" (RLP), qui est l'empilement désordonné le moins dense et dont la compacité est de l'ordre de $\phi_{RLP} \approx 55\%$. La limite supérieure renvoie à l'empilement désordonné le plus compact, "l'empilement aléatoire dense" ou "random close packing" (RCP), pour lequel la compacité est estimée à $\phi_{RCP} \approx 64\%$. Ces deux valeurs correspondent

respectivement à l'état le plus lâche où le potentiel de mouvement de chaque grain est le plus élevé et à l'état où le potentiel de mouvement est le plus faible, voir nul. Au delà de cette limite, les arrangements sont dits ordonnés et les plus compacts tels que l'arrangement cubique face centré et l'arrangement hexagonal, peuvent atteindre une compacité $\phi = 0.74\%$.

La manière la plus simple d'obtenir un empilement granulaire aléatoire est de le verser dans un récipient les grains. Les compacités obtenues peuvent alors varier de 0.58 à 0.61 pour des empilements instables sous vibrations. En réduisant les effets de la gravité il est possible d'atteindre des compacités inférieures telles que $0.56 \leq \phi \leq 0.58$, notamment en injectant des gaz sous pression par dessous l'empilement [33]. Pour atteindre le "random loose packing" il faut donc s'affranchir des effets de la gravité. La structure atteint alors un seuil de percolation où l'effet de dilatance (expansion du milieu granulaire sous l'effet de contrainte de cisaillement) du milieu disparaît [17]. Des compacités plus élevées peuvent également être atteintes dans la gamme 0.61 à 0.64 si l'empilement est soumis à des vibrations durant un temps suffisamment long. Si la compacité d'un empilement monodisperse dépasse la valeur $\phi = 0.64$, alors l'empilement se cristallise partiellement.

Les caractéristiques morphologiques sont également susceptibles de jouer un rôle dans l'évolution de ϕ . En effet, pour les empilements polydisperses, c'est-à-dire de grains de tailles variées, plus proches des milieux naturels, les compacités maximales obtenues sont bien supérieures au RCP de l'empilement monodisperse [15, 33, 34]. L'augmentation des irrégularités de forme des grains a un effet contraire à celui de la polydispersité. En effet, la compaction (densification du milieu) est d'autant plus rapide que l'empilement a un frottement limité aux parois. Aussi, lorsque les formes des grains tendent à devenir irrégulières et angulaires le frottement effectif aux parois s'en trouve augmenté. Les effets de formes sont également susceptibles de jouer un rôle à un niveau géométrique en frustrant les mouvements de rotations des particules nécessaires au réarrangement de l'assemblage granulaire lors de la compaction.

Nombre de coordinance

Le nombre de contacts d'une bille avec ses voisines permet une mesure topologique simple de l'empilement sur sa stabilité et sa cohésion. Les premières études sur la stabilité de ces structures ont été réalisées par Lagrange et Maxwell, avec comme hypothèse l'équilibre entre le nombre de degrés de liberté du système et le nombre de contraintes [17, 19].

Pour chaque particule, un certain nombre de contacts est nécessaire pour geler ses degrés de liberté et permettre au système d'atteindre l'équilibre statique. En considérant dans un premier temps un arrangement cubique à l'équilibre, de N particules identiques de diamètre d , rigides et non frottantes, cela implique que les forces soient toutes normales au contact. Le nombre de contacts moyen par particule peut alors être exprimé tel que $Z = 2N_c/N$, N_c étant le nombre de contacts dans le système et le facteur 2 provenant du fait qu'un contact compte pour deux particules. Le respect de la condition d'équilibre impose l'existence d'une solution pour la répartition des forces et donc suppose qu'il y a moins d'équations ($3N$ équations en 3D) que d'inconnues. Cela implique

$$3N \leq N_c, \quad (2.21)$$

et donc

$$Z \geq 6, \quad (2.22)$$

en introduisant le nombre de coordinance.

En tenant compte de la condition de non-interpénétrabilité des grains qui est nécessairement vérifiée par l'assemblage il vient

$$N_c \leq 3N. \quad (2.23)$$

Ainsi, le dénombrement des équations d'équilibre d'une part, et des contraintes géométriques d'autre part, conduit donc au résultat tel que le nombre moyen de contacts pour chaque grain, dans le cas d'un arrangement cubique, est $Z = 6$ en 3D.

L'étude d'un empilement de grains réels conduit à la prise en compte de contacts frictionnels. Si la présence de force de friction ne modifie pas le nombre d'équations liées aux contraintes géométriques, en revanche elle modifie le décompte des équations d'équilibres. L'établissement du système à $6N$ équations (3 pour l'équilibre des forces et 3 pour l'équilibre des moments) à $3N_c$ inconnues. La coordinance d'un empilement de grains frottants se situe donc dans la gamme $4 \leq Z \leq 6$. Dans le cas d'empilements polydisperses le nombre moyen des empilements évolue légèrement et se situe dans la gamme $3 \leq Z \leq 6$ [26].

Des déviations par rapport aux évolutions des modules élastiques attendues par la théorie des milieux effectifs ont toutefois été mis en lumière par des études numériques. L'équipe de Magnanimo & al [35] en s'intéressant à des assemblages avec les paramètres ϕ et P fixé ont notamment trouvé des comportements élastiques différents. Ils associent ces différences à des nombres de coordination Z différents, ce qui avait déjà été fait par l'équipe de Agnolin & al [27]. Ainsi, si la théorie des milieux effectifs prévoit une dépendance des modules élastiques en $Z^{2/3}$, eux font état d'une dépendance de K_{eff} et μ_{eff} avec Z non triviale. Ils concluent sur la nécessité de l'élaboration d'une théorie plus sophistiquée qui tiendrait compte de la relaxation des grains, due au désordre de la microstructure de l'assemblage, pour la compréhension de la réponse élastique des milieux granulaire.

2.2.2 Conditions extérieures de l'assemblage

En versant un ensemble de grains ou billes dans un récipient, l'empilement créé est désordonné. Ce milieu granulaire s'écarte des réseaux granulaires réguliers par une répartition de forces inhomogènes au sein de l'empilement. Le réseau de force ainsi constitué peut ensuite être amené à se réorganiser par des sollicitations extérieures. L'intensité de l'action des forces extérieures sur le milieu est quantifiée par le paramètre P appelé pression de confinement. Deux modes actions peuvent être distinguées pour faire évoluer le paramètre P . La première consiste à appuyer sur l'empilement. C'est le principe de compression uniaxiale obtenue en augmentant à l'aide d'un piston la contrainte verticale P contenue dans une matrice rigide. A faibles contraintes les grains subissent tout d'abord des réarrangements, puis lorsqu'elles sont augmentées ces derniers peuvent commencer à se déformer. Dans le cas des méthodes expérimentales consistant à étudier la propagation des ondes ultrasonores à travers un milieu granulaire confiné par compression uniaxiale, la pression de confinement s'étend sur une gamme allant de 100 kPa à 140 MPa [19, 21].

La seconde méthode permettant de faire varier le paramètre P consiste à imposer des vibrations au milieu. Les vibrations permettent aux particules de se réarranger les unes par rapport aux autres sous l'effet de la gravité et à l'empilement de tendre vers des configurations de plus en plus denses. Suivant l'amplitude des vibrations et du temps des sollicitations, le milieu va plus ou moins se densifier [15, 16]. Par ailleurs, si le cas hydrostatique des fluides classiques prévoit une évolution linéaire des contraintes aux parois en fonction de la profondeur, les mesures réalisées sur les milieux granulaires font état d'une saturation de la pression pariétale aux fortes profondeurs. Ce phénomène, connu sous le nom "d'effet Janssen" est dû à la friction entre les grains et la paroi qui supporte une grande partie des forces [31]. Pour cette méthode de sollicitation du milieu, les mesures réalisées sur les parois verticales de la base de la matrice rigide qui contient l'ensemble

granulaire font état d'une pression maximale de confinement de l'ordre de 1400 Pa (lorsque que le point de mesure est placé à une profondeur au delà du point de saturation de la pression).

Pour ces deux modes d'actions et quelque soit la valeur de la pression de confinement P , la théorie des milieux effectifs prévoient une évolution des vitesses de propagation des ondes longitudinales et transversales suivant une loi $P^{1/6}$ (eq. 2.19). Cependant, plusieurs études récentes, théoriques et numériques [19, 24, 35], qui se sont penchées sur la dépendance de l'élasticité d'un assemblage granulaire avec la pression P , rapportent une déviation par rapport à la loi de puissance de Hertz versus P . Si aux fortes contraintes, la loi de puissance en $1/6$ attendue est observée, aux faibles contraintes, la vitesse de propagation dépend plutôt du quart de la contrainte P . Ce comportement avait déjà été observé, en 1957, par Duffy et Mindlin dans des structures ordonnées de sphères identiques. Domenico [36] a lui dressé le même constat pour des systèmes constitués de grains irréguliers. Par ailleurs, Makse & al. [19] et Magnanimo & al. [35] ont testé la validité du modèle du champ moyen à l'aide de méthodes numériques et/ou expérimentales (mesure de $V_{P,S} \sim P^{1/6}$). Ils montrent que si le module de compression est correctement estimé, ce n'est pas le cas du module de cisaillement qui est fortement surestimé. Pour expliquer ces déviations, ils remettent en cause les hypothèses de la théorie des milieux effectifs qui supposent une répartition homogène des forces de contact et un mouvement affine des grains en fonction de la déformation macroscopique et proposent de prendre en compte les effets de relaxation.

2.3 Méthodes expérimentales de sondage ultrasonores

Que ce soit du point de vu fondamental ou appliqué, comme cela peut être le cas pour le domaine industriel, le suivi de l'évolution de la répartition des contraintes et de l'élasticité d'un empilement granulaire, lorsqu'il est soumis à un processus de compaction (par compression uniaxiale ou par des vibrations) a fait et continue de faire l'objet de nombreux travaux expérimentaux, numériques et théoriques. Si la mesure de la densité de l'assemblage, à travers la mesure de la fraction volumique ϕ , peut conduire à une estimation de sa stabilité et de son élasticité, elle ne permet pas d'aboutir à la connaissance précise de la répartition des forces au sein de cet assemblage. La mesure de la distribution statistique des forces est pourtant l'une des clés de la compréhension de l'élasticité des milieux granulaires.

L'une des caractéristiques particulières de ces milieux est la transmission inhomogène de la force appliquée, préférentiellement le long de quelques chaînes de billes appelées chaînes de forces. Les billes non impliquées dans ces chaînes de forces sont souvent appelées spectatrices du point de vue de l'élasticité du milieu. Il existe donc une distribution statistique de forces pour chaque contact composée à la fois de contacts fortement et faiblement chargés. Plusieurs méthodes ont été employées pour la visualisation de telles chaînes de forces, telles que la méthodes photoélastique ou bien la méthode du papier carbone [37, 38]. Ces méthodes sont néanmoins difficilement applicables dans un système granulaire 3D.

En partant de ce constat, le domaine de l'acoustique s'est intéressé aux milieux granulaires et de nombreux travaux ont montré que les ondes acoustiques constituent un bon outil pour sonder l'élasticité d'un milieu granulaire confiné [18, 20, 21]. En particulier, à travers l'utilisation de la théorie des milieux effectifs, les méthodes acoustiques présentent l'avantage d'être capables de sonder l'élasticité d'un milieu granulaire en trois dimensions.

Devant la richesse des configurations possibles des chaînes de forces lors des sollicitations extérieures et de fait de la variété des effets sur les propagations acoustiques, les travaux sur l'étude fondamentale de la propagation acoustique dans les milieux granulaires se sont penchés sur des protocoles permettant une réorganisation des assemblages les plus répétables possible. Deux prin-

cipales méthodes d'investigation des milieux granulaires peuvent être distinguées. La première consiste à exercer une compression uni-axiale de l'échantillon granulaire confiné dans une cellule rigide. Le sondage acoustique est alors réalisé par transmission et les propriétés élastiques du milieu se déduisent des paramètres acoustiques, eux mêmes extraits en fonction de la contrainte appliquée [19, 21, 24]. La seconde méthode utilise des sollicitations plus douces, telles que des vibrations verticales. L'évolution structurale du milieu a alors une origine purement géométrique, le gain en densité provenant d'une succession de réarrangements entre les grains [15, 20, 25]. Le contrôle de ces évolutions par sondage acoustique en transmission permet ainsi l'identification des caractéristiques géométriques globales du milieu et l'observation de mécanismes complexes des milieux granulaires (tels que l'effet mémoire ou des effets de relaxation) [39, 40]. Ces deux méthodes font successivement l'objet d'une description dans les sections suivantes.

2.3.1 Propagation acoustique sous contrainte uni-axiale

Cette première méthode consiste à envoyer un signal ultrasonore, souvent une impulsion brève, généré par un transducteur ultrasonore dans un milieu granulaire d'une épaisseur inférieure au diamètre de la cellule rigide qui le contient et soumis à une pression de confinement P . Le signal transmis à travers un échantillon est alors détecté par un transducteur placé au fond de la cellule. Selon le rapport de la longueur d'onde (λ) sur la taille des grains (d) il est possible d'identifier deux types de propagation (E et S) [21].

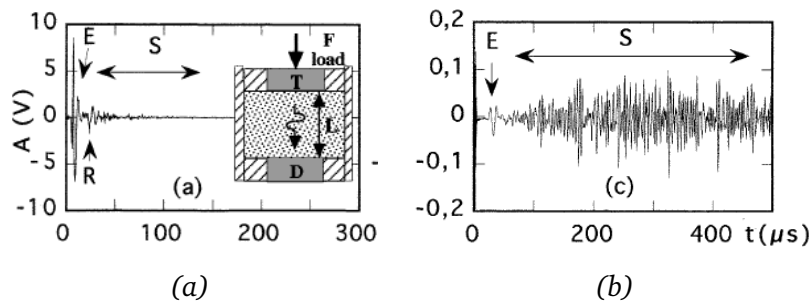


FIGURE 2.3: Signaux ultrasonores typiques, détectés à travers un échantillon de billes de verre confiné, d'une épaisseur de 18 mm et soumis à une pression de confinement $P \sim 0.75 \text{ MPa}$. **E** et **R** correspondent respectivement au signal de l'onde cohérente qui se propage balistiquement à travers le milieu granulaire et à son écho qui est réfléchi sur la surface de la base de la cellule. **S** est associé aux ondes multiplément diffusées. **T** et **D** sont respectivement l'émetteur et le récepteur ultrasonores. (a) Signal mesuré dans le cas où $\lambda \sim 10d$. (b) Signal mesuré pour $\lambda \sim d$ [21].

Lorsque la longueur d'onde est grande devant la taille des billes ($\lambda > 10d$), la propagation des ondes élastiques se fait essentiellement de manière cohérente et balistique. Cette onde basse fréquence n'est pas sensible à un petit changement de configuration. Si le protocole de préparation de l'échantillon est le même, le signal E est parfaitement reproductible d'une expérience à l'autre et le milieu est alors perçu comme un milieu effectif homogène continu. La détermination des vitesses du son permet d'accéder aux modules effectifs de compression et de cisaillement, caractérisant l'élasticité effective de ce matériau. En outre, à travers la mesure des vitesses de propagation en fonction de la contrainte appliquée et d'après l'expression 2.19 donnée par la théorie des milieux effectifs, il est possible d'estimer les paramètres z et ϕ caractéristiques de la géométrie de l'assemblage.

Lorsque la longueur d'onde est de l'ordre de la taille des billes ($\lambda \approx d$), les effets de diffusion sur l'onde causés par les fluctuations spatiales des réseaux de contacts deviennent importants. Il apparaît alors les ondes multiplément diffusées (speckles acoustiques/coda). Dans ce cas, la théorie

des milieux effectifs ne constitue plus une approche valable et ces ondes se propagent selon des trajectoires spécifiques à chaque configuration de l'empilement granulaire. Ces ondes diffusées sont très sensibles à l'exacte structure des chaînes de forces, contrairement aux ondes cohérentes qui elles, sont sensibles aux propriétés globales du milieu [41].

2.3.2 Propagation acoustique sous sollicitations douces

Cette seconde méthode consiste à observer expérimentalement l'évolution de signaux acoustiques transmis dans un échantillon granulaire non consolidé au cours du processus de compaction. Des travaux réalisés au Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine se sont intéressés aux effets de la compacité, des variations de sollicitations mécaniques extérieures ou même d'hygrométrie sur les paramètres acoustiques tels que les paramètres élastiques ou la dissipation [20, 39, 40].

Pour cette méthode de caractérisation ultrasonore du milieu granulaire, des fonctions de réponses en fréquences sont réalisées sur une tranche d'échantillon granulaire confiné dans une cellule parallélépipédique rigide et soumis à des vibrations verticales. Le dispositif expérimental consiste à faire vibrer l'assemblage granulaire au niveau de sa base par des sollicitations discrètes (taps). Le sondage ultrasonore est réalisé au moyen de deux transducteurs piezo-électriques placés en vis-à-vis et disposés sur les parois latérales de la cellule. Une fonction de réponse en fréquence typique obtenue sur une bande fréquentielle allant de 1kHz à 80kHz est présentée figure 2.4. Sur la réponse en fréquence, trois zones sont distinguées. La première zone (jusqu'à 20 kHz) présente en basse fréquence une forte amplitude de transmission avec des résonances, puis une chute brutale de l'amplitude. La seconde zone est caractérisée par une faible amplitude de transmission.

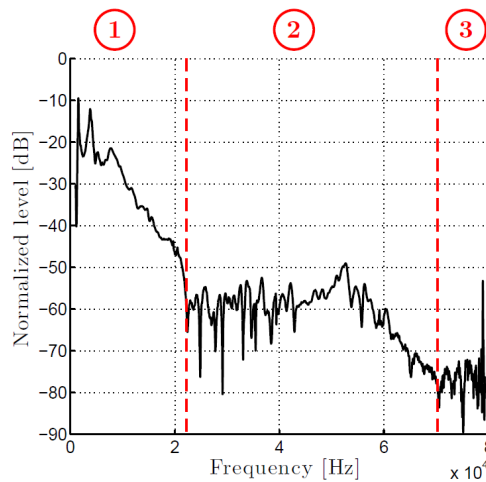


FIGURE 2.4: Réponse en fréquence observée pour une tranche d'échantillon granulaire composée de billes en verre monodisperses et mise en évidence des trois zones fréquentielles qui ont été distinguées [40].

Pour une meilleure interprétation de la fonction de réponse en fréquence expérimentale de la tranche de granulaire, celle-ci est comparée aux résultats théoriques obtenus par l'utilisation du modèle de Biot dans le cas des granulaires [20, 42]. Ce modèle utilise la théorie de Biot généralement appliquée à l'acoustique linéaire pour modéliser la propagation dans les milieux poreux. Alors que de nombreuses études portaient sur la propagation acoustique uniquement à travers le squelette solide ou bien uniquement à travers des milieux granulaires considérés comme "fluides

équivalents", celui-ci tient compte d'un couplage entre les ondes dans le squelette solide et les ondes dans le fluide saturant. Ce modèle est décrit brièvement ci-dessous.

Dans la configuration étudiée, c'est-à-dire avec des ondes longitudinales générées d'un côté de l'échantillon granulaire et détectées de l'autre, la géométrie est considérée comme étant uni-dimensionnelle. Ainsi, seulement deux modes de Biot sont présents et dans cette configuration essentiellement découplés, à savoir un mode de propagation suivant le squelette solide et un second dans le fluide saturant. Ces deux modes participent à la contrainte mesurée expérimentalement par le capteur situé sur l'un des côtés de l'échantillon granulaire. Théoriquement et numériquement, il est possible d'isoler ces deux contributions différentes de la contrainte totale détectée σ_t tel que

$$\sigma_t = \sigma_s - P_f, \quad (2.24)$$

avec σ_s la contrainte dans le squelette solide et P_f la pression acoustique dans le fluide saturant ou la contrainte dans le fluide $\sigma_s = -P_f$.

En régime harmonique les solutions du problème acoustique avec des ondes longitudinales de Biot dans une tranche uni-dimensionnelle sont de la forme

$$u^s = [A_1 \sin(k_1 x) + A_2 \sin(k_2 x) + B_1 \cos(k_1 x) + B_2 \cos(k_2 x)] e^{j\omega t}, \quad (2.25)$$

$$u^t = [\mu_1 A_1 \sin(k_1 x) + \mu_2 A_2 \sin(k_2 x) + \mu_1 B_1 \cos(k_1 x) + \mu_2 B_2 \cos(k_2 x)] e^{j\omega t}, \quad (2.26)$$

où u^s est le déplacement solide et u^t le déplacement total c'est-à-dire une combinaison du déplacement solide et fluide. x est la direction de propagation, t le temps et ω la pulsation. Les termes A_i , B_i , μ_i et k_i sont en général dépendants de la fréquence et peuvent être calculés en utilisant les paramètres géométriques, physiques et mécaniques du milieu tels que, la résistivité au passage de l'air, les longueurs caractéristiques thermiques ou visqueuses, la tortuosité, le module élastique longitudinal du squelette solide, les densités du fluide et du solide. L'ensemble de tous ces paramètres et leur expression sont donnés en [42]. Les conditions aux limites permettent la résolution du problème. Au niveau de la détection, la membrane du capteur est considérée comme rigide par rapport au matériau granulaire, ainsi $u^s = u^t = 0$. L'extrémité émettrice de la section de granulaire impose $u^s = u^t = u_0 \cos(\omega t)$, où u_0 est l'amplitude de déplacement de l'émetteur (dépend de la sensibilité du transducteur, elle même dépendante de la fréquence).

Les contraintes associées aux déplacements des équations (2.25) et (2.26) sont alors données par

$$\sigma_s = E \frac{\partial u^s}{\partial x}, \quad (2.27)$$

$$\sigma_f = -P_f = M \frac{\partial u^t}{\partial x}, \quad (2.28)$$

où E est le module élastique longitudinal du squelette solide et M la compressibilité équivalente de l'air.

En superposant la fonction de réponse en fréquence obtenue expérimentalement et les contraintes obtenues numériquement des équations (2.27) et (2.28), il est possible de décomposer la réponse en fréquence en trois bandes fréquentielles caractéristiques (figure 2.5). Aux basses fréquences, la contrainte dans la partie solide est dominante par rapport à celle de la partie fluide et contribue donc principalement à la contrainte totale mesurée. La fonction de réponse en fréquence dépend alors uniquement des propriétés du squelette solide. Dans la zone des moyennes fréquences, la pression du fluide devient la principale contribution à la contrainte totale. Le milieu dans ce cas,

peut être considéré comme un "fluide équivalent", avec les propriétés acoustiques indépendantes de l'élasticité du squelette solide. La troisième zone fréquentielle, située aux hautes fréquences, ne présente pas de similitudes avec les courbes théoriques. Cette divergence est attribuée aux effets de diffusion dans le fluide équivalent.

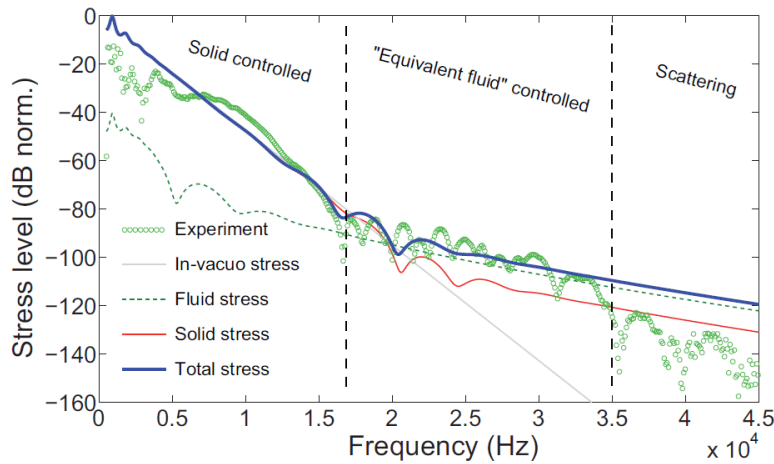


FIGURE 2.5: Fonction de réponse en fréquence acoustique d'une tranche de matériau granulaire d'épaisseur 8 cm et composée de billes de verre de diamètre 0.7 mm. Un processus de compaction de 5000 taps a été appliqué. La fonction de réponse en fréquence expérimentale a été corrigée par la sensibilité de l'émetteur et récepteur. Toutes des courbes sont normalisées avec le maximum de la contrainte totale obtenue théoriquement [20].

Lorsque l'assemblage est soumis à une réorganisation sous l'effet des vibrations, et donc que la fraction volumique augmente, un décalage fréquentiel de la zone intermédiaire entre la propagation dans le squelette solide et la propagation en fluide équivalent est observé. Cette observation a conduit à la conclusion selon laquelle le processus de compaction influence principalement l'élasticité du squelette solide, au travers de l'augmentation de compacité et de l'augmentation possible de la contrainte statique entre les billes et les parois du récipient. Par ailleurs, des mesures acoustiques pour des états intermédiaires de compacités ont également montré un décalage fréquentiel vers les hautes fréquences de la première fréquence de résonance de la tranche de matériau granulaire. A partir des résonances des ondes longitudinales et en faisant l'hypothèse de conditions aux limites rigides, la vitesse de propagation des ondes longitudinales peut être déduite de la fréquence de résonance du premier pic. Ce décalage a donc pour effet une augmentation de la vitesse des ondes longitudinales au cours de la compaction, et par conséquent également une augmentation du module élastique longitudinal. Aussi, et de même que pour la méthode de caractérisation acoustique des milieux granulaires présentée précédemment, le suivi de l'évolution de la vitesse de propagation des ondes à travers un assemblage granulaire peut donner des indications quant aux caractéristiques géométriques de l'assemblage d'après l'expression (2.19) de la théorie des milieux effectifs.

2.4 Conclusion

Les ondes ultrasonores constituent une sonde non-invasive pour caractériser la structure et les propriétés viscoélastiques du réseau de contact d'un matériau granulaire sec et confiné dans une

cellule rigide. Le modèle basé sur la théorie microscopique de Hertz-Mindlin et décrivant le comportement macroscopique du réseau de contacts constituant un milieu granulaire a été présenté. De ce modèle, il découle la théorie des milieux effectifs, une approche de type milieu effectif qui permet le passage micro/macro via le nombre de coordinance Z , la fraction volumique ϕ et grâce à plusieurs hypothèses dont le mouvement affine entre grains voisins. L'expression de la vitesse de propagation des ondes longitudinales peut alors être déduite (eq. 2.19) et décomposée en trois parties distinctes. La première partie dépend uniquement des paramètres du matériau formant les grains, la seconde regroupe les paramètres géométriques de l'assemblage granulaire avec les termes Z et ϕ , qui sont eux même fortement influencés par les caractéristiques morphologiques des grains, et enfin la dernière partie caractérise les conditions extérieures de l'assemblage avec la dépendance de la pression de confinement en $P^{1/6}$. Aussi, d'après ce modèle, la mesure de la vitesse de propagation des ondes cohérentes (basse fréquence) qui perçoivent l'assemblage granulaire comme un milieu effectif homogène continu, permet une estimation des caractéristiques géométriques des grains à condition de maîtriser l'état de l'assemblage. En outre, la réorganisation du milieu granulaire sous l'effet de sollicitations extérieures dépend également de la morphologie des grains puisque la capacité des grains à se mouvoir et occuper progressivement les espaces libres dépend principalement de leur taille et de leur forme. Le suivi de la réorganisation de l'ensemble granulaire par sondage acoustique est donc également susceptible de donner des indications quant aux caractéristiques géométriques de l'assemblage granulaire.

Deux principales méthodes de caractérisation du milieu granulaire par la mesure des ondes cohérentes et qui permettent le contrôle et la répétabilité de l'état de l'assemblage peuvent être distinguées dans la littérature. La première consiste à exercer une compression uni-axiale de l'échantillon granulaire confiné dans une cellule rigide. Le sondage acoustique est alors réalisé par transmission et les paramètres acoustiques sont extraits en fonction de la contrainte appliquée. La seconde méthode consiste à entraîner le milieu à se réorganiser et se densifier progressivement sous l'effet de sollicitations plus douces telles que des vibrations verticales. L'évolution structurale du milieu a alors une origine purement géométrique puisque le milieu est uniquement soumis à la force de gravité. La mesure des paramètres acoustiques suivant cette méthode expérimentale est donc également susceptible d'apporter des indications sur les caractéristiques géométriques de l'assemblage.

Ces deux méthodes serviront de point de départ pour l'élaboration d'une méthode de caractérisation des poudres métalliques extraites à différentes étapes de la mécano-synthèse. Les méthodes expérimentales préliminaires ainsi que leurs résultats sont présentés dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

MESURES PRÉLIMINAIRES POUR LA CARACTÉRISATION ULTRASONORE

Durant le processus de mécano-synthèse, des évolutions à plusieurs échelles de la poudre ont lieu et sont susceptibles de donner des indications sur l'état d'avancement du procédé. Parmi ces évolutions, il peut être cité les caractéristiques morphologiques des grains (taille moyenne des grains, distribution de la taille des grains, forme des grains), les propriétés chimiques, physiques et mécaniques des grains individuels et les propriétés mécaniques de l'assemblage de grains lui même (chapitre 1).

Ces caractéristiques, propres aux milieux granulaires, ont été récemment étudiées par des méthodes de caractérisation ultrasonore qui sont connues pour être directement sensibles aux propriétés élastiques de l'assemblage, notamment par la mesure de la vitesse de propagation de l'onde cohérente [20, 21]. D'après la théorie des milieux effectifs qui considère un milieu composé de grains monodisperses et sphériques, la vitesse de propagation des ondes cohérentes et par conséquent les paramètres élastiques du milieu, peuvent s'exprimer en fonction des paramètres du matériau formant les grains, des caractéristiques géométriques de l'assemblage qui dépendent des caractéristiques morphologiques du milieu et de son état de pression de confinement. Par ailleurs, la réorganisation du milieu granulaire et donc de la répartition des chaînes de forces sous l'effet de sollicitations extérieures dépendent en grande partie de la morphologie des grains.

Aussi, la mesure des paramètres acoustiques lorsque les ondes cohérentes se propagent à travers le milieu granulaire est susceptible de donner des indications sur les caractéristiques géométriques de l'assemblage, à condition de maîtriser l'état de confinement et la répétabilité de sa réorganisation. Deux principales méthodes de caractérisation ultrasonores qui ont été élaborées pour l'étude fondamentale des milieux granulaires peuvent être distinguées dans la littérature (chapitre 2). Ces deux méthodes se différencient par la manière d'exercer des sollicitations extérieures pour contrôler l'état de l'assemblage et assurer sa répétabilité. Ces dernières ont été reproduites dans le cadre de ces travaux de thèse afin d'élaborer une méthode de caractérisation des échantillons de poudres métalliques extraites à différentes étapes de mécano-synthèse (chapitre 1 figures 4.2 et 1.11).

L'objectif de ce chapitre est de présenter les expérimentations préliminaires qui ont été réalisées pour la caractérisation des échantillons de poudre d'aciers ODS extraits à différentes étapes de broyage. La première expérimentation mise en oeuvre a consisté en un sondage ultrasonore d'échantillons de poudres confinés dans une cellule cylindrique rigide et soumis à une contrainte uni-axiale. La seconde expérimentation a consisté en un sondage ultrasonore de l'échantillon lorsqu'il est amené à se densifier progressivement et ce, sous l'effet de vibrations verticales localisées au niveau de la base de l'échantillon. Les évolutions des paramètres acoustiques obtenues ainsi que les discussions qui en résulte servent de base de réflexion pour l'élaboration d'une méthode de

caractérisation ultrasonore des poudres métalliques, potentiellement adaptable pour une mesure in-situ au cours du procédé de broyage. Par ailleurs, les échantillons de poudres métalliques ODS n'ayant pas été à disposition au même moment, ces mesures exploratoires réalisées en début de thèse n'ont porté que sur un nombre restreint d'échantillons.

3.1 Caractérisation ultrasonore sous contrainte uni-axiale

Cette première méthode de caractérisation ultrasonore consiste à observer l'évolution des signaux acoustiques transmis dans une couche fine d'échantillon de poudre métallique, lorsqu'elle est confinée dans une cellule cylindrique rigide et soumise à une contrainte uni-axiale (section 2.3.1). Le signal ultrasonore, constitué d'une impulsion brève, est généré par un transducteur ultrasonore en contact direct avec le milieu. Le signal transmis est alors détecté par un transducteur placé au fond de la cellule. En fonction du rapport de la longueur d'onde à la taille des grains, la transmission acoustique se décompose en deux parties ; une partie diffusée ($\lambda \sim d$) ou une partie cohérente ($\lambda \gg 10d$) [21]. La partie haute fréquence est diffusée par les nombreuses hétérogénéités du milieu ce qui la rend extrêmement sensible aux fluctuations spatiales du réseau de chaînes de forces et donc spécifique à chaque configuration de l'assemblage. La partie basse fréquence en revanche se propage balistiquement et perçoit le milieu comme un milieu effectif homogène continu. La théorie des milieux effectifs constitue alors une approche valable pour la description de la propagation de cette onde. L'objectif de ces expérimentations est d'observer l'évolution des paramètres acoustiques (vitesse de propagation) de l'onde cohérente lorsqu'elle se propage à travers un échantillon de poudre métallique et en fonction de la contrainte appliquée, de manière à en déduire une description qualitative des caractéristiques géométriques des grains de poudres en s'appuyant sur la théorie des milieux effectifs.

3.1.1 Protocole expérimental

Le montage expérimental est semblable à celui réalisé par Jia & al. [21], et consiste à confiner la poudre dans une cellule cylindrique de diamètre 20 cm et de hauteur variable. Les échantillons confinés sont soumis à une contrainte appliquée uniaxiale maintenue constante grâce à une presse manuelle. Cette dernière permet d'exercer une contrainte pouvant aller jusqu'à 20kPa. Les bases de la cellule ont été adaptées de manière à ce que les transducteurs ultrasonores (Olympus) large bande de cisaillement ($f_0 = 1MHz$) soient en contact avec la poudre. L'un des capteurs est utilisé en émission **E** en générant des impulsions brèves, par l'emploi d'un générateur de pulse Sofranel (model 5058PR), l'autre en réception **R**. Le signal est ensuite pré-amplifié avant d'être visualisé sur un oscilloscope (LeCroy weverunner LT262ML). L'acquisition du signal digitalisé, s'effectue grâce à un programme d'interfaçage fourni par ScopeExplorer. Avant d'être enregistré, le signal est moyenné sur plusieurs signaux, afin d'améliorer le rapport signal sur bruit. La mesure de la contrainte appliquée s'effectue au moyen d'un capteur de force HBM (de type C9C) (figure 3.1). Enfin, pour améliorer la reproductibilité des expériences, une précontrainte est appliquée de manière systématique sur chaque échantillon afin de minimiser les effets hystérétiques mécaniques ou acoustiques.

La vitesse de propagation des ondes cohérentes est mesurée en employant la méthode dite du *temps de vol*, du fait de sa facilité de mise en oeuvre. Le temps de vol (t_{tof}) correspond à l'arrivée première du signal au niveau du récepteur ultrasonore (figure 3.2). En pratique, t_{tof} est difficile à mesurer avec précision car il dépend de la qualité des signaux enregistrés. Si l'objectif est de mesurer la célérité réelle de l'onde cohérente, un seuil d'amplitude peut être défini à partir duquel

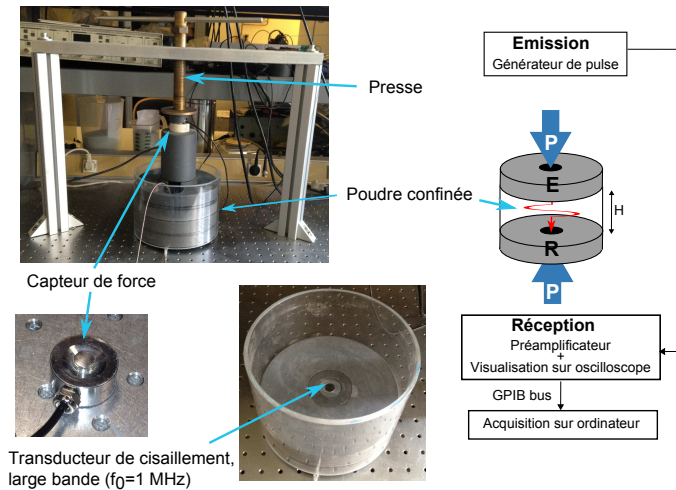


FIGURE 3.1: Schéma et photos du dispositif expérimental de la méthode de caractérisation ultrasonore par contrainte uni-axiale.

l'amplitude du signal transmis est considérée comme non nulle. Ce seuil est gardé constant tout au long d'une même expérience, ce qui peut poser problème en présence de variations importantes de la dynamique du signal d'une acquisition à l'autre. Si la valeur des vitesses de propagation absolues ne sont pas recherchées, mais que l'on cherche à caractériser la loi d'échelle de la vitesse de propagation en fonction de la pression de confinement, c'est la variation de la vitesse qui fera l'objet de l'attention. Le temps de vol pourra alors correspondre à l'intersection du signal avec le zéro de référence ou être associé au premier maximum de l'amplitude du signal temporel ultrasonore (figure 3.2). Cette méthode permet d'obtenir une meilleure précision que lorsqu'il est recherché le vrai temps de vol. Cette précision n'est valable toutefois que pour les distances de propagation relativement faibles dans le cas des milieux granulaires. Ces milieux étant dispersifs, prélever le temps de vol dans le cas d'une longue distance reviendrait à intégrer d'autres effets que celui recherché (influence de l'atténuation et de la dispersion).

Ainsi, connaissant la distance entre l'émetteur et le récepteur ultrason (H), la vitesse de propagation d'une onde de compression ou de cisaillement s'obtient par l'expression

$$V_{P,S}(P) = \frac{H}{t_{P,S}^{tof}} \quad (3.1)$$

En pratique, le rapport de la vitesse longitudinale sur la vitesse transversale est de l'ordre de ~ 2 .

Par ailleurs, suivant l'épaisseur de l'échantillon, la taille des grains et la contrainte appliquée, il est possible de visualiser simultanément l'onde de compression et l'onde de cisaillement lors de l'utilisation du transducteur de cisaillement (figure 3.2). Ceci s'explique par la présence du phénomène de dilatance ; en tout point l'onde de cisaillement se convertit en onde longitudinale [17].

3.1.2 Evolution de la vitesse de propagation des ondes longitudinales pour différents échantillons de poudre

L'évolution de la vitesse de propagation des ondes longitudinales en fonction de la pression de confinement est présentée figure 3.3. Les mesures sont réalisées sur deux échantillons de poudres extraits à deux étapes de la mécano-synthèse (avant le broyage et pour 176h de broyage). Les valeurs des vitesses calculées pour chaque contraintes appliquées correspondent à une moyenne de mesures réalisées sur trois échantillons.

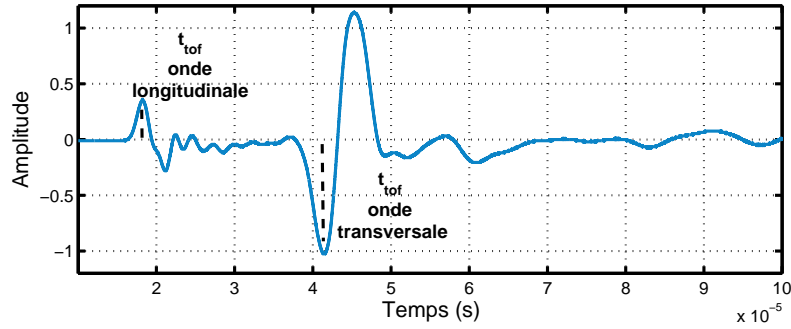


FIGURE 3.2: Signal ultrasonore typique obtenu par utilisation de transducteurs de cisaillement, et estimation des temps de vol des premiers pics.

D'après cette figure, les évolutions des vitesses en fonction de la contrainte appliquée correspondent à une loi de puissance de la forme P^α , ce qui est cohérent avec les prédictions de la théorie des milieux effectifs. Toutefois, alors que la littérature prédit une dépendance en $P^{1/4}$ pour les faibles pressions ($P \sim 30kPa - 100MPa$) [21] et la théorie des milieux effectifs en $P^{1/6}$ (eq. 2.19), les dépendances mesurées pour ces échantillons sont plus faibles. Cette déviation pourrait être expliquée par la gamme de pression de confinement pour laquelle ces mesures ont été réalisées. Les pressions exercées s'étendent de $400Pa$ à $20kPa$ alors que les résultats expérimentaux présentés dans la littérature sont obtenus pour des pressions de confinement qui débutent à $30kPa$. Par ailleurs, la dimension des barres d'erreurs obtenues pour les mesures réalisées au delà de $10kPa$ peuvent également être une source d'erreur pour l'évaluation de α . L'absence de protocole de préparation spécifique des échantillons lors de leur introduction dans la cellule peut être une des sources d'erreurs. En effet, dans le cas d'un empilement désordonné la réorganisation des chaînes de forces sous l'effet de la contrainte appliquée peut différer d'un échantillon à l'autre, et ce pour un même type de poudre si l'assemblage n'a pas été introduit dans la cellule de manière répétable. Cette différence de réorganisation peut se répercuter par une différence dans l'évaluation des paramètres acoustiques pour une même pression exercée. Enfin, l'hypothèse non vérifiée de la théorie des milieux effectifs qui suppose le milieu granulaire comme étant composé de grains sphériques et monodisperses doit également avoir une grande influence sur l'écart des dépendances mesurées.

En dépit de ces éventuelles sources d'erreur, les valeurs des coefficients α permettent de différencier les deux échantillons de poudres. Le coefficient obtenu de l'évolution de la vitesse de propagation mesurée sur l'échantillon de poudre initial est plus important ($\alpha = 0.12$) que celui de l'échantillon de poudre broyée 176h ($\alpha = 0.09$). Ceci peut traduire la présence d'un état de frustration de l'assemblage granulaire plus important pour l'échantillon de poudre broyé du fait de la non-sphéricité des grains de poudre [17]. La dépendance à la contrainte s'en trouve alors limitée pour cet échantillon. En outre, la théorie des milieux effectifs prévoit une dépendance de la vitesse de propagation des ondes longitudinales avec les paramètres géométriques de l'assemblage et la contrainte appliquée de la forme $V_p \sim \phi^{-1/6} Z^{1/3} P^\alpha$. Aussi, les différences de dynamiques dans l'évolution des vitesses entre la contrainte appliquée minimum ($P = 400 Pa$) et maximum ($P = 20 kPa$) d'un échantillon à l'autre (variation d'environ $100 m/s$ pour l'échantillon initial contre $50 m/s$ pour l'échantillon broyé 176h) sont également susceptibles d'être liées à une évolution différente des paramètres géométriques lors de la réorganisation de l'assemblage granulaire. La valeur de la compacité ϕ peut être plus importante si l'assemblage granulaire est fortement polydisperse et composé de grains sphériques. En revanche, dans le cas d'un milieu composé de grain non sphériques la réorganisation du milieu va s'en trouver modifiée du fait de la frustration des modes de rotation, ce qui conduit à une valeur de la compacité plus faible. Les variations du nombre de coordination

Z sont également plus importantes pour un milieu polydisperse et composé de grains sphériques.

En conclusion, les évolutions des vitesses de propagation des ondes longitudinales en fonction de la contrainte appliquée qui ont été mesurées permettent de différencier les deux échantillons de poudre métalliques extraits à des étapes différentes de la mécano-synthèse. Une étude paramétrique de l'expression de la vitesse de propagation donnée par la théorie des milieux effectifs a permis de relier qualitativement les variations des vitesses mesurées avec les caractéristiques morphologiques des deux échantillons de poudres. Toutefois, la répétabilité sur la stabilité de l'assemblage lorsqu'il est soumis à une contrainte est limitée par l'absence de mise en place d'un protocole de préparation rigoureux des échantillons lors de leur introduction dans la cellule cylindrique. La précision des mesures notamment pour l'estimation du coefficient α s'en trouve diminuée. De plus, le montage expérimental ne permet pas la mesure de la compacité de manière précise. Or, outre les informations qualitatives que serait susceptible de donner ce paramètre sur les caractéristiques morphologiques des échantillons, le suivi de la compacité ϕ pourrait permettre de contrôler la répétabilité de la réorganisation de l'assemblage. Devant les limitations du banc expérimental, l'élaboration d'une méthode de caractérisation des échantillons de poudres métalliques par contrainte uniaxiale n'a pas fait l'objet d'investigations supplémentaires.

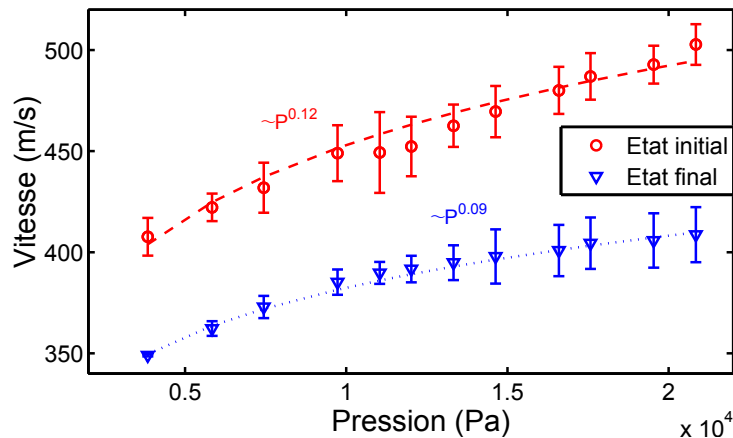


FIGURE 3.3: Vitesse de propagation des ondes cohérentes longitudinales (V_p) en fonction de la contrainte appliquée P .

3.2 Caractérisation ultrasonore sous sollicitations douces

Cette seconde méthode de caractérisation consiste à exercer des sollicitations discrètes (taps) sur un échantillon de poudre confiné dans une cellule rigide et à sonder acoustiquement le milieu après chaque sollicitation. Sous l'effet des vibrations, le milieu est amené à se réorganiser et se densifier progressivement. L'évolution structurale du milieu est fortement liée à la géométrie des grains puisque le milieu est uniquement soumis à la force de gravité. La mesure des paramètres acoustiques suivant cette méthode expérimentale est donc également susceptible d'apporter des indications quant aux caractéristiques géométriques de l'assemblage et aux répartitions des chaînes de force. Le dispositif expérimental qui est mis en oeuvre et adapté aux besoins de cette étude, a été développé par J.B Legland lors de ses travaux de thèse qui portaient sur la caractérisation des milieux granulaires non cohésifs et désordonnés par l'acoustique non linéaire [40]. Ce dispositif a été développé de manière à assurer une bonne répétabilité, dans la mesure du possible, de l'assemblage granulaire lors de son introduction dans la cellule et lors de sa densification, pour per-

mettre l'étude de mécanismes spécifiques aux milieux granulaires (effet de mémoire, phénomènes de relaxations).

Les mesures préliminaires présentées dans cette section pour la recherche d'un indicateur acoustique permettant d'estimer les caractéristiques morphologiques des grains de poudres et donc de suivre le procédé de mécano-synthèse a porté sur trois échantillons de poudre (poudre initiale, poudre broyée 88h et poudre broyée 176h).

3.2.1 Protocole expérimental

Le dispositif expérimental consiste à faire vibrer par des sollicitations discrètes (ou taps) une cuve rectangulaire dans laquelle sont introduits les échantillons de poudre métallique (figure 4.4 (a)) et à sonder acoustiquement le milieu après chaque sollicitation. Les dimensions de la cuve, constituée de polycarbonate transparent, sont de 8 x 2 cm pour une hauteur de 12 cm. La rigidité des parois est assurée par leur épaisseur (1 cm) empêchant ainsi leur déformation lors du versement de l'échantillon. La base du récipient est constituée d'une pièce mobile pouvant bouger verticalement pour qu'un pot vibrant sur laquelle elle est fixée puisse solliciter mécaniquement l'échantillon granulaire par des vibrations discrètes. De chaque coté des parois latérales sont disposés deux transducteurs piezo-électriques (en vis à vis et espacés de 2 cm) fonctionnant en transmission. En prenant en compte leur réponse fréquentielle, le dispositif peut sonder un échantillon sur une gamme de fréquence comprise entre 1 kHz et 100 kHz. Le signal électrique transmis au pot vibrant est un signal constitué d'une période de sinusoïde de fréquence $f_{tap} = 60Hz$ et d'amplitude A_{tap} variable (typiquement dans les expériences entre 50 et 110 mV). La partie supérieure de la cuve est ouverte afin d'y positionner un capteur de déplacement. Ce dernier permet de mesurer la hauteur occupée par l'échantillon et d'estimer la variation de hauteur de l'échantillon durant sa densification. En se réfléchissant sur la pièce placée sur la surface de l'empilement, le capteur optique mesure la variation de la hauteur $h(n)$ à partir de la distance initiale d_0 et la hauteur initiale h_0 telle que

$$h(n) = h_0 - (d(n) - d_0), \quad (3.2)$$

avec $d(n)$ la distance par rapport à la pièce réfléchissante qui varie. La compacité moyenne ϕ est alors évaluée à partir de la masse volumique effective ρ_{eff} de l'échantillon, elle même extraite grâce à la masse m de l'échantillon, la hauteur de l'empilement $h(n)$, la masse volumique ρ_{mat} de l'échantillon et les dimensions en largeur des parois du récipient l et L . Ainsi,

$$\phi(n) = \frac{\rho(n)_{eff}}{\rho_{mat}} = \frac{m/(l.L.h(n))}{\rho_{mat}}. \quad (3.3)$$

Le signal acoustique émis par le transducteur piezo-électrique (Panametrics V3052) puis amplifié par un amplificateur de puissance (B& K Type 2713) est un signal de type "sinus glissant" issu de la source d'un analyseur de spectre (Stanford SR785) et pouvant s'étendre sur gamme fréquentielle comprise entre 1 et 100 kHz. Après avoir transité à travers le matériau granulaire, il est reçu par un capteur de pression dynamique (PCB 106B52) utilisé comme un microphone au contact et enregistré par l'analyseur de spectre en mode de détection synchronisée. Ce capteur présente l'avantage d'avoir une réponse en fréquence constante sur la gamme d'utilisation de l'émetteur.

Pour s'assurer de la répétabilité des mesures et donc de faire en sorte que les conditions initiales soient identiques dans la mesure du possible pour des empilements désordonnés, un protocole de préparation des échantillons a été défini. Plusieurs méthodes de remplissage d'échantillons de matériaux granulaires existent. Une première méthode consiste à remplir d'un bloc la cuve, c'est-à-dire en introduisant l'échantillon brusquement. La cuve peut aussi être remplie par pluviation, c'est-à-dire en saupoudrant les billes dans la cuve. Elle peut également être remplie à l'aide d'un

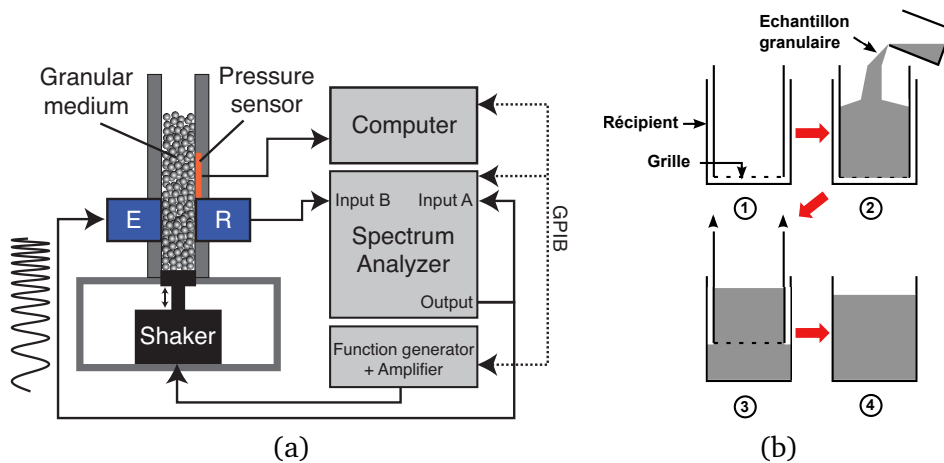


FIGURE 3.4: (a) Montage expérimental. "E" and "R" désignent respectivement l'émetteur et le récepteur piezo-électriques. Les sollicitations par des vibrations verticales (taps) appliquées par le pot vibrant et les sondages acoustiques sont contrôlés informatiquement par le biais de connectiques GPIB. (b) Protocole de préparation mis en oeuvre pour l'obtention d'une compacité initiale reproductible pour chaque échantillon de poudre.

entonnoir. Enfin, une dernière méthode qui permet de garantir une compacité initiale la plus lâche possible consiste en l'utilisation d'une grille amovible (figure 4.4 (b)). C'est ce dernier protocole qui a été choisi dans le cadre de cette expérimentation. La grille, composée de mailles bien plus grandes que la taille des grains de poudre, est dans un premier temps placée au niveau de la base de la cuve. L'échantillon est ensuite introduit dans la cuve. Cette dernière doit être remplie de manière à ce que les transducteurs se situent à une profondeur suffisamment importante pour que la pression statique soit saturée et qu'il n'y ait pas de gradient vertical de pression entre eux [31]. Enfin, une fois la cuve remplie, la grille est ôtée verticalement. Un tel protocole de préparation permet de s'assurer de la répétabilité de la compacité initiale pour un échantillon donné de l'ordre de 1% d'après les mesures. Par ailleurs, pour s'assurer du contrôle de l'humidité et de la température ambiante et donc limiter leur influence sur les paramètres acoustiques [43, 44, 45], les mesures sont réalisées dans une chambre climatique. Celle-ci permet de fixer une humidité et une température constantes avec des précisions qui sont respectivement de l'ordre de 1% et 0.5 °C.

3.2.2 Évolution des compacités pour trois échantillons de poudres métalliques

La compaction douce par vibrations d'un empilement granulaire crée des réarrangements successifs de grains qui tendent à minimiser l'espace des pores, d'où une augmentation de la compacité. Ce paramètre est une caractéristique géométrique de l'empilement accessible de manière macroscopique. Pour cette raison, la compacité est un paramètre parmi les plus étudiés pour décrire la manière dont un empilement désordonné passe d'une configuration initiale à un état d'équilibre. La manière dont l'empilement se réarrange sous les vibrations dépend d'un nombre important de paramètres physiques du milieu, comme la forme et la distribution de la taille des grains, les frottements entre les grains (friction) et les frottements entre les grains et les parois latérales du récipient.

C'est pourquoi, pour cette expérience, l'évolution de la compacité mesurée pour des échantillons de poudres obtenues à des étapes différentes de la mécano-synthèse a tout d'abord été observée. La figure 3.5 (a) présente l'évolution de la compacité du milieu, constitué d'un échantillon de poudre non broyée (poudre initiale), broyée 88h et 176h, en fonction du nombre de sollicitations (taps).

L'évolution du milieu vers un état final étant très lente avec une dynamique logarithmique, le choix s'est porté sur l'utilisation d'une échelle logarithmique en abscisse pour la représentation de l'évolution des compacités. Les courbes de compaction présentées sont une moyenne sur 3 réalisations, chaque expérience de compaction durant environ huit heures en incluant les mesures acoustiques. D'un échantillon à l'autre, les valeurs des compacités mesurées en début et en fin de compaction sont différentes. L'échantillon de poudre non broyée présente des compacités proches du RCP ("Random close packing" où $\phi \approx 0.64$) avec une compacité finale qui atteint une valeur supérieure avec $\phi = 0.67$. Alors que les échantillons broyés 88h et 176h présentent des compacités inférieures à celle du RLP ("Random loose packing" où $\phi \approx 0.56$) avec des valeurs de compacité qui ne vont pas au delà de 0.50. Par ailleurs, pour se rendre compte de la dynamique de compaction de chaque échantillon, la compacité relative (ϕ_i/ϕ_{10^5} avec i le nombre de taps) est représentée figure 3.5 (b). D'après cette figure, un état stationnaire semble être atteint au bout de 10^5 taps pour l'échantillon de poudre non broyée alors que cet état n'est toujours pas atteint pour les échantillons broyés. Cette observation traduit donc une dynamique de compaction plus rapide pour l'échantillon de poudre initial.

Ces observations peuvent être corrélées avec les caractéristiques morphologiques des échantillons de poudres (figure 4.2, 1.10 (b) et 1.11). L'échantillon de poudre non broyée est fortement polydisperse et principalement composé de grains sphériques, ce qui favorise l'obtention d'une valeur de compacité proche du RCP et facilite les mouvements de rotation des particules nécessaires au rangement de l'assemblage conduisant ainsi à une dynamique de compaction plus rapide. En outre, les travaux qui se sont intéressés à l'influence de la convection sur la compaction ont montré expérimentalement qu'elle était plus importante pour des assemblages de grains polydispersés [46]. La convection dans un empilement granulaire sous sollicitations correspond aux déplacements collectifs des grains sur la hauteur de l'empilement, notamment sous la forme de rouleaux, du fait du déséquilibre de frottement entre les grains et les parois et les grains entre eux. Lorsque cet effet a lieu dans un empilement sous sollicitations, l'état stationnaire est atteint plus rapidement. La présence d'un tel effet, favorisé par la polydispersité, peut également expliquer l'obtention d'un état quasi stationnaire pour la compaction de l'échantillon de poudre non broyé. En revanche, les échantillons broyés sont composés de grains de formes très irrégulières du fait de la succession de mécanismes de soudage et de fracture durant le broyage. Ces irrégularités de formes ralentissent la dynamique de compaction en frustrant les réarrangements et en augmentant les frottements au niveau des parois. La diminution de la polydispersité (figure 1.11) de ces poudres broyées par rapport à l'échantillon initial est également susceptible d'avoir un effet ajouté en plus des irrégularités de forme sur les valeurs de compacité obtenues.

Pour quantifier les effets des caractéristiques morphologiques des échantillons de poudres sur la compaction, les courbes mesurées sont comparées à des courbes obtenue par l'ajustement de lois couramment utilisées pour la description de la dynamique de compaction. Deux lois d'ajustements sont comparées aux courbes expérimentales de compaction. Ces deux lois se sont avérées être les plus adaptées pour la description des résultats expérimentaux obtenus dans des travaux menés successivement par des équipes différentes. La loi qui est proposée lors des travaux menés par une équipe à Chicago dans le James Franck Institut en 1990 [33], est une loi empirique, inversement proportionnelle au logarithme du nombre de secousses de la forme

$$\phi(t) = \phi_{\text{inf}} - \frac{\Delta\phi_{\text{inf}}}{1 + \beta \ln \left(1 + \frac{t}{\tau} \right)}, \quad (3.4)$$

avec la valeur finale de compacité ϕ_{inf} et l'accroissement total de compacité $\Delta\phi_{\text{inf}}$ accessibles expérimentalement. De l'ajustement sont extraits un temps caractéristique τ de dynamique de compaction et un paramètre β sans interprétation physique.

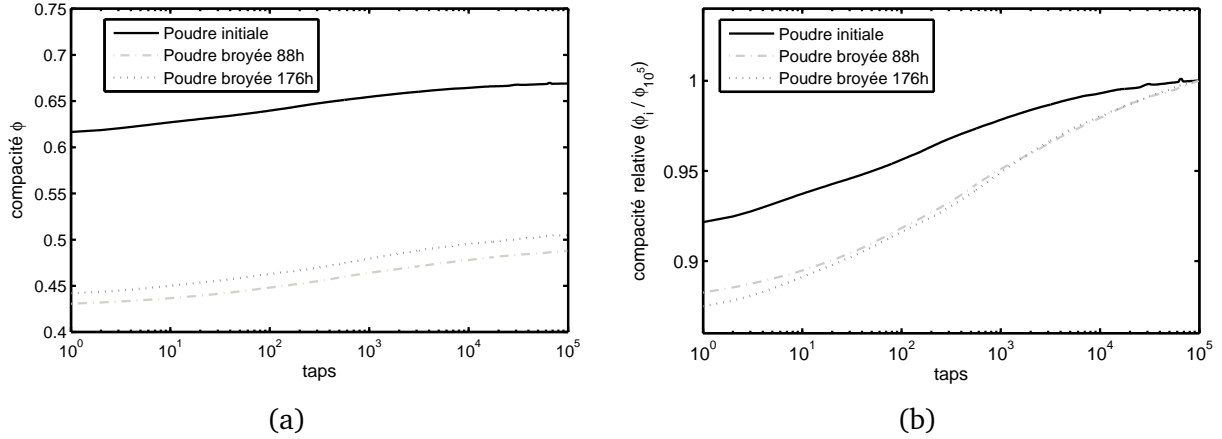


FIGURE 3.5: (a) Courbes de compaction obtenues pour une séquence de $n = 10^5$ taps avec trois échantillons de poudre extraits en début de broyage, après 88h de broyage et après 176h de broyage. (b) Evolution des compacités relatives (ϕ_i / ϕ_{10^5} avec i le nombre de taps) en fonction du nombre de sollicitations.

Des expériences plus récentes sur la compaction réalisées par une équipe de Rennes en 2000 [15] puis par Claude INSERRA au LAUM en 2007 [39], proposent d'utiliser la loi de Kohlrausch-Williams-Watts (KWW), caractéristique du comportement des verres fragiles proches de la température de transition vitreuse et décrite par une exponentielle étendue de la forme,

$$\phi(t) = \phi_{\text{inf}} - \Delta\phi_{\text{inf}} e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^\beta}, \quad (3.5)$$

où τ est un temps caractéristique de relaxation du système hors équilibre et β un paramètre ajustable qui caractérise l'étalement de la transition du processus de compaction vers l'état final.

Ces deux lois sont comparées aux courbes de compaction et présentées figure 3.6.

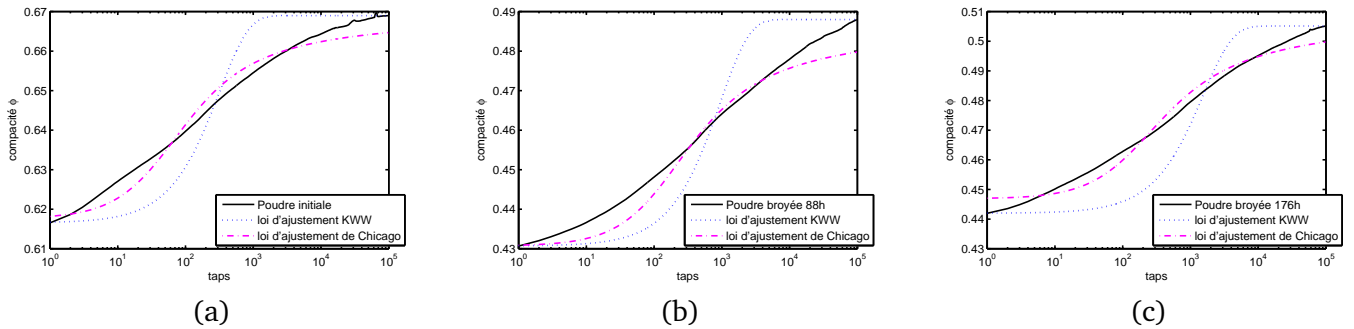


FIGURE 3.6: Comparaison des courbes de compacités obtenues avec deux lois d'ajustements proposées dans la littérature, à savoir la loi de Kohlrausch-Williams-Watts (KWW) et la loi empirique proposée par l'équipe de Chicago (désignée ici par loi d'ajustement de Chicago), avec (a) l'évolution de la compacité mesurée sur l'échantillon de poudre initiale, (b) l'échantillon de poudre broyée 88h et (c) l'échantillon broyé 176h.

D'après ces figures, les lois proposées dans la littérature ne semblent pas conduire à des ajustements satisfaisants. La modélisation obtenue par la loi d'ajustement de Chicago semble néanmoins s'approcher plus des courbes expérimentales ce qui traduit une lenteur dans la dynamique de compaction des échantillons de poudres. Plusieurs raisons peuvent expliquer ce phénomène très lent

(plus de 10^4 taps pour s'approcher d'un état stationnaire). Tout d'abord, la pièce mobile réfléchissante posée sur la surface de l'empilement pour la mesure de la compacité limite les mises en tas (forme conique de la surface de l'assemblage granulaire) induites par le phénomène de convection, mais diminue par conséquent son effet bénéfique sur la dynamique de convection. La forme parallélépipédique de la cuve et sa faible épaisseur (2 cm) peut également influencer sa dynamique de compaction avec une tendance au ralentissement comparé à l'emploi d'un récipient cylindrique, comme ça a été le cas lors des expériences des équipes de Chicago et de Rennes. Pour ces raisons, l'utilisation des paramètres extraits des lois d'ajustement ne paraît pas pertinente, ce qui limite la quantification de l'influence des caractéristiques géométriques sur la dynamique de compaction.

Toutefois, la recherche d'un indicateur discriminant dans les courbes expérimentales de compaction pour la caractérisation des trois échantillons de poudres a conduit à s'intéresser aux valeurs des compacités initiales (ϕ_0), moyennées sur les 10 premiers taps (figure 3.7). L'évolution qui est obtenue présente un comportement non monotone. Une comparaison avec l'évolution de la distribution de la taille des grains qui composent chaque échantillon de poudres (figure 1.11) et de la forme des grains (figure 4.2), permet d'associer le comportement non monotone de la compacité initiale avec celui de la distribution de la taille des grains. Pour chaque expérimentation, les échantillons sont préparés en suivant le même protocole de préparation (figure 4.4 (b)) qui assure l'obtention d'assemblages les plus lâches possibles. L'organisation des particules dépend alors uniquement de la force gravitationnelle qui agit sur les grains lorsque la grille est retirée et des caractéristiques géométriques du milieu qui permettent ou non aux grains d'occuper les espaces libres et donc d'avoir un ensemble plus ou moins dense. Ainsi, l'échantillon initial est composé de grains polydispersés et sphériques (figures 4.2 et 1.11) ce qui favorise l'obtention d'une compacité proche du RCP. Après 88h de broyage, la polydispersité des grains a diminué et leur non sphéricité s'en trouve augmentée sous l'effet des chocs successifs. De telles caractéristiques morphologiques entravent la capacité des grains à occuper les espaces libres et produisent un assemblage lâche avec une compacité très faible. Enfin, sous l'effet des mécanismes de fractures les grains présentent une polydispersité qui a légèrement augmentée et une diminution de la non-sphéricité ce qui conduit à une légère augmentation de la compacité initiale.

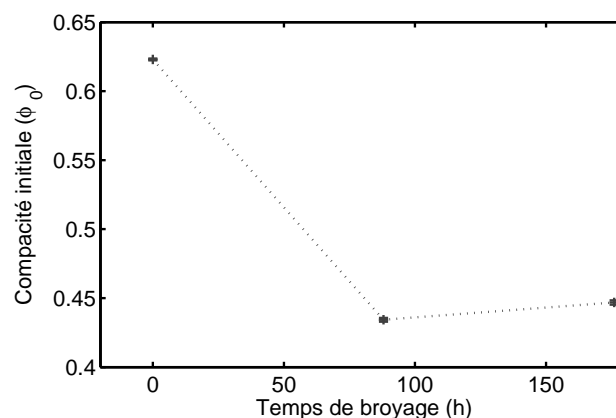


FIGURE 3.7: Compacités initiales (ϕ_0) obtenues après la mise en oeuvre du protocole de préparation et présentées en fonction du temps de broyage.

Ce comportement non monotone de la compacité initiale peut donc être associé à l'évolution des caractéristiques morphologiques des grains de poudre et ainsi constituer un indicateur qua-

litatif pour la caractérisation des échantillons broyés à différentes étapes de la mécano-synthèse. Toutefois, la différence de compacité mesurée pour l'échantillon de poudre broyée 88h ($\phi_0 = 0.43$) et celui dont la durée de broyage est de 176h ($\phi_0 = 0.44$) est relativement faible et peut être masquée en cas de dispositif expérimental imprécis pour la mesure de la compacité.

Lors de ses travaux, Claude INSERRA [39] a observé une dépendance linéaire de la vitesse de propagation des ondes longitudinales avec la compacité du milieu. Il en conclut que le problème inverse de la détermination de la compacité du milieu granulaire par une mesure acoustique est réalisable. Par ailleurs, les mesures acoustiques ont montré une plus grande sensibilité à l'évolution structurale du milieu.

C'est pourquoi ces travaux se sont ensuite focalisés sur l'évolution des paramètres acoustiques linéaires pour la caractérisation des différents échantillons de poudres métalliques.

3.2.3 Mesure de la vitesse de propagation des ondes longitudinales

Sur la figure 3.8 sont présentées deux fonctions de réponses en fréquence typiques mesurées sur un échantillon de poudre initiale tout d'abord fraîchement préparé, donc le moins dense possible (en suivant le protocole de préparation décrit figure 4.4), puis obtenu après 10^5 taps. Les deux régions qui ont été identifiées lors de la comparaison des sondages réalisés dans un milieu monodisperse composé de billes en verre avec les résultats théoriques donnés par l'utilisation du modèle de Biot peuvent être de nouveau visualisées sur cette figure [20]. Aux basses fréquences, la propagation acoustique dans la partie solide est dominante et contribue principalement à la contrainte totale mesurée par le transducteur. La fonction de réponse en fréquence dépend alors uniquement des propriétés du squelette solide de l'assemblage granulaire qui compose les échantillons de poudres métalliques. Des résonances acoustiques de la cavité peuvent également être observées dans cette région. Aux plus hautes fréquences, la propagation dans la partie fluide du milieu devient dominante. Le milieu peut dans ce cas être considéré comme "un fluide équivalent", où les propriétés acoustiques sont indépendantes de l'élasticité du squelette solide (les ondes se propagent principalement à travers le fluide saturant).

En comparaison des travaux précédents [20] où les échantillons étudiés sont composés de billes en verres monodisperses avec des diamètres de l'ordre de 0.7 mm à 2 mm, les poudres considérées pour cette étude sont composées de grains beaucoup plus petits. Par conséquent, la résistivité du flux d'air pour ces assemblages est plus importante, ce qui conduit à une atténuation plus importante des ondes se propageant dans l'air et donc une plus faible contribution sur le signal reçu. Il est montré dans les travaux de [20] que l'atténuation par effet de diffusion de l'onde se propageant dans la partie solide du milieu apparaît pour des fréquences plus hautes si la taille des grains qui composent le milieu est diminuée. La fréquence de transition entre les deux régions, aussi appelée fréquence de coupure f_c , est également décalée vers les fréquences plus hautes. C'est pourquoi les fréquences de coupures f_c observées sur les réponses en fréquences sont plus hautes pour les échantillons de poudres métalliques ($\sim f_c = 50$ kHz sur la figure 3.8 et l'état le plus lâche) que pour les milieux granulaires composés de grains de tailles millimétriques ($\sim f_c = 15$ kHz) [20]. Par ailleurs lorsque le milieu est soumis au processus de compaction, un décalage de la fréquence f_c ainsi que des pics de résonances vers les plus hautes fréquences peut être observé. La réorganisation des chaînes de forces de l'assemblage sous l'effet de la densification du milieu est donc mis en évidence par ces paramètres acoustiques qui dépendent uniquement des propriétés élastiques du squelette solide.

A partir des résonances des ondes longitudinales et en faisant l'hypothèse de conditions aux frontières rigides pour l'échantillon de poudre, la vitesse de propagation des ondes longitudinales

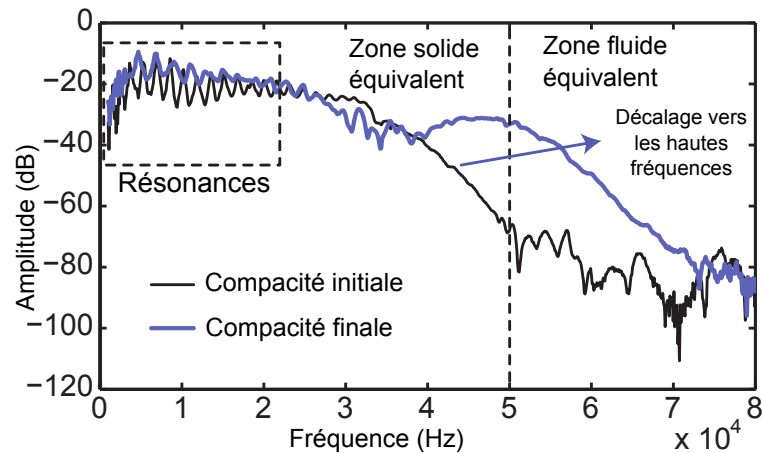


FIGURE 3.8: Fonction de réponse en fréquence d'un milieu granulaire confiné dans une cellule parallélépipédique de 2 cm d'épaisseur (échantillon de poudre métallique après 0h de broyage) obtenu après le protocole de préparation et après 10^5 taps. La fonction de réponse en fréquence obtenue expérimentalement est corrigée par les sensibilités de l'émetteur et du récepteur, mesurées indépendamment.

V_p peut être déduite de l'expression $f_n = nV_p/2L$, où f_n est la fréquence de résonance du mode n et L l'épaisseur de la cuve. Les fréquences de résonances sont mesurées expérimentalement en prenant le point où l'amplitude de la première résonance visible est maximum. Pour chaque réponse en fréquence mesurée, la fréquence f_n est déduite de la première résonance qui peut être détectée de manière à s'affranchir au mieux des effets de dispersion du milieu.

L'évolution de la vitesse de propagation des ondes longitudinales en fonction du nombre de sollicitations (taps) a été mesurée pour les trois échantillons de poudre extraits à différentes étapes de broyage (figure 3.9). De même que pour les mesures de compacités, chaque point correspond à une moyenne sur trois mesures de vitesses, c'est-à-dire pour trois réalisations d'expérience sur un même type de poudre et à amplitude de sollicitation fixée.

Pour ces trois courbes, les dynamiques d'évolution de V_p sont similaires à celles de la compacité (évoluent selon un processus logarithmique avec le nombre de secousses), ce qui confirme les observations de Claude INSERRA sur la forte sensibilité des paramètres acoustiques linéaires avec la compacité. Les vitesses mesurées sont proches de 50 m/s et présentent un accroissement après 10^5 taps d'environ 40 m/s pour l'échantillon de poudre initial et d'environ 30 m/s pour les échantillons broyés. De plus, les vitesses obtenues des sondages de l'échantillon initial se différencient de celles obtenues à partir des échantillons de poudres broyées avec une différence qui se maintient à environ 10 m/s. Les évolutions des vitesses de propagation mesurées sur les échantillons de poudres broyées permettent néanmoins difficilement de différencier ces échantillons, du fait de la forme de ces évolutions mais également des barres d'erreurs qui se superposent au delà de 10^3 taps.

L'expression de la vitesse de propagation de l'onde cohérente longitudinale donnée par la théorie des milieux effectifs fait de nouveau l'objet d'une étude paramétrique pour l'interprétation des évolutions des vitesses mesurées. Cette expression prévoit une dépendance de la vitesse avec les paramètres géométriques de l'assemblage Z et ϕ et avec la pression de confinement telle que $V_p \sim \phi^{-1/6} Z^{1/3} P^{1/6}$. La forte sensibilité des paramètres géométriques avec les caractéristiques morphologiques de l'assemblage pourraient expliquer les différences de vitesses entre les échantillons. Toutefois, la pression de confinement qui évolue en cours de compaction n'est pas accessible expérimentalement. Par ailleurs, l'augmentation soudaine des vitesses mesurées à partir des échantillons broyés 88h après 500 taps laisse supposer une réorientation complexe des chaînes de

force et de manière générale des contacts, du fait de la non sphéricité des grains. La qualification des caractéristiques morphologiques des grains, par la mesure de l'évolution des vitesses en cours de compaction, est donc difficilement réalisable du fait de l'absence de mesure de P et de la méconnaissance de Z susceptible d'être influencé par la modification des chaînes de forces.

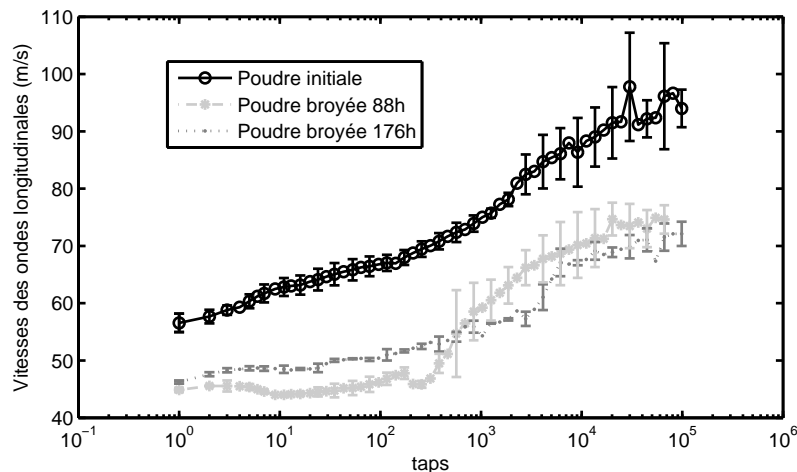


FIGURE 3.9: Evolution de la vitesse de propagation des ondes longitudinales en fonction du nombre de secousses (taps) pour trois échantillons de poudres métalliques obtenues en début de broyage, après 88h de broyage et 176h de broyage.

En revanche, les valeurs initiales des vitesses V_{p0} obtenues juste après le protocole de préparation peuvent constituer un indicateur possible pour la différenciation des échantillons du fait de la non monotonie de l'évolution de la vitesse en fonction du temps de broyage. De même que pour la compacité, cette non monotonie des paramètres acoustiques peut être associée à la non monotonie de la distribution de la taille des grains (figure 1.11). Cette dépendance peut s'expliquer en se reportant une nouvelle fois sur la théorie des milieux effectifs. Pour une configuration d'échantillon fraîchement préparé, l'empilement est le plus lâche possible ce qui implique une pression statique P initiale très faible et relativement constante pour les différents échantillons de poudres. La vitesse initiale est donc essentiellement influencée par les caractéristiques morphologiques du milieu (polydispersité et sphéricité des grains), qui évoluent d'un échantillon à l'autre, à travers sa dépendance avec les paramètres géométriques de l'assemblage ϕ et Z . Cette dépendance de la vitesse de propagation et donc des propriétés élastiques du milieu avec les paramètres géométriques de l'assemblage, en particulier avec le nombre de coordination Z , fera l'objet d'une discussion plus approfondie dans le chapitre suivant.

Ainsi, outre la présence d'un comportement non monotone de la vitesse V_{p0} en fonction du temps de broyage qui constitue en lui-même un indicateur possible pour le suivi de la mécano-synthèse, la mesure des vitesses de propagation sur des échantillons granulaires de faible densité permet une caractérisation de la morphologie des grains (polydispersité et sphéricité).

3.3 Conclusion du chapitre

Ce chapitre a présenté deux méthodes de caractérisation ultrasonore qui ont été mise en oeuvre pour la recherche d'indicateurs susceptibles de différencier des échantillons de poudres métalliques extraits à différentes étapes de mécano-synthèse.

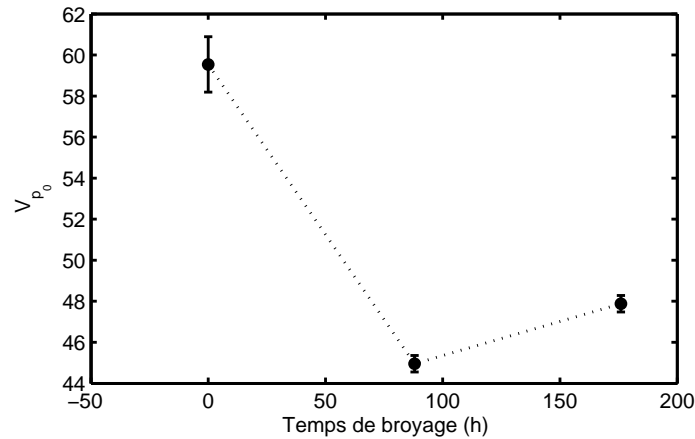


FIGURE 3.10: Vitesses de propagation des ondes longitudinales mesurées sur les échantillons obtenus après la mise en oeuvre du protocole de préparation et présentées en fonction du temps de broyage.

Une première méthode de caractérisation ultrasonore consiste à observer l'évolution des signaux acoustiques transmis dans une couche fine d'échantillon de poudre métallique, lorsqu'elle est confinée dans une cellule cylindrique rigide et soumise à une contrainte uni-axiale. La mesure des vitesses de propagation des ondes longitudinales pour deux échantillons de poudre, obtenus avant et après 176h de broyage, a permis leur différenciation avec une dépendance différente en fonction de la pression appliquée. Une étude paramétrique de l'expression de la vitesse de propagation donnée par la théorie des milieux effectifs a permis de relier qualitativement les variations des vitesses mesurées avec les caractéristiques morphologiques des deux échantillons de poudres. Toutefois, le banc expérimental et le protocole de préparation mis en oeuvre ont présenté des limitations dans la précision des mesures acoustiques. C'est pourquoi le développement de cette méthode de caractérisation n'a pas fait l'objet d'investigations supplémentaires.

La seconde méthode de caractérisation mise en oeuvre a consisté à faire vibrer par des taps périodiques un échantillon de poudre confiné dans une cellule rigide et à sonder acoustiquement le milieu après chaque sollicitation. Cette méthode a conduit à la mise en place d'un protocole de préparation des échantillons en début de mesures qui assure une configuration la plus lâche possible de l'assemblage. Si l'utilisation de sollicitations plus douces sur l'ensemble granulaire permet une réorganisation des chaînes de forces d'origine purement géométrique et donc dépendante des caractéristiques morphologiques du milieu, les évolutions des vitesses de propagation des ondes longitudinales obtenues pour des échantillons de poudres broyées 88h et 176h ne permettent pas leur différenciation. Cette difficulté dans leur différenciation est susceptible de provenir de la complexité dans la réorganisation d'un milieu composé de grains non sphériques. De plus, lors de ces mesures la pression statique du milieu qui évolue en cours de compaction n'est pas mesurée. Aussi, en s'appuyant sur la théorie des milieux effectifs, l'évolution des vitesses dépend des caractéristiques morphologiques du milieu mais également de l'évolution de la pression de confinement qui n'est pas connue.

Pour s'affranchir des effets de la pression de confinement sur les paramètres acoustiques, l'attention s'est portée sur les valeurs de vitesses mesurées après le protocole de préparation (désignées par V_{p_0}) et donc pour des assemblages granulaires de densité la plus faible possible. La présence d'un comportement non monotone en fonction du temps de broyage démontre que la vitesse V_{p_0} est un indicateur possible pour le suivi de la mécano-synthèse. Une comparaison avec l'évolution de la polydispersité des échantillons de poudre en fonction du temps de broyage a permis de corréler cette caractéristique avec l'évolution non monotone de la vitesse V_{p_0} . Cette dépendance avec les ca-

caractéristiques morphologiques du milieu peut être retrouvée dans l'expression de la vitesse donnée par la théorie des milieux effectifs. Ainsi, d'après cette expression et pour des milieux de faibles densités, les paramètres acoustiques sont principalement influencés par le nombre de coordination Z et la compacité ϕ , eux même fortement dépendants des caractéristiques morphologiques du milieu (polydispersité et non sphéricité).

L'utilisation de cette méthode de caractérisation des poudres métalliques en se focalisant uniquement sur les mesures réalisées sur des assemblages de faible densité ainsi que les discussions qui ont suivi pour leur interprétation, font l'objet du chapitre suivant.

Chapitre 4

MÉTHODE DE CARACTÉRISATION ULTRASONORE DE POUDRES MÉTALLIQUES

Avant propos

L'étude bibliographique du procédé de mécano-synthèse a montré que l'évolution de la microstructure des grains engendrée par la succession de mécanismes de déformation, soudage et fracture s'accompagnait d'une évolution des caractéristiques morphologiques des grains (taille, dispersion de la taille et forme). Aussi, en assimilant les poudres métalliques à des milieux granulaires le travail bibliographique pour l'élaboration d'une méthode de caractérisation ultrasonore s'est orienté vers des méthodes de sondages ultrasonore des milieux granulaires désordonnés et non cohésifs susceptibles d'être sensibles aux changements morphologiques des grains de poudres qui ont lieu tout au long du processus de broyage. Les mesures préliminaires présentées dans le chapitre précédent et les observations qui en ont résulté ont conduit à la méthode de caractérisation ultrasonore des poudres métalliques extraites à différentes étapes de broyage présentée dans ce chapitre. Cette méthode permet de caractériser les aspects morphologiques des grains de poudres à travers la dépendance des paramètres acoustiques avec la polydispersité et la forme des grains pour des milieux obtenus pour un même protocole de préparation et une même pression de confinement (très faible). Une étude paramétrique de l'influence des caractéristiques morphologiques des poudres sur l'expression des paramètres élastiques du milieu donnés par la théorie des milieux effectifs suggère que le nombre de coordination (Z) est principalement influencé par la polydispersité. Cette hypothèse est ensuite confirmée par une seconde étude expérimentale portant sur l'évolution du module élastique de compression en fonction de la polydispersité pour des milieux composés de billes en verre sphériques.

Ce chapitre rédigé en anglais, est un article soumis dans le journal Ultrasonics. De ce fait, ce chapitre est auto-suffisant, c'est pourquoi il apparaîtra des redondances notamment dans la présentation du banc expérimental ou de la théorie des milieux effectifs.

ULTRASONIC EVALUATION OF THE MORPHOLOGICAL CHARACTERISTICS OF METALLIC POWDERS IN THE CONTEXT OF MECHANICAL ALLOYING

L. BARGUET, C. PEZERAT, M. BENTAHAR, R. EL GUERJOUA, V. TOURNAT

4.1 Abstract

An ultrasonic method is proposed to characterize the morphological (geometrical) aspects of powders through the elastic modulus dependence of their packing on the factors of polydispersity, coordination number and particle shape. During the mechanical alloying process, the variation in geometrical characteristics of powders provides critical information. Ultrasonic parameters are shown to be sensitive not only to the average contact number per bead (i.e. the coordination number) but also to characteristics of the bead size distribution, when given the same sample preparation and confining pressure. These parameters, in turn, are sensitive to both the granular medium polydispersity and particle shapes. A non-monotonic behavior of the ultrasonic velocity (and of the derived compressional wave modulus) is observed throughout the alloying process, which thus offers possibilities for powder structure monitoring.

4.2 Introduction

In modern industrial applications involving metals, many research studies have been conducted in order to replace conventional materials by new structural materials exhibiting specific mechanical properties. Based on the use of a metal powder, sintering and mechanical alloying are among the fastest developing processes [1, 2, 4]. Process quality and reproducibility are highly dependent on the characteristics of the selected metal powder, which is composed of metal grains ranging in size from a few micrometers to several hundred micrometers. Consequently, to improve both quality and process, it is essential to characterize in great detail the metal powder properties affecting the alloying process. The most potentially important characteristics include : morphology (average grain size, grain size distribution, grain shape, etc.) ; the chemical, physical and mechanical properties of individual grains ; and the mechanical properties of the grain packing itself. These latter properties have recently been studied using ultrasonic methods [18, 20, 21, 47], which are known to be directly sensitive to the elastic properties of the packing configuration, through for example evaluating the ultrasonic wave velocity.

In the mechanical alloying process (described in the following section 4.3), morphological characteristics represent a key piece of information on the process step [4]. In this context, it is thus desirable to implement a non-invasive method that does not require interrupting or completely halting the process (i.e. in situ probing) while at the same time provides a relatively fast and robust characterization. To facilitate implementation of ultrasonic characterization methods for this purpose, the present article will report on a study of ultrasonic wave sensitivity to the morphological characteristics of metal powders extracted at various stages of a mechanical alloying process that obviously features different properties. A laboratory-scale method of non-destructive testing will be proposed, along with a specific preparation protocol for the powder sample that is compatible with an in situ implementation. The results obtained and their interpretations demonstrate good sensitivity to the considered mechanical alloying process step. More specifically, they reveal a non-monotonic milling-time dependence for the elastic parameters associated with powder packing,

which provides an initial step to quantitative characterization. This study also provides experimental results for different granular samples, and these findings may prove helpful in developing more advanced and effective medium theories regarding granular media elasticity.

4.3 Mechanical alloying and ball-milling process

Oxide Dispersion-Strengthened (ODS) steels have received increased interest within the nuclear energy community. It should be noted that temperatures and neutron doses in the cores of Generation IV and fusion nuclear reactors will be higher than those in Generation II and III reactors. To identify engineering solutions under such severe conditions, reliable new structural materials are needed. ODS steels are among the most promising materials in this field, thanks to a ferritic or martensitic (F/M) matrix containing dispersed nano-oxides, which exhibit low swelling under irradiation and improved creep properties at high temperature [1, 2].

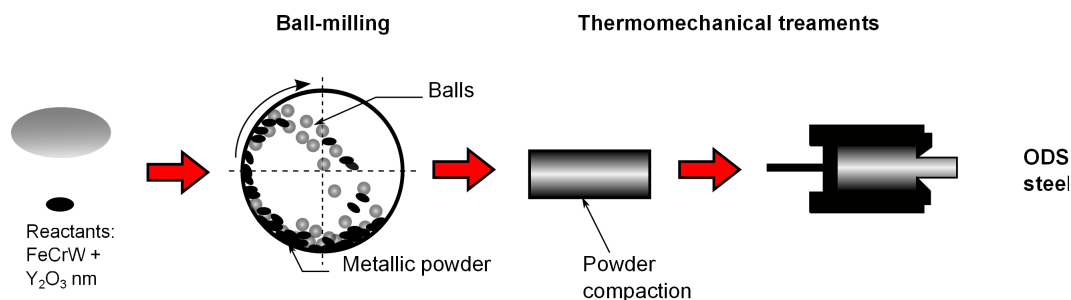


FIGURE 4.1: Conventional process of ODS steel mechanical alloying by ball milling.

The standard process for creating an ODS material consists of several stages (see Fig. 4.1)[1, 2]. First of all, Y₂O₃ and pre-alloyed powder are ground using a ball mill. Next, thermomechanical treatments are performed, according to Fig. 4.1. Ball milling allows Y₂O₃ to dissolve into the metal matrix and thereafter nano-oxides are formed during thermomechanical treatments. This first stage is carried out by means of a mechanical alloying process (MA). MA is a solid-state powder processing technique involving repeated welding, fracturing and re-welding of powder particles in a high-energy ball mill [4]. This technique is feasible thanks to several types of mills, including ball milling, which makes use of a cylindrical tank whose rotation around its main axis generates the milling process, as performed by steel beads existing within the powder. The grinding stems from various combinations of collisions between beads and powders on the tank walls. The powder characteristics, such as grain size or shape, evolve over the course of this process [4]. Powder particles are plastically deformed under the force of the impact, which leads to work hardening and fracture. Due to the new surfaces created, these particles are welded together, thus increasing their size (see Fig. 4.3 after 44 hours of milling). Moreover, the particle shapes become flattened or highly non-spherical (Fig. 4.2(b)). At this stage, the composite particles are characterized by a layered structure consisting of various combinations of the initial constituents. After a certain time period, during which the particles are subjected to successive impacts, the tendency to fracture takes precedence over cold welding, thus resulting in smaller particle sizes and less flattened shapes (Fig. 4.3 after 88 hours of milling). Steady-state equilibrium is reached once a balance has been achieved between the welding rate, which tends to increase the average particle size, and the fracturing rate, which tends to decrease the average composite particle size. The average particle size therefore decreases slowly and ultimately stabilizes (Fig. 4.3). Furthermore, the particle size distribution displays a non-monotonic evolution during grinding. At the end of the mechanical alloying process, the average particle size decreases while the particle size distribution narrows

due to the fact that particles larger than the average are diminishing in size at the same rate as fragments smaller than the average are expanding by agglomerating smaller particles (Fig. 4.3).

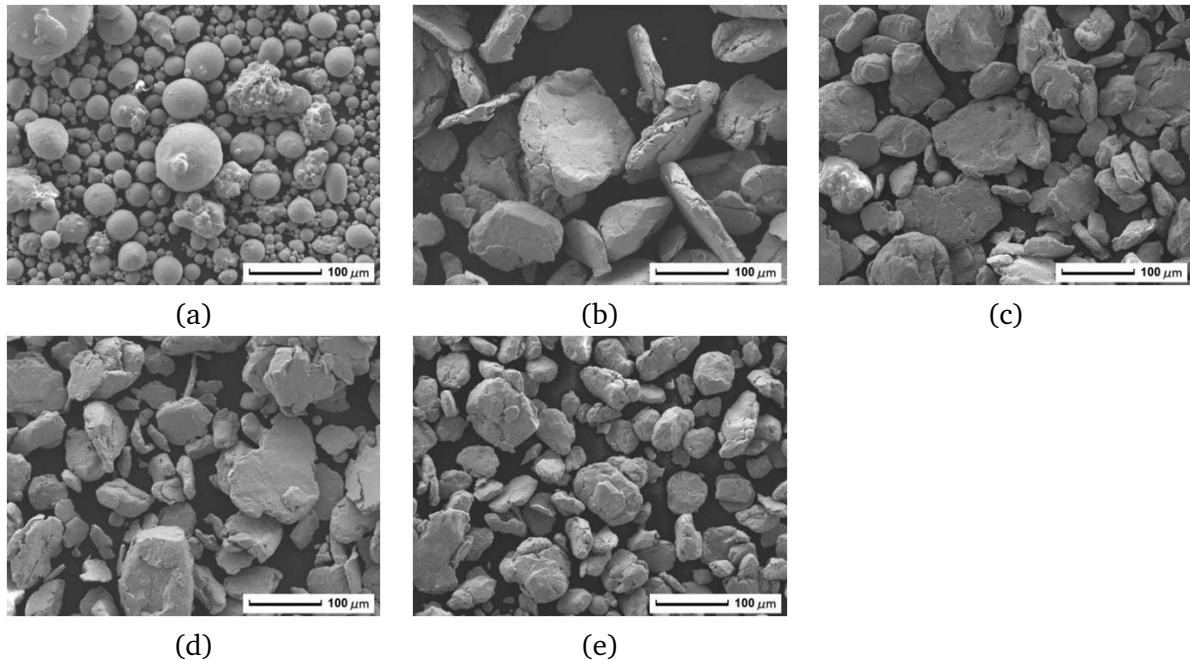


FIGURE 4.2: Pictures obtained with Scanning Electron Microscopy (SEM) at different mechanical alloying stages, (a) at the beginning of grinding, (b) after 44 hours of milling, (c) after 88 hours of milling, (d) after 176 hours of milling and (e) after 352 hours of milling.

Many process parameters may be varied during the milling stage (e.g. rotation speed, temperature, powder/ball ratio); their effects on the final metal powder remain unknown. To determine how these parameters influence powder characteristics, analyses with conventional metallurgical processes - scanning electron microscopy (SEM), electron probe micro-analysis (EPMA), small angle neutron scattering (SANS) and atom probe tomography (APT) - are typically conducted on a final powder sample at the end of grinding. This approach is preferred because opening the tank during this process contaminates powders that should not be placed in contact with air. Too few experimental methods however are able to provide an in situ MA process characterization without extracting the metal powder sample from the ball-milling tank; consequently, it is important to develop non-invasive approaches to quantifying grinding quality during processing.

Morphological analyses of powder samples during mechanical alloying suggest variations in the geometrical aspects of powder grains (grain size, grain shape and grain size distribution). In the following section, an ultrasonic method will be proposed to characterize the morphological (geometrical) characteristics of powders through the elastic modulus dependence of powder packing on the parameters of polydispersity, coordination number and particle shape.

4.4 Experiments

4.4.1 Experimental setup

The experimental set-up consists of a rectangular-based box 120 mm high, with a side dimension of 80×20 mm, containing the powder sample (Fig. 4.4a). The initial packing configuration is obtained by quickly pouring the beads into the container. As a prior step, a grid (5 x 5-mm square

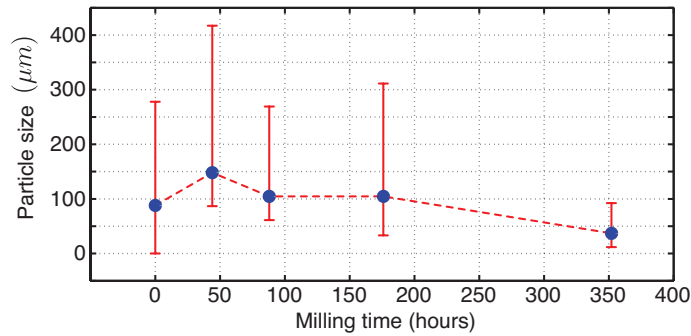


FIGURE 4.3: Particle size as a function of time along the ball-milling process : average particle size and width of the particle size distribution (error bars) evolutions.

holes formed with 0.5-mm diameter metal wires) is placed at the bottom of this box. Afterwards, the grid is slowly moved through the medium and to the top of the container (step 3 of Fig. 4.4b). This protocol yields an initial compacity value for a given powder sample that has been measured as reproducible to within a 1% relative change. To slowly densify the granular column, a shaker delivering discrete vertical pulses or "taps" is positioned below the container. Each pulse corresponds to a sine period with a 60-Hz frequency. The static pressure due to the gravity effect on the powder sample at the acoustic probe location is controlled by a pressure sensor (i.e. a force sensing resistor sensor). Piezoelectric transducers embedded in the vertical walls of the container serve as a resonator for the low-frequency acoustic waves emitted in the granular medium. A powder slab can then be acoustically probed with a piezo-emitter and piezo-receiver in the horizontal direction. Moreover, to ensure limited influence of the humidity variation on acoustic wave propagation [43, 44, 45], measurements are performed in a climatic chamber capable of maintaining both the humidity rate and temperature constant to within 1% and 0.5 °C, respectively. The medium is excited with a swept-sine signal $s(t)$ starting at a frequency $f_1 = 500 \text{ Hz}$ and extending to $f_2 = 45 \text{ kHz}$. The detected medium response is synchronously recorded after pre-amplification and then analyzed using a spectrum analyzer (model SR785) in synchronous detection mode.

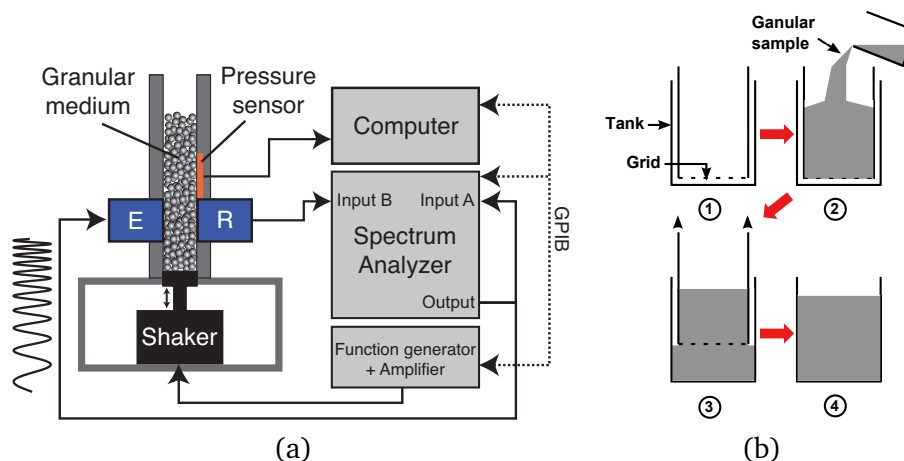


FIGURE 4.4: (a) Experimental setup. "E" and "R" are the piezo-emitter and the piezo-receiver. The experiment is computer controlled, with static pressure measure, solicitation by mechanical taps via the low frequency shaker, and acoustic probing. (b) Preparation procedure to provide an initial packing density value reproducible for each powder sample.

4.4.2 Results

In Fig. 4.5, a typical experimental acoustic transfer function is presented for a freshly prepared powder sample (according to the protocol described in the previous section 4.4.1) and for the same powder sample compacted by applying 10^5 taps. The geometry is assumed to be one-dimensional with longitudinal acoustic waves generated on one side of the powder slab and detected on the other side [20]. Comparisons with a theoretical result from modeling Biot wave propagation in granular media in ref. [42] as well as with experimental results from [20] allow identifying two characteristic frequency regions in these acoustic transfer functions. These regions are related to the existence of two Biot modes that are basically uncoupled inside the medium according to this configuration, except at the receiver where both contribute to the detected signal. In the lowest frequency band, the acoustic solid stress takes precedence over acoustic pressure in the fluid and constitutes the main contribution to the total stress detected by the receiver. Consequently, the acoustic transfer function depends mainly on the solid skeleton properties. Some resonances of the granular slab are observed within this frequency region. In the upper frequency band, the fluid pressure becomes the primary contribution to total stress. In this case, the medium may be considered as an "equivalent fluid", whose acoustic properties are independent of the solid phase elasticity (wave energy mainly propagates in the saturating fluid, independently of the solid elasticity). Compared to the study reported in [20], where the considered monodisperse granular samples are made of glass beads with diameters ranging from 0.7 to 2 mm, the powders considered here contain much smaller grains. Hence, the air flow resistivity of their packing is much greater, leading to strong wave attenuation in air with distance and then to a smaller contribution at the receiver. For smaller grain sizes, scattering appears at higher frequencies, meaning that the drop in acoustic transfer function amplitude due to attenuation by scattering occurs at higher frequencies. For this reason, the characteristic frequency separating the two frequency regions of the acoustic transfer functions is higher for the powders (~ 50 kHz here) than for granular media with millimeter-sized grains (typically ~ 15 kHz in [20]).

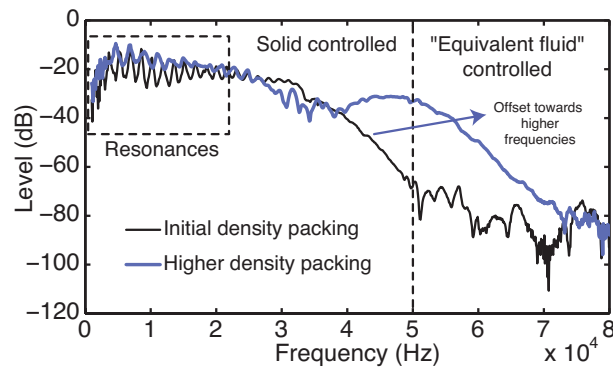


FIGURE 4.5: Experimental acoustic transfer functions of a 2 cm thick granular medium slab (a metal powder sample at 0 hour of milling) freshly prepared and slightly compacted. The experimental frequency response is corrected by the emitter and receiver sensitivities, measured independently.

From the longitudinal wave resonances observed in the solid control (i.e. low-frequency) region and under the assumption of rigid boundaries for the powder slab, the compressional sound velocity V_p can be deduced using $f_n = nV_p/2L$, where f_n is the frequency of resonance mode n and L the slab thickness. Resonance frequencies are measured experimentally by picking the point corresponding to maximum amplitude of the lowest visible resonance curve, yielding the resonance frequency of mode n . The order n is deduced from the frequency distance to the next resonance frequency. This detection method provides an accuracy of approximately 1% on the resonance fre-

quency, when considering that both the frequency resolution of the resonance curves and the typical signal-to-noise ratio have been reached.

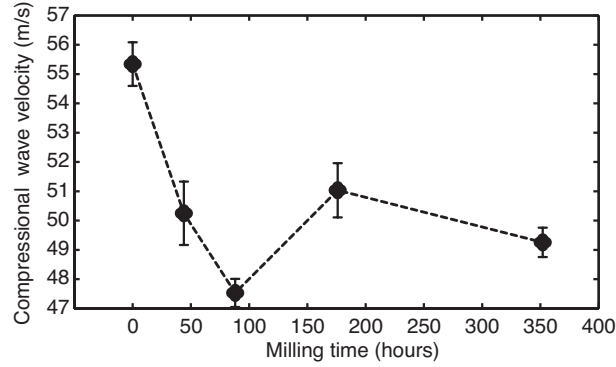


FIGURE 4.6: Compressional wave velocity in the powder samples versus the milling time.

The compressional sound velocity V_p is measured in this manner for each metal powder sample obtained at the various mechanical alloying stages and for a freshly prepared packing (i.e. low packing density, low pressure). In Fig. 4.6, the velocity values for each metal powder sample are presented versus milling time. At different milling times, the data point stands for the average velocity calculated from three preparation procedures and three repeated measurements between small mechanical taps (acceleration of $\simeq 3N/m^2$ at the bottom of the granular column). The error bars represented in Fig. 4.6 correspond to the standard deviation of the various results derived for these measurements. An accuracy of 1 to 2 m/s is obtained for the sound velocity measurement. As has been observed for the various metal powders tested, velocity values lie around 50 m/s and a non-monotonic behavior of the ultrasonic velocity is recorded throughout the mechanical alloying process. This behavior is of particular importance to monitoring the mechanical alloying process, since the characteristic (extreme) velocities could be associated with a characteristic step of the process (or with the directional change in velocity variation). To better understand this non-monotonic behavior as well as the general pattern and reasons for these sound velocity changes, the overview in the next section will present several results from existing effective medium theories pertaining to the elasticity of non-cohesive granular media [19, 22].

4.5 Discussion and interpretations

4.5.1 Effective medium theories and origins of sound velocity variations

The basic idea behind effective medium theories that provide the set of effective elastic parameters for granular packing is as follows : the macroscopic work performed in deforming the system is set equal to the sum of the work performed on each grain-grain contact, with this sum being replaced by a suitable average [22]. These theories are typically referred to as effective medium theories (EMT) and based on Hertz-Mindlin contact mechanics at the microscopic level [19, 22]. It is important to note that EMT theories have been derived for granular packing with identical spherical grains (monodisperse size distribution) in a disordered arrangement.

The EMT prediction for the effective bulk modulus of an isotropic system compressed at hydrostatic pressure p in the case of frictional grains [19] is :

$$K_e(p) = \frac{k_n}{12\pi} (\phi Z)^{2/3} \left(\frac{6\pi p}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (4.1)$$

where $k_n = 4\mu_g/(1 - \nu_g)$ depends solely on the grain's material parameters (i.e. shear modulus μ_g and Poisson's ratio ν_g), ϕ is the packing compacity, and Z the average coordination number (defined as the average number of contacts per particle). This same type of expression exists for the shear modulus :

$$\mu_e(p) = \frac{k_n + 3k_t/2}{20\pi} (\phi Z)^{2/3} \left(\frac{6\pi p}{k_n} \right)^{1/3}, \quad (4.2)$$

with : $k_t = 8\mu_g/(2 - \nu_g)$.

The subscript in K_e indicates that the modulus has been calculated in considering the granular medium to be a purely elastic solid and an effective medium, i.e. whereby acoustic waves propagate as coherent waves like in a homogeneous solid. Furthermore, two assumptions are inherent to the elastic EMT. First, all spheres are statistically the same, along with the assumption of an isotropic distribution of contacts around a given sphere. Second, the grains are always at equilibrium due to this assumption of an isotropic distribution of contacts, with no further relaxation being required. These mean field theories are analogous to an average of many nonlinear spring constants.

The recent model for granular elasticity reported in [48, 49] proposes extending the Boussinesq nonlinear elasticity of granular media by an additional nonlinear term to account for volume dilatancy and shear-induced anisotropy, which are two processes that play a key role in granular media. It might therefore be worthwhile to correlate the expressions of linear "acoustic" moduli with those of granular elasticity theory (also called the Jiang-Liu model). The shear and longitudinal linear acoustic moduli are those observed by an infinitely small dynamic (yet long wavelength) perturbation of the strain (or stress) field in a compressed granular sample with hydrostatic pressure p . The Jiang-Liu model of granular elasticity provides an acoustic bulk modulus of the form [48, 49] :

$$K_e(p) = 3E \left(\frac{p}{E\mathcal{B}} \right)^{1/3} \mathcal{B}/2, \quad (4.3)$$

with E the Young's modulus of the bead material and a constant that depends on both the bead material and packing geometry :

$$\mathcal{B} = \frac{\phi Z}{9\sqrt{3}(1 - \nu_g^2)\pi}. \quad (4.4)$$

The shear acoustic modulus is given by :

$$\mu_e(p) = E\mathcal{A} \left(\frac{p}{E\mathcal{B}} \right)^{1/3}, \quad (4.5)$$

with a second constant that also depends on the bead material and packing geometry :

$$\mathcal{A} = \frac{(5 - 4\nu_g)\phi Z}{10\pi\sqrt{3}(1 - \nu_g^2)(2 - \nu_g)}. \quad (4.6)$$

The longitudinal wave propagation speed can then be expressed as :

$$V_p = \sqrt{\frac{K_e + 4\mu_e/3}{\rho}} = \sqrt{\frac{E\sqrt{\delta_0} \left(\frac{3}{2}\mathcal{B} + \frac{4}{3}\mathcal{A} \right)}{\rho}}, \quad (4.7)$$

with $\rho = \phi\rho_g$ being the packing density, ρ_g the average density of grain materials, and $\sqrt{\delta_0} = \left(\frac{p}{E\mathcal{B}} \right)^{1/3}$ where δ_0 is the average interpenetration distance between the centers of beads in contact. From Eqs. (4.1), (4.2) and (4.7), the following expression is obtained :

$$V_p = \left\{ \frac{1}{\rho_{mat}^{1/2}} \left[\frac{k_n}{12\pi} + \frac{k_n + (2/3)k_t}{15\pi} \right]^{1/2} \left(\frac{6\pi}{k_n} \right) \right\}^{1/6} \phi^{-1/6} Z^{1/3} p^{1/6}. \quad (4.8)$$

This expression can be divided into three main parts. The first part, in brackets, combines just the grain material parameters (i.e. elastic parameters and material density). The second part, with the term $\phi^{-1/6}Z^{1/3}$, contains the geometrical packing parameters, whose values are highly influenced by the morphological characteristics of the granular medium (grain size, grain shape and grain size distribution) [26, 34, 50]. The third and last part of this expression is merely related to the confining pressure p exerted on the packing. The medium configuration (e.g. depth, distance between walls when submitted to gravity) and history (loading, preparation protocol) have an effect on the actual pressure and residual stress within the medium. The probing method developed herein seeks to minimize these influences.

A parametric study on Eq. (4.8) is required in order to identify the most influential parameters on velocity evolution, under the conditions of our experimental configuration (powder samples, set-up and probing method). In the case of a stable, disordered and non-cohesive granular medium made of monodisperse spherical grains, the packing compacity lies between two limits, namely the random loose packing $\phi \simeq 0.56\%$ and the random close packing $\phi \simeq 0.64\%$. The compacity value may be higher if the medium is polydisperse or becomes locally ordered [34, 33]. It might also be lower than the random loose packing limit in the case of non-spherical grains, due to the modified isostaticity condition related to the impeded rotational motion [51]. In the powder samples studied here, compacity has been found to range between $\phi \simeq 0.4$ and $\phi \simeq 0.6$, which corresponds to a relative change of 50%. Using Eq. (4.8) (although not derived for polydisperse packing configurations), the velocity modification attributed to just the packing compacity change could therefore reach a $\simeq 7\%$ change due to the weak dependence of velocity on compacity ($\phi^{-1/6}$). The elastic modulus modification caused solely by the 50% compacity change, according to Eq. (4.1) and Eq. (4.2), would equal $\simeq 31\%$, i.e. much larger than the wave velocity modification.

For a three-dimensional, disordered granular packing configuration, the average number of contacts per particle (i.e. the coordination number) can vary from $Z \simeq 4$ to $Z \simeq 8$ for a monodisperse granular medium and evolve from $Z \simeq 3$ to $Z \simeq 8$ in the case of a grain size distribution, i.e. polydispersity [26]. Such coordination number differences result in maximum wave velocity changes of about $\simeq 39\%$ and elastic modulus changes of $\simeq 92\%$. Moreover, the deviation from sphericity for grains composing the powder can lead to even larger variations in coordination number Z , and possibly to larger variations in the elastic moduli. In Ref. [27], it is numerically shown that the coordination number plays an important role (and one that is generally underestimated) on the elastic modulus of granular packing, much more so than the other parameters involved.

The confining pressure is an external parameter that can be measured with relatively good accuracy (for purposes here, using an FSR sensor on the container walls). In the developed preparation protocol, relative variations in static pressure due to gravity have been observed around the mean value $p \simeq 1200$ Pa. Due to the weak dependence of wave velocity on static pressure ($\propto p^{1/6}$) however, this influence is expected to be small. Moreover, the associated variations may be compensated by the measured pressure, in applying Eq. (4.8).

Lastly, the elastic parameters of the grain materials themselves might play a role. Throughout the mechanical alloying process, grain composition and structure evolve. To the best of our knowledge, no study has yet to focus on a precise estimation of the grain's elastic parameters during the mechanical alloying process. Studies on ODS steels have mainly dealt with oxide dispersion inside the grain; they have shown an evolution in the microstructure, though without any significant evolution in grain material composition [2, 4]. By considering a relatively small variation in the elastic parameter of steel grains due to successive ball impacts, of about 10%, the associated wave velocity variations are on the order of 5%. Consequently, this variation is much smaller than either the preparation-related variations or the packing parameter (ϕ and Z)-related variations.

In conclusion, according to our configuration, the most influential source of velocity variations

is the coordination number Z ; this finding is in agreement with Ref. [27]. Moreover, the coordination number is the only packing parameter that cannot be measured independently (as both average compacity and pressure are measurable). Wave velocity variations might therefore, in theory, provide measurements of the relative variations in coordination number. The complexity of metal powders should not be overlooked however, since they are composed of polydisperse packings of non-spherical grains. On the other hand, the available formulas related to the effective medium theories for elastic parameters and wave velocities, as given above, apply to the monodisperse packing of spherical beads. Extracting the qualitative behavior of elastic parameters for a polydisperse packing of non-spherical grains from these models could actually be relevant to some extent for interpretation purposes; for more quantitative predictions however, the effective models should be extended. Meanwhile, existing numerical works have provided some useful trends for interpreting the present results [27].

4.5.2 Compressional wave modulus evolution along the mechanical alloying process, interpretation

To extract the elastic parameters from the measured acoustic wave velocity for the same confining pressure, the compressional wave modulus M is first calculated for a given metal powder sample using the relation : $M = \rho_{mat}\phi V_p^2$. Next, the elastic modulus values are corrected by taking into account the small static pressure variations from one sample preparation to another. Static pressure is measured independently of the acoustic measurements with an FSR pressure sensor placed on the side walls. Assuming the $p^{1/3}$ dependence on pressure given by effective medium theories, the correction on modulus M amounts to :

$$M^* = M \left(\frac{p_{ref}}{p_i} \right)^{1/3}, \quad (4.9)$$

where p_i is the measured static pressure of the powder sample milled for i hours, and p_{ref} a reference static pressure. In this case, we set : $p_{ref} = p_{188} \simeq 1200$ Pa. M^* vs. milling time can thus be presented for the same confining pressure (Fig. (a)).

For each metal powder sample in this figure, the error bars reflect pressure measurement uncertainties. The full curve is obtained after averaging measurements on three freshly prepared granular samples at each mechanical alloying stage. The modulus evolution here is similar to that observed for velocity V_p , though at a much higher level, thus leading to changes of up to 40% during the process. To explain this elastic parameter evolution throughout the alloying process (i.e. for different metal powder samples), we have first characterized the morphological and grain size evolution using the various means available during metallurgical processes. As presented in Fig. 4.2, the pictures generated by scanning electron microscopy at different mechanical alloying stages make it possible to estimate particle shape and size changes. The corresponding grain size distribution evolution is plotted in Fig. 4.7b and characterized via the normalized grain size distribution width $\overline{\Delta W} = \Delta W / \langle a \rangle$, where $\langle a \rangle$ is the average powder grain radius measured by a laser particle sizer and ΔW is the half-height width of the grain size distribution function.

These characterizations allow correlating the morphological changes during mechanical alloying with the evolution in coordination number Z and, consequently, with acoustic parameter changes via the EMT formulas. The observations in Fig. 4.7 reveal a striking correspondence between the evolution in compressional wave modulus and the evolution in $\overline{\Delta W}$. The hypothesis can thus be formulated that the more polydisperse the medium, the greater the compressional wave modulus.

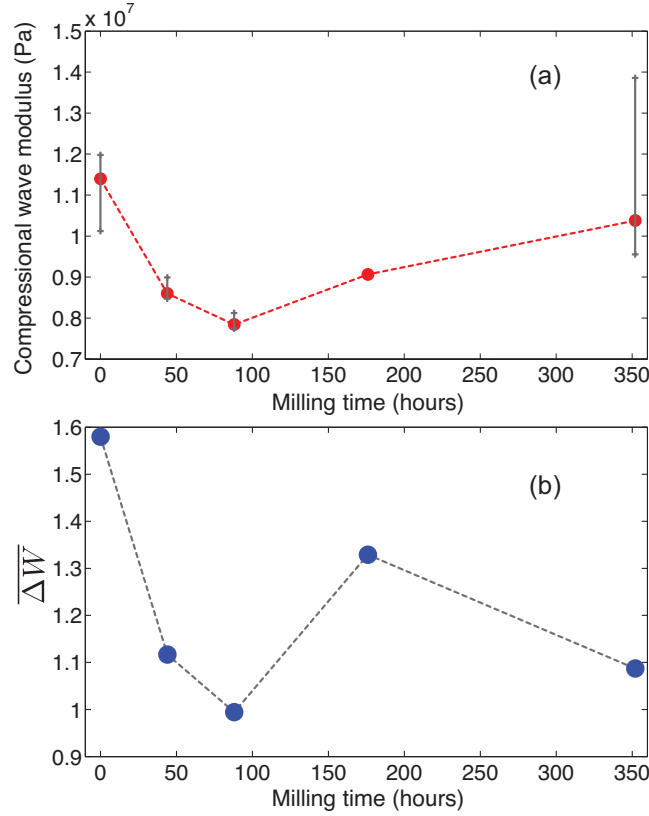


FIGURE 4.7: (a) Elastic modulus corrected by the static pressure. (b) Relative grain size distribution versus milling time.

The compressional wave modulus obtained for the last milling time however is inconsistent with this hypothesis. This particular measurement exhibits a greater error than the other measurements, and this powder sample displays the smallest average size of $\sim 45 \mu\text{m}$. In this case, the average size is sufficiently small to be below the limit commonly accepted for a granular powder whose cohesive effects have macroscopic features [52, 53]. More specifically, the increase in macroscopic elastic parameters of the packing potentially involved herein is one of the more conventional features of a cohesive behavior. It is considered that cohesion may explain the anomalously high compressional wave modulus observed at this last milling time.

4.5.3 Further analysis of the role of polydispersity on the elastic parameters

In order to further analyze the role of polydispersity and test the hypothesis of a correspondence between $\overline{\Delta W}$ and M^* independent of the grain shape characteristics, experiments were conducted using spherical glass beads (Fig. 4.8a). Measurements are identical to those recorded for the metal powder samples, with the same set-up and preparation protocol. The glass bead samples have been selected with different bead sizes and polydispersity using sieves and a segregation device. With this preparation procedure, which is considered reliable for the given grain size distribution, the shape of the grain size distribution is not itself completely controlled, but rather is assumed to be close to a rectangular distribution.

From the longitudinal wave resonance observed for each glass bead sample, compressional wave moduli can be obtained using: $M^* = 4\rho_{mat}\phi L^2 f_n^2$, where f_n is the resonance frequency of resonance mode n , L the slab thickness, ρ_{mat} the bead material density, and ϕ the packing compacity.

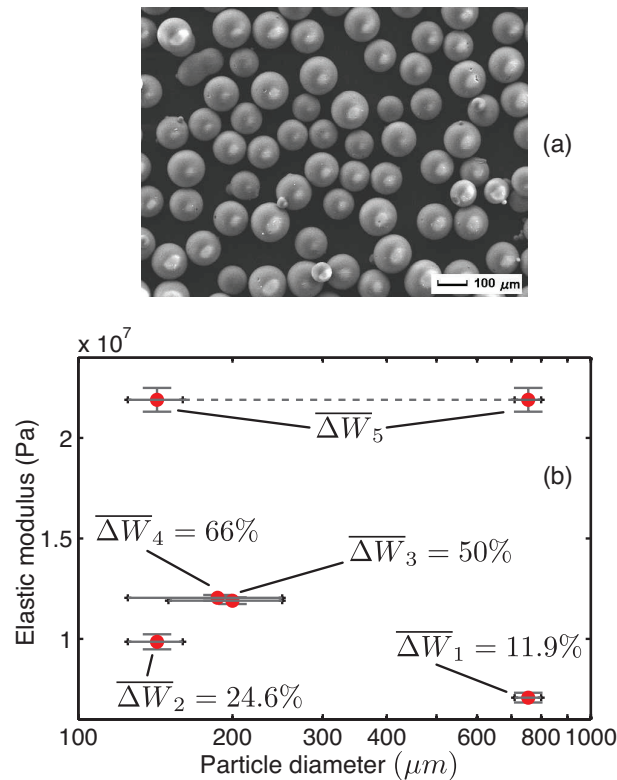


FIGURE 4.8: (a) SEM picture of the glass bead sample 2 with $\overline{\Delta W}_2 = 24.6\%$. (b) Compressional wave modulus as a function of the particle size for different samples having different grain size distributions.

In Fig. 4.8b, the compressional wave modulus for each glass bead sample with different grain size distributions is presented as a function of average particle size. Regarding the metal powders, grain size distributions are quantified through the relative grain size distribution width $\overline{\Delta W} = \Delta W / \langle a \rangle$, where $\langle a \rangle$ is the average radius of the powder grains and ΔW the grain size distribution width determined according to the smallest and largest sieves used for the segregation step. As presented in Fig. 4.8b, the compressional wave modulus depends on sample polydispersity, with an approximately 10-fold difference observed between the minimum compressional wave modulus value ($\overline{\Delta W}_1$) and its maximum value ($\overline{\Delta W}_5$). The value of M exhibits a monotonic relation with the relative width of the grain size distribution : the larger this relative width, the greater the elastic modulus. Packing compacity measurements for each sample yield values varying between $\phi \simeq 0.57$ and $\phi \simeq 0.66$, which should result in a relative elastic modulus change of 10% (Eq. (4.1) and Eq. (4.2)). Consequently, this compacity change does not explain the observed and much larger variation. The transition from monodispersity to polydispersity could, in theory, lead to a modification in Z and, in turn, to a significant influence on the elastic modulus M . As noted however for 2D packing numerical simulations reported in [30], the degree of polydispersity exerts practically no influence on Z . Moreover, it has qualitatively been shown that polydispersity affects the topology and heterogeneity of the force network [54, 55]. Let's indicate that in the case of sample 5 (as characterized by $\overline{\Delta W}_5$) containing two distinct characteristic bead sizes, a refined definition of Z may be useful to the future development of granular elasticity models for polydisperse packing.

The conclusion of this experiment with various glass bead samples (polydisperse packing of near-spherical beads) is that polydispersity is a highly influential parameter for the compressional wave modulus of a non-cohesive granular packing. The size distribution is assumed to be of a

rectangular shape ; however, further numerical or experimental work must be undertaken to investigate the influence of higher-order statistical distribution parameters (denoted as an asymmetric coefficient or flattening coefficient). Indications are available to confirm that the compressional elastic modulus is modified by the influence of polydispersity on the topology of force and contact networks [30]. These recordings have been used advantageously to interpret the results for metal powders (Section 4.5.2), in which both grain shape and polydispersity change.

4.6 Conclusions

An ultrasonic method has been presented herein for the elastic probing of powders and granular media under weak static pressures. The sample preparation protocol was selected for compatibility with an in situ characterization during the mechanical alloying process, with the possibility of applying this protocol to monitoring other processes. Observation was made of a non-monotonic variation in the measured elastic parameter of a compressional wave for powder samples extracted at various stages of the mechanical alloying process. This variation is of special interest in characterizing process evolution from a quantitative standpoint. In considering effective medium theories to describe granular packing elasticity and quantify the relative influence of the medium parameters, it can be concluded that the method developed in this article is primarily sensitive to the morphological characteristics of the powders (i.e. particle shape, size and polydispersity) and not to the elastic parameters of individual grains. The parametric study conducted on the compressional wave velocity expression, Eq. (4.8), as obtained from effective medium theories, has demonstrated that coordination number Z is the most highly influential parameter in the case of monodisperse and spherical grain-shaped packings as well as for our experimental configuration (same sample preparations and confining pressures). In considering the sample preparation protocol (i.e. non-compacted and freshly prepared packing subjected to the same weak static pressure), the findings of this study can be summarized as follows :

- the compressional elastic wave modulus is mainly influenced by the geometrical and morphological properties of the packing (rather than the elastic properties of individual grains) ;
- the less spherical the grains (and the smaller the expected Z), then the smaller the compressional wave modulus.

A complementary experimental study with granular samples of spherical glass beads has also been conducted in order to focus analysis on the role of polydispersity in the compressional wave modulus, as well as to avoid the influence of non-sphericity. Results have shown the determinant influence of polydispersity on the compressional wave modulus : the larger the relative polydispersity, the greater the compressional wave modulus value. In the case of various polydisperse packings of spherical glass beads, we have observed that the expected relatively low variations in coordination number Z , as predicted by numerical studies [30, 50], actually lead to large variations in the compressional wave elastic modulus M (a change of nearly one order of magnitude). Consequently, it can be concluded that the polydispersity of spherical grain-shaped packings exerts a strong influence on packing elasticity, and its impact on Z may require careful attention during future numerical simulations of our packing preparation protocol.

These experimental findings may stimulate future numerical and theoretical studies. The experimental results presented herein indicate that not only does the relative width of the size distribution play a role, but so does the size distribution shape. Consequently, other (higher-order) parameters quantifying the size distribution shape should be considered. Similarly, our results suggest that it might be relevant to account for higher moments (than Z) in the distribution of contact numbers per bead. These qualitative observations can be tested in numerical simulations on a preparation

protocol that remains consistent with the present one and in a systematic manner. The findings have also provided guidelines for interpreting experimental results and developing more advanced granular elasticity models.

Deuxième partie

OPTIMISATION ET QUALIFICATION DU PROCESSUS DE BROYAGE PAR MESURES ACOUSTIQUES ET VIBRATOIRES

Chapitre 5

DÉTECTION DE LA VITESSE OPTIMALE DE ROTATION

Le procédé de broyage est une opération importante pour de nombreuses industries (minérales, pharmaceutiques ou bien alimentaires). Ce procédé qui nécessite une grande intensité énergétique, peut représenter jusqu'à 50% du coup total de l'opération de mise en forme du matériau final, du fait de sa faible efficacité énergétique (4-8%) [13]. Dès lors, il est rapidement devenu important d'optimiser la conception du broyeur et les paramètres de broyage pour améliorer ce rendement. A titre d'exemple, l'industrie minérale utilise des broyeurs tubulaires qui peuvent atteindre un diamètre de 3 à 5 mètres, une longueur de 5 à 8 mètres et un remplissage pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines de tonnes. Aussi, la moindre amélioration de l'efficacité du broyage est susceptible de fournir des bénéfices économiques capitaux pour l'industrie.

Dès les années 1950, la littérature s'est intéressée au sujet en présentant des expérimentations sur l'influence du remplissage, de la proportion billes et matériaux à broyer, ou des caractéristiques des barres de levage sur la taille des matériaux finaux [13]. Plus tard, de nouveaux travaux ont montré l'intérêt de l'utilisation des simulations numériques pour modéliser l'évolution de données qui s'obtiennent difficilement lors des expérimentations [12, 56, 57, 58, 59]. Basées sur la DEM (Discrete Element Method), ces simulations permettent entre autre de modéliser le mouvement des particules dans un broyeur, ou bien la distribution de l'énergie transmise lors des chocs. Cette méthode consiste à détecter et à modéliser les différentes interactions des particules entre elles ou bien avec leur environnement en utilisant les lois de contacts. Les équations de mouvement sont ensuite résolues pour modéliser le mouvement des particules dans un espace clos en rotation (cuve du broyeur).

Même si ces simulations ont apporté des informations très utiles sur les mécanismes mis en oeuvre lors des broyages et sur les optimisations possibles du dimensionnement ou d'autres paramètres de broyage, il est apparu important d'élaborer des méthodes expérimentales permettant le contrôle et l'optimisation en temps réel. Dans le cas des broyeurs tubulaires chargés du broyage de charbon ou bien du broyage de minerais, le contrôle de la quantité de matériel broyé est un enjeu important pour l'amélioration de la productivité. Parmi les différentes méthodes mises en jeu (capteur piézométrique de contrainte, mesure de pression différentielle entre l'entrée et la sortie du broyeur,...), plusieurs auteurs ont montré l'intérêt de l'utilisation des mesures acoustiques et vibratoires pour le contrôle du remplissage de la cuve ou d'autres paramètres. Partant du constat, rapporté par les opérateurs, que le bruit et les vibrations émis par la cuve du broyeur varient en cours de broyage et en fonction des paramètres, Zeng *et al.* [60, 61] ont été les premiers à proposer une étude de ce type en 1992 sur un broyeur tubulaire (4 mètres de diamètre, 5 mètres de longueur pour une capacité de remplissage d'une centaine de tonnes de billes). Pour cela, ils proposent une méthode consistant à exprimer l'évolution de chaque paramètre des broyages (consommation

énergétique, taux de production de poudre, tailles de particules, etc...) en fonction de l'évolution de l'amplitude de certains pics fréquentiels des mesures acoustiques et vibratoires. Plus tard, d'autres études menées sur des broyeurs de tailles et de capacités similaires font suite à ce travail, la plupart se focalisant principalement sur l'estimation du remplissage de la cuve. En 2008 et 2009, Su *et al.* et Si *et al.* relient l'évolution de l'énergie vibratoire émise par la cuve au taux de remplissage de poudre de charbon [62, 63]. Huang *et al.* s'attachent à corrélérer la position angulaire pour laquelle l'amplitude des vibrations captées par un accéléromètre est maximale avec le niveau de remplissage global de la cuve [64]. D'autres études similaires sont également menées sur des broyeurs de laboratoire. Ainsi, les travaux menés par Tang *et al.* montrent qu'il est possible d'estimer indépendamment l'évolution du remplissage de billes et de poudre en observant l'évolution de l'amplitude des densités spectrales de puissance sur des bandes fréquentielles différentes [65]. L'équipe de Behera *et al.* propose d'explorer d'avantage les possibilités des mesures vibratoires pour l'optimisation du broyage [66]. Ils s'attachent à caractériser le mouvement de la charge en fonction de la vitesse de rotation de la cuve pour différents remplissages de billes ou de poudre.

Bien que les supports sur lesquels les études sont menées soient de dimensions différentes avec par conséquent des paramètres de broyage divers (taux de remplissage de billes, de poudre, atmosphère de broyage, broyage sec ou humide...), l'ensemble de ces études montre l'intérêt des mesures acoustiques et vibratoires pour le suivi et l'optimisation en temps réel du procédé de broyage. Par ailleurs, quel que soit le montage expérimental ou la méthode de traitement adoptés, l'amplitude des signaux acoustiques et vibratoires semble être une variable particulièrement sensible aux paramètres de broyage.

Le procédé de mécano-synthèse est un mécanisme complexe qui diffère du simple mécanisme de broyage puisqu'il fait également intervenir un mécanisme de soudure. Aussi, contrairement aux études menées sur des broyeurs à charbon ou à minerais, l'optimisation du procédé ne nécessite pas le contrôle en temps réel du remplissage de la cuve de manière à détecter une éventuelle surcharge en poudre, mais plutôt le contrôle ou la connaissance du mouvement des billes. Ce mouvement, l'énergie des chocs et leur fréquence doivent transmettre une puissance de choc transmise aux grains suffisante pour amorcer la mécano-synthèse et donc l'obtention de la bonne micro-structure [67, 68]. Par ailleurs, les travaux portant sur la caractérisation du mouvement des billes par mesures vibratoires [66] basent leurs interprétations sur des observations rapportées lors d'études antérieures, et donc sur des broyeurs de dimensions différentes. Or la profusion des études s'intéressant au mouvement des particules dans les broyeurs à boulets ou tubulaires indique bien que la moindre variation des caractéristiques de la cuve (diamètre de la cuve, géométrie des barres de levage, nombre de barres...) ou des paramètres du broyage (remplissage, proportion billes/poudre, vitesse de rotation...) est susceptible d'influencer la trajectoire des particules et donc les mécanismes de transformation.

La vitesse de rotation du broyeur est un paramètre important pour la réalisation de la mécano-synthèse. Actuellement, le protocole recommandé par les industriels consiste à fixer la vitesse de rotation à 87% de la vitesse critique de rotation. Cette dernière est définie comme étant la vitesse à partir de laquelle la force centrifuge exercée par la rotation de la cuve compense le poids d'une bille (eq. 1.4). Comme présenté au chapitre 1, la détermination de la vitesse critique s'appuie sur une formule théorique qui prend en compte uniquement le diamètre de la cuve et un remplissage composé uniquement de billes. L'usage de cette formule très simpliste est donc discutable puisqu'elle ne prend pas en compte les spécificités du broyeur, telles que les barres de levages, qui ont la fonction première de modifier la trajectoire des billes, ou bien la présence de la poudre, négligeant ainsi les effets de ségrégation [13, 69].

Ce chapitre propose une étude expérimentale visant l'optimisation de la vitesse de rotation par des mesures acoustiques et vibratoires. L'expérimentation mise en oeuvre consiste à corréler le mouvement des particules filmées par caméra rapide avec les signaux acoustiques et vibratoires émis par la cuve du broyeur. On cherche en particulier à montrer comment les signaux acoustiques et vibratoires sont fortement influencés par le nombre de chocs des billes et par le niveau des énergies cinétiques des billes avant choc. La section 5.2 est une analyse du mouvement des billes et de l'émission acoustique et vibratoire lorsque la cuve est uniquement remplie de billes. La section 5.3 étudie le mouvement de l'ensemble lorsque des poudres de diamètres différents sont introduites dans la cuve.

5.1 Expérimentation mise en oeuvre et méthodes de traitements

Les expérimentations mises en oeuvre se décomposent en trois étapes. La première consiste à filmer le mouvement des billes pour différentes vitesses de rotation lorsque la cuve est équipée d'une paroi transparente en plexiglas. Pour ces mêmes vitesses de rotation des enregistrements acoustiques et vibratoires sont ensuite réalisés. Enfin, lors de la dernière étape, le mouvement des billes est corrélé aux évolutions des signaux acoustiques et vibratoires mesurés.

5.1.1 Protocole expérimental

Pour chaque configuration de remplissage, le mouvement des billes est filmé avec une caméra rapide Phantom V5.1 placée face à la paroi transparente et à une distance d'environ un mètre (figure 5.1 (a)). Cette dernière est équipée d'un capteur ayant une capacité maximum de 1024 x 1024 pixels et de 1200 images par secondes en plein format. Les vidéos sont ensuite extraites avec le logiciel de post-traitement du fournisseur et enregistrées en format .avi pour permettre leur visionnage et leur traitement.

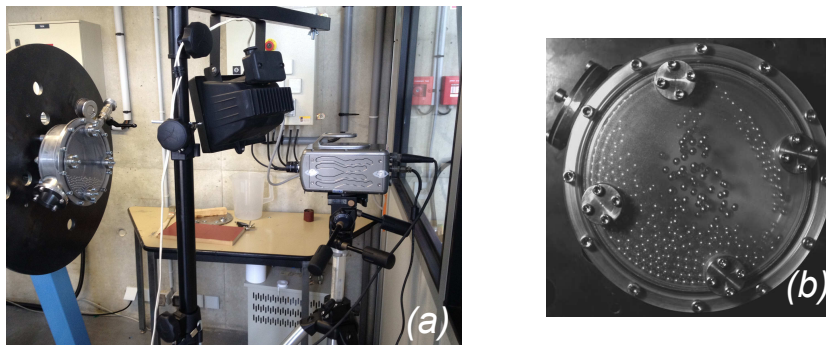


FIGURE 5.1: (a) Dispositif expérimental pour l'acquisition des vidéos par caméra rapide, (b) billes en rotation pour une vitesse de 70 tours/min.

Le signal acoustique émis par la cuve est enregistré par un microphone ICP 1/4 de pouce (PCB 130D21) placé face à la cuve à une distance d'environ 1 mètre de la cuve (figure 5.2 (a) et (c)). Cette distance a été choisie de manière à placer le microphone proche de la paroi du local dans lequel le broyeur a été installé. Cette position nous permet d'éviter la présence d'un éventuel plan nodal de pression notamment aux basses fréquences et également de s'éloigner de l'émission du moteur placé à l'arrière du bâti susceptible de parasiter les mesures. Ce microphone est utilisable sur une bande fréquentielle 10 à 15000 Hz avec une sensibilité de l'ordre de 45 mV/Pa.

En parallèle des mesures acoustiques, deux accéléromètres placés sur la cuve du broyeur assurent la mesure des vibrations émises par cette dernière une fois en rotation (figure 5.2 (a) et

(b)). L'accéléromètre 1 est fixé sur la face avant de la cuve, en un point légèrement décentré pour éviter d'être localisé sur une ligne nodale d'un mode de vibration. Une analyse modale préliminaire sur la bande fréquentielle 0-20 kHz a permis de s'en assurer. Le second accéléromètre est placé sur la tranche de la cuve du broyeur. Ces accéléromètres sont des transducteurs ICP (PCB 352C04) utilisables sur une bande fréquentielle 0.3 à 15 kHz (à $\pm 10\%$) avec une fréquence de résonance localisée à 50 kHz pour une sensibilité de 10mV/g. Les accéléromètres sont reliés au système d'acquisition par l'intermédiaire d'un collecteur tournant (SRH 3899) à axe creux fixé à l'arrière de l'arbre creux du broyeur (figure 5.2 (a)). Ce collecteur permet d'assurer la connexion et l'alimentation en courant continu des accéléromètres en rotation autour de l'arbre creux avec le système d'acquisition qui lui est fixe.

Le système d'acquisition qui assure également l'alimentation des transducteurs ICP est un analyseur OROS 32 voies (OR38). Chaque enregistrement est réalisé sur une durée de 30 secondes avec une fréquence d'échantillonnage de 51200 Hz.

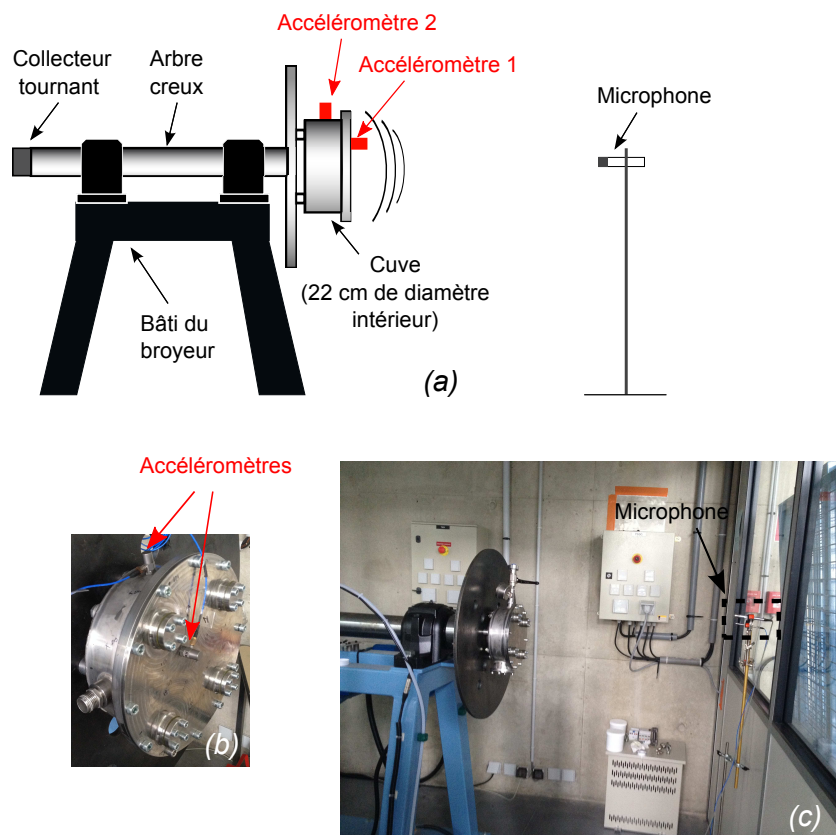


FIGURE 5.2: (a) Schéma du dispositif expérimental, (b) disposition des accéléromètres sur la cuve, (c) disposition du microphone.

5.1.2 Méthodes de traitements

5.1.2.1 Traitement des signaux acoustiques et vibratoires

Un exemple des signaux acoustiques mesurés dans le domaine temporel pour une vitesse de rotation donnée est présenté en figure 5.3 (a). Ce signal présente un motif régulier, avec des maxima et minima. L'observation du mouvement des billes pour cette même vitesse permet d'associer chaque maxima à une série de chocs des billes sur la cuve qui intervient tous les quarts de tours. Cette fréquence de mouvement d'ensemble s'explique par la présence des barres de levage qui ont la fonction principale d'accompagner les billes jusqu'à une hauteur donnée de manière à amplifier l'amplitude de leur trajectoire lors de leur chute (figure 5.1 (b) et 5.4). Les signaux vibratoires collectés par les accéléromètres présentent également des motifs similaires.

La première étape du traitement consiste à découper le signal temporel, de manière à traiter indépendamment chaque partie du signal liée à une salve de chocs 5.3 (b). La période temporelle du découpage est définie en fonction de la vitesse de rotation du broyeur.

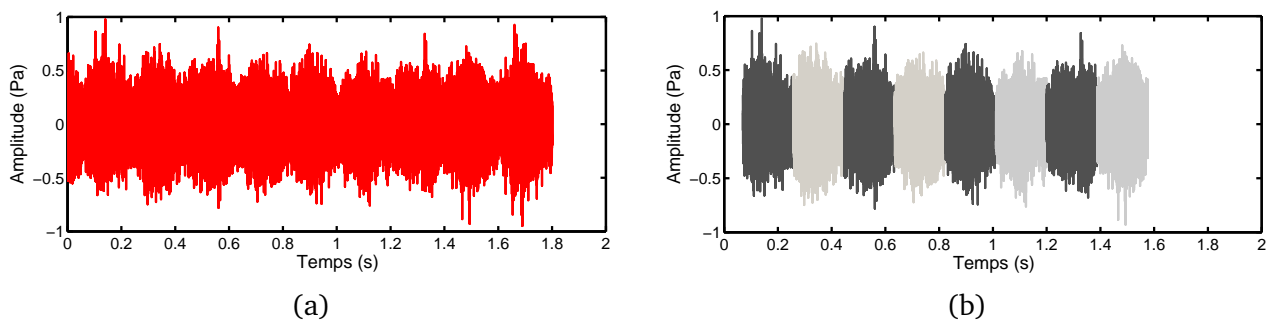


FIGURE 5.3: (a) Exemple d'un signal acoustique dans le domaine temporel typique enregistré lors de la rotation de la cuve à 80 tours/min. (b) Exemple de segmentation de ce même signal.

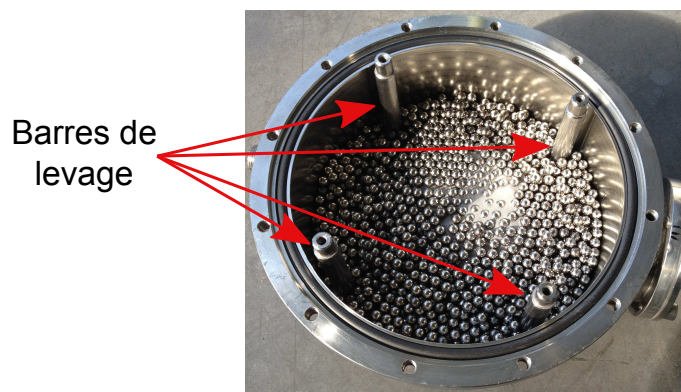


FIGURE 5.4: Barres de levage qui équipent la cuve du broyeur installé au LAUM.

En supposant que chacun de ces segments temporels correspond à un processus aléatoire stationnaire, on peut alors calculer sa signature fréquentielle, c'est-à-dire sa densité spectrale de puissance $\hat{U}^2(f)$. La densité spectrale de puissance (DSP) du processus aléatoire $(x[n, \xi])$, supposé stationnaire du second ordre peut s'exprimer comme la transformée à temps discret de la fonction de corrélation à temps discret. En pratique, la densité spectrale de puissance est estimée par un périodogramme de Welch en utilisant des fenêtres de Hann d'une taille de 256 éléments, un recouvrement de 50% et une fréquence d'échantillonnage de 51200 Hz.

L'observation de l'amplitude des densités spectrales de puissances obtenues pour des configurations différentes (vitesses de rotation, taux de remplissage...) sur la bande fréquentielle efficace du transducteur et leur comparaison, permet de détecter la bande fréquentielle pour laquelle le signal émis évolue le plus.

En supposant que les évolutions des amplitudes des DSP vont caractériser un changement dans le mouvement global des particules ou bien dans les mécanismes de déformations, on considère alors que l'information utile est contenue dans cette bande fréquentielle. Pour quantifier cette évolution des amplitudes, l'écart entre les différentes amplitudes des DSP par point fréquentiel est calculé puis normalisé par la moyenne de ces amplitudes pour ce même point fréquentiel. Cet indicateur d'écart nommé Δ_{DSP} se calcule tel que

$$\Delta_{DSP}(f) = \sigma_{DSP}(f) / \overline{A_{DSP}(f)}, \quad (5.1)$$

avec σ_f l'écart type entre les amplitudes des DSP à la fréquence f et $\overline{A_f}$ leur amplitude moyenne pour cette même fréquence.

L'énergie acoustique ou vibratoire est ensuite calculée sur cette bande fréquentielle telle que $E = \int_{f_1}^{f_2} \widehat{U}^2(f) df$. On peut alors calculer une moyenne des énergies acoustiques calculées pour plusieurs salves et observer l'évolution des moyennes obtenues pour des configurations différentes (en fonction de la vitesse de rotation, par exemple).

5.1.2.2 Traitements visuels

Dans la prédiction des différents mouvements que la charge peut adopter en fonction de la vitesse de rotation, la littérature s'accorde pour en inventorier quatre, à savoir les modes avalanche, cascade, cataracte et centrifuge (figure 1.5) [10, 59]. Il est également convenu de manière unanime que ce sont principalement les modes cascade et cataracte qui participent au broyage [7, 12, 13, 58]. En revanche, il subsiste des confusions dans les différentes études lors de l'utilisation des descripteurs de mouvement. Dans son étude, M.S. Powell propose une comparaison du mouvement de la charge obtenu expérimentalement avec le mouvement décrit par une simulation numérique, en définissant au préalable les différents descripteurs visuels utilisés dans le cas d'un broyeur [59].

En prenant l'exemple du cas où la vitesse de rotation de la cuve est suffisamment importante pour provoquer la cohabitation des modes cascade et cataracte, il différencie quatre descripteurs décrivant d'une part la hauteur de départ des billes avant leur chute et d'autre part leur point d'arrivée (figure 5.5).

- Le point de départ de la charge en mode cascade appelé "shoulder" est défini comme le point le plus élevé pour lequel la charge quitte la paroi de la cuve. En présence de barres de levages, il arrive que des particules en mode cascade qui se sont décollées de la paroi soient élevées à une hauteur plus importante que celle du point "shoulder". Ces particules seront néanmoins considérées comme appartenant au mode cascade.
- Le point "head" désigne le point le plus haut que peuvent atteindre les particules en mode cataracte lors de leurs chutes.
- Le point d'arrivée de la charge en mode cascade appelé "bulk toe", est défini comme étant le point d'inflexion de la charge. Il s'agit du point pour lequel les billes localisées sur la surface libre de la charge et qui chutent, vont entrer en contact avec la paroi de la cuve et changer de direction pour remonter jusqu'au sommet de l'ensemble.
- Le point d'impact des particules en mode cataracte est appelé "impact toe".

Lorsque la vitesse du broyeur est suffisamment faible pour qu'il n'y ait qu'un faible flux de billes en mode cataracte, les points de départ "shoulder" et "head" sont proches, les point d'impacts sont

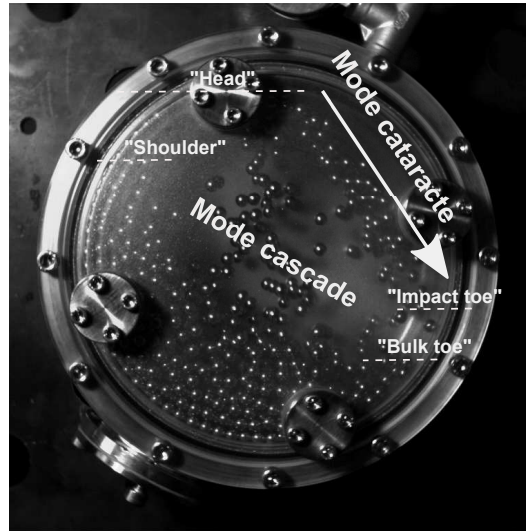


FIGURE 5.5: Illustration des différents descripteurs utilisés lors des traitements visuels.

confondus et il n'y a aucun impact direct sur les parois de la cuve. En augmentant la vitesse de rotation, le mode cataracte sera davantage présent et les points de départs et d'impacts vont progressivement s'éloigner. Dès que la vitesse critique est atteinte, la hauteur du point "head" va être équivalente au diamètre de la cuve et le point "shoulder" disparaît. Le repérage de ces quatre descripteurs permet donc de distinguer les différents mouvements de billes qui peuvent avoir lieu en fonction de la vitesse de rotation.

Dans le cas de notre étude, la première étape du traitement consiste à mesurer tous les quarts de tour le nombre de billes qui chutent et qui impactent la charge ou les parois de la cuve. Lorsque les modes cascade et cataracte sont tous les deux présents, le nombre de billes appartenant à chacun des modes est différencié. Cette opération de comptage est réalisée à l'aide du logiciel libre "MESURIM Pro". Ensuite, l'énergie cinétique d'un certain nombre de ces billes en chute libre est calculée. Ce calcul est réalisé sur une série de billes, en faisant l'hypothèse d'une trajectoire rectiligne lorsqu'elles sont proche de la paroi de la cuve et selon la formule $1/2mV^2$. Dans cette expression m est la masse de la bille considérée et V sa vitesse lors de sa chute déterminée par l'analyse consécutive de deux images extraites par caméra rapide aux temps t_1 et $t_2 = t_1 + \Delta t$. De manière à prendre en compte la contribution des différents modes de mouvement dans l'intensité globale des chocs, la proportion des billes appartenant aux différents modes est intégrée dans le calcul de l'énergie cinétique moyenne. Cette dernière est définie telle que

$$\overline{Ec} = \frac{1}{N_s} \sum_{i=1}^{N_s} \frac{1}{N_i} (n_{i_{cascade}} \overline{Ec}_{i_{cascade}} + n_{i_{cataracte}} \overline{Ec}_{i_{cataracte}}), \quad (5.2)$$

où N_s désigne le nombre de mesures, i la mesure qui correspond à un quart de tour, N_i le nombre total de billes qui impactent la cuve pour la mesure d'indice i , $n_{i_{cascade}}$ le nombre de particules en mode cascade, $n_{i_{cataracte}}$ le nombre de billes en mode cataracte et $\overline{Ec}_{i_{cascade}}$ et $\overline{Ec}_{i_{cataracte}}$ les énergies cinétiques moyennes calculées lors de la chute de plusieurs billes.

L'évolution de l'énergie cinétique est alors mesurée pour des configurations différentes ainsi que l'évolution du nombre moyen de particules qui participent aux chocs.

5.2 Détection de la vitesse optimale de rotation pour un remplissage de la cuve composé uniquement de billes

Cette section vise à observer le mouvement de la charge en fonction de différentes configurations telles que la vitesse de rotation ou le taux de remplissage, lorsque le remplissage de la cuve est uniquement composé de billes. De nombreuses études, expérimentales et numériques, ont porté sur la description du mouvement de la charge en fonction de la vitesse de rotation [10, 12, 59, 69, 56]. Ces études ce sont souvent focalisées au cas où la cuve est uniquement remplie de billes. La raison d'un tel choix est le plus souvent d'ordre pratique. Lors des mesures expérimentales la poudre est susceptible de masquer le mouvement des billes en se déposant sur la paroi transparente. Pour les simulations numériques, la prise en compte du diamètre des grains de poudre souvent bien plus petit que celui des billes est quant à elle limitée par les capacités de calcul [58, 69]. Des modifications du mouvement des billes ont été rapportées lorsqu'elle sont en présence de poudre [13, 69]. Toutefois l'intérêt de focaliser dans un premier temps cette étude sur le cas d'un remplissage de billes uniquement, est que le bruit émis par le broyeur sera uniquement influencé par le mouvement des billes.

La comparaison des mouvements, avec ceux observés en présence de poudre composée par des grains de taille suffisamment importante pour éviter qu'ils ne déposent sur la paroi transparente, permettra ensuite d'observer et de conclure quant à son influence sur le mouvement de la charge dans le broyeur et sur l'émission acoustique et vibratoire.

5.2.1 Evolution en fonction de la vitesse de rotation

Dans cette étude, le mouvement des billes et l'émission acoustique et vibratoire du broyeur sont observés et mesurés en fonction de la vitesse de rotation de la cuve du broyeur. Pour cette expérimentation, le taux de remplissage de la cuve est le même que celui qui a été préconisé par les industriels (Mécachrome) pour la réalisation de la mécano-synthèse des aciers ODS à savoir 30%.

Les évolutions de l'amplitude des densités spectrales de puissance acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation sont présentées figure 5.6.

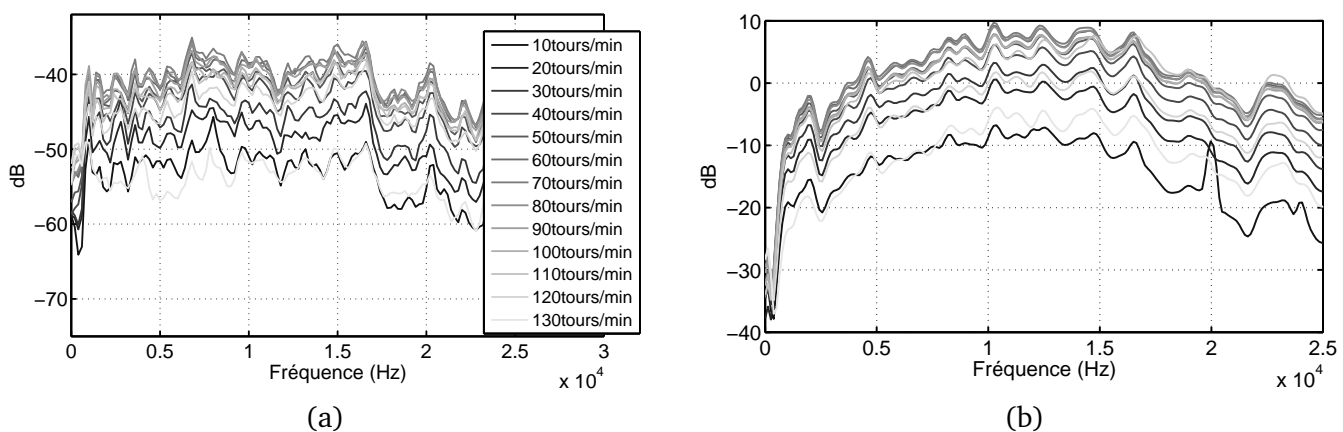


FIGURE 5.6: (a) Evolution des densités spectrales de puissance du signal acoustique émis par la cuve pour différentes vitesses de rotations. (b) Evolution des densités spectrales de puissance du signal vibratoire émis par la cuve pour différentes vitesses de rotations.

D'après ces figures, le contenu fréquentiel semble le même quel que soit la vitesse de rotation, en revanche les niveaux diffèrent de façon globale.

Cette observation peut toutefois être nuancée pour les signaux de faible amplitude, c'est-à-dire pour les vitesses de rotation de 10 et 130 tours/min. Pour ces vitesses, des pics d'amplitudes émergent à des fréquences différentes de ceux obtenus pour les vitesses de rotation intermédiaires. La présence de tels pics pour les mesures acoustiques peut être attribuée au bruit du moteur. En effet des mesures préliminaires du bruit du moteur à vide en fonction de la vitesse de rotation ont montré que ce dernier présentait un pic fréquentiel à 4000 Hz, puis à chacune de ses harmoniques (figure 5.7). Les pics observés à 8000 Hz sur la figure 5.6 (a) pour les vitesses de 10 et 130 tours/min correspondent donc au bruit du moteur. La comparaison de l'énergie acoustique du moteur pour les différentes vitesses de rotations avec celle de l'émission acoustique de la cuve a montré que le moteur émettait un bruit avec une énergie 10 fois inférieure à celle de la cuve. Aussi, même si le bruit du moteur peut être émergent pour certaines vitesses de rotation et pour une bande fréquentielle donnée, il est raisonnable de conclure qu'il a peu d'influence sur l'émission acoustique mesurée.

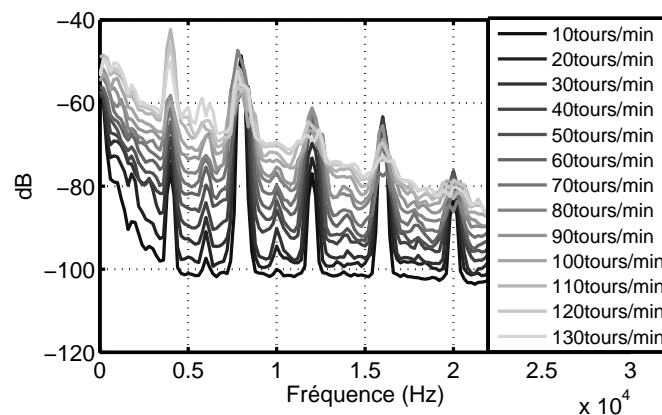


FIGURE 5.7: Densités spectrales de puissance du signal acoustique émis par le moteur à vide pour différentes vitesses de rotation.

Les différences observées pour ces deux vitesses, notamment pour les mesures vibratoires peuvent également être expliquées par les évolutions du mouvement de la charge. Ces différences seront expliquées lors de l'analyse visuelle.

En considérant que les différences de contenu fréquentiel observées pour les vitesses de 10 et 130 tours/min ne sont pas représentatives de l'évolution globale des émissions acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation, il peut être conclu que l'étendu fréquentielle utile est large bande. L'énergie acoustique est donc calculée sur la bande fréquentielle s'étendant de 2000 Hz à 18000 Hz et l'énergie vibratoire sur la bande fréquentielle comprise entre 4000 Hz et 18000 Hz. Les évolutions obtenues en fonction de la vitesse de rotation sont présentées figure 5.8.

Ces évolutions sous forme de cloche, augmentent toutes les deux progressivement en fonction de la vitesse de rotation, atteignent un maxima à 70 tours/min puis décroissent jusqu'à la vitesse maximale de 130 tours/min. De plus lors de leur décroissance, les deux évolutions présentent des points d'inflexion à 90 tours/min et 110 tours/min.

Les deux quantités acoustique et vibratoire semblent donc apporter la même information quant à l'évolution du mouvement de la charge. Pour expliquer ce comportement, les évolutions des énergie acoustique et vibratoire sont comparées aux évolutions des descripteurs définis dans la section 5.1.2.2.

La figure 5.9 présente des images obtenues par caméra rapide du mouvement des billes pour

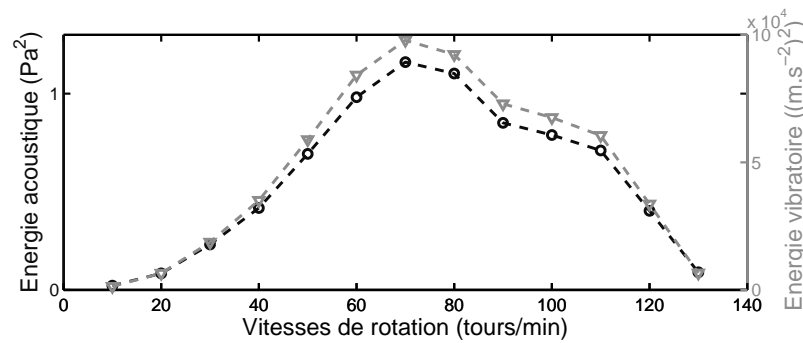


FIGURE 5.8: Evolution des énergies acoustique et vibratoire en fonction des vitesses de rotation calculées respectivement sur les bandes [2000-18000] Hz et [4000-18000] Hz.

différentes vitesses de rotations. Ces figures permettent d'identifier les quatre modes de mouvement de la charge définis dans la littérature et décrits par la figure 1.5. Pour les faibles vitesses, le mode avalanche domine, ce qui se traduit par de faibles niveaux d'énergies acoustique et vibratoire. Puis, à mesure que la vitesse augmente, de plus en plus de billes vont participer au mode cascade. La hauteur du point "shoulder" va progressivement augmenter, de même que l'amplitude de la trajectoire des billes jusqu'à ce que le mode cataracte fasse son apparition à la vitesse de 60 tours/min. Les deux modes vont ensuite cohabiter. Les niveaux acoustique et vibratoire donnés figure 5.8, semblent alors s'amplifier à mesure que la distance parcourue par les billes et leur nombre s'accroissent. L'amplitude de la trajectoire des billes en mode cataracte augmente et atteint son maximum à la vitesse de 70 tours/min puis elle décroît sous l'effet de la force centrifuge. Les hauteurs des points "head" et "impact toe" sont de plus en plus importantes jusqu'à ce qu'une rangée complète de billes soit collée à la paroi de la cuve à 90 tours/min. A partir de cette vitesse, qui peut être considérée comme la vitesse critique de rotation, de plus en plus de billes vont se plaquer à la paroi. Dans le domaine acoustique, cette zone délimitée par la vitesse critique se traduit par une diminution des niveaux d'énergie. Par ailleurs, à partir de cette vitesse la littérature annonce l'apparition de nouveaux modes cascade et cataracte qui influencerait les billes qui ne sont pas encore en mode centrifuge [59]. Cependant, dans le cas du broyeur étudié, le mouvement des billes est très désordonné et aucun mode n'est identifiable à partir de 90 tours/min. Cette différence semble être liée à la présence des barres de levages et à leur géométrie qui diffère de la littérature. Enfin, à la vitesse de 130 tours/min la quasi-totalité des billes est collée à la paroi.

Ces images suggèrent donc que les énergies acoustique et vibratoire sont fortement influencées par l'amplitude de la trajectoire des billes en chute libre, c'est à dire la distance qui sépare le point de départ de la bille de son point d'arrivée, et également par le nombre de billes qui participent aux chocs.

Les calculs de l'énergie cinétique moyenne des billes en chute libre et du nombre moyen des billes qui participent aux impacts tous les quarts de tours permet de quantifier ces évolutions (figure 5.10).

Ces quantités sont calculées pour les vitesses allant de 50 tours/min à 110 tours/min. Le traitement visuel n'a pas été possible en dessous de la vitesse de 50 tours/min car les billes n'étaient pas en mode cascade ou bien l'amplitude de leur chute ne permettait pas d'avoir une bonne précision pour le calcul de l'énergie cinétique. Par ailleurs, à partir de 120 tours/min la trajectoire des billes devient très fortement désordonnée et la composante verticale de la vitesse des billes, lorsqu'elles

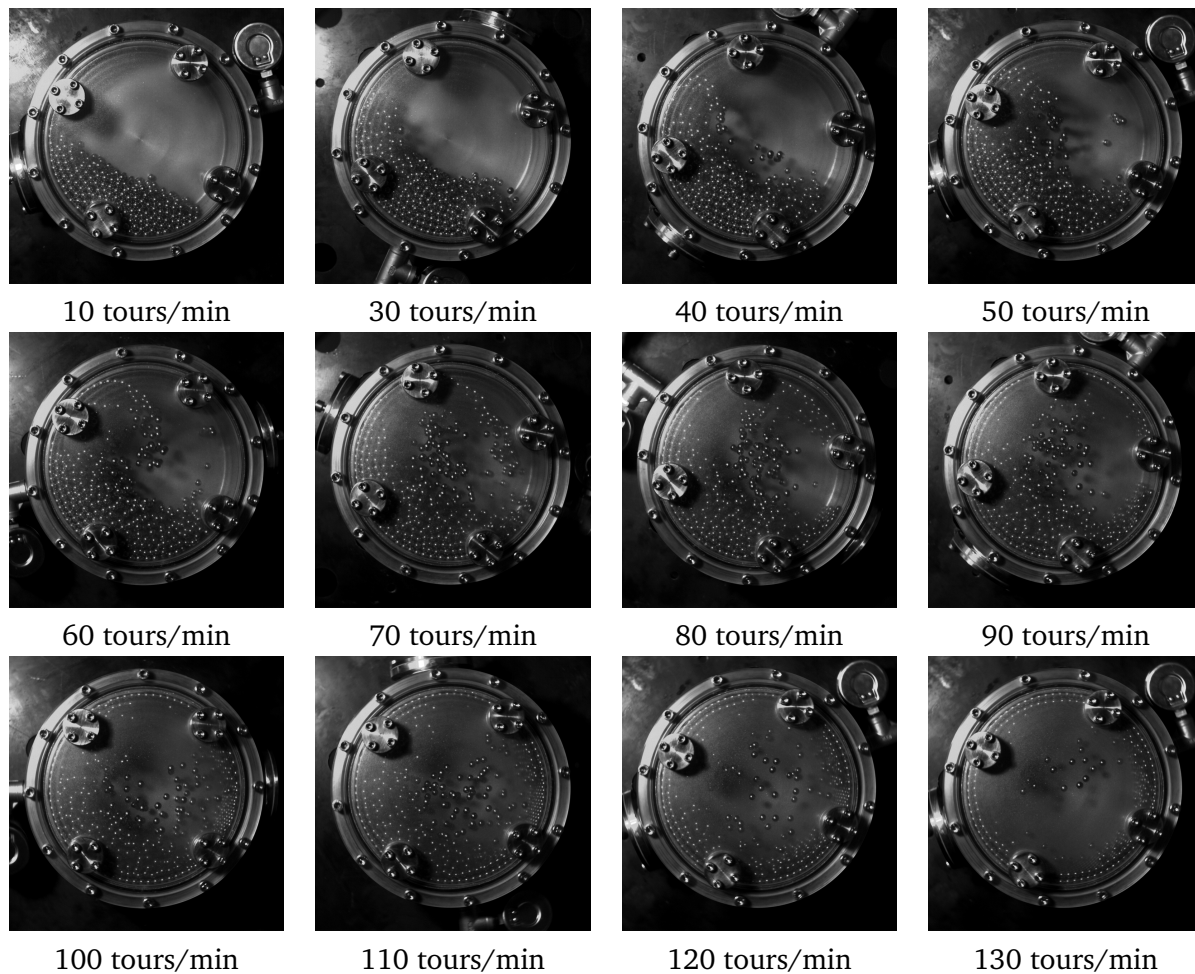


FIGURE 5.9: Captures des vidéos réalisées par caméra rapide à différentes vitesses de rotation de la cuve.

sont proches de la cuve, évolue très rapidement et tend à prendre plus d'importance que sa composante horizontale du fait de la force centrifuge. De même que pour les faibles vitesses, le calcul de l'énergie cinétique à partir de 120 tours/min ne serait donc pas représentatif de la réalité, c'est pourquoi la limite supérieure de l'analyse visuelle a été fixée à 110 tours/min.

Ces deux évolutions présentent également un maximum à la vitesse de 70 tours/min. A cette vitesse les nombres de billes en mode cascade et cataracte sont très proches et l'énergie cinétique des billes en mode cataracte atteint son maximum. Auparavant, l'énergie cinétique moyenne augmente de manière quasiment linéaire. Le nombre de billes en chute libre semble en revanche atteindre un niveau très proche de son maximum dès la vitesse de 60 tours/min. Puis, à partir de 70 tours/min ces deux quantités évoluent différemment. Le nombre de billes qui impactent la cuve diminue en continu avec un point d'inflexion à 90 tours/min dans son évolution, alors que l'énergie cinétique évolue de manière non-monotone et présente une augmentation à la vitesse de 110 tours/min. A cette vitesse, la majeure partie des billes qui étaient contenues dans la charge située à la base de la cuve sont entraînées dans un mouvement de chute libre. Puisqu'il n'y a plus de charge pour interrompre leur chute, la distance parcourue est telle qu'elle entraîne alors une augmentation de l'énergie cinétique moyenne.

D'après la figure 5.10, les maxima des descripteurs mesurés par l'analyse visuelle sont atteints

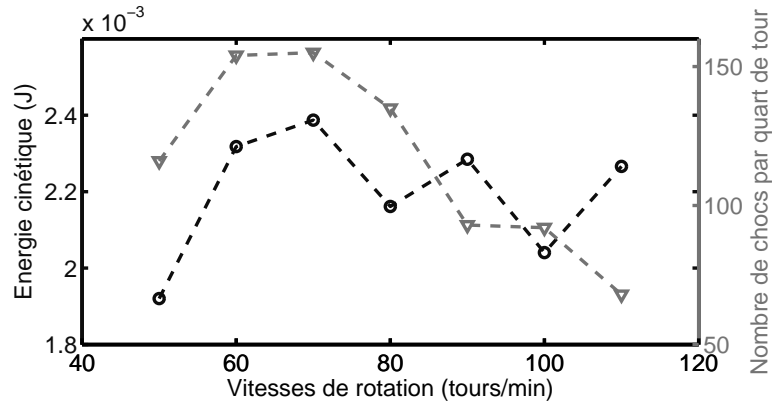


FIGURE 5.10: Evolution de l'énergie cinétique $\overline{E_c}$ et du nombre moyen de billes qui impactent la cuve par quart de tour en fonction de la vitesse de rotation.

pour la même vitesse de rotation que ceux des énergies acoustique et vibratoire (figure 5.8). Les évolutions de l'énergie acoustique et vibratoire peuvent donc être corrélées avec celles de l'énergie cinétique moyenne et du nombre de billes qui impactent la cuve tous les quarts de tours. Par ailleurs, le même point d'inflexion est présent à 90 tours/min pour l'évolution de l'énergie vibratoire, acoustique et du nombre de billes en chute libre. Il semblerait que les quantités acoustique et vibratoire de la cuve soient davantage influencées par le nombre de billes en chute libre. Les matrices de corrélation qui regroupent les coefficients de corrélation linéaire entre les variables énergies acoustique ou vibratoire (variable 1), les variables énergie cinétique moyenne (variable 2) et nombre de billes qui impactent la cuve (variable 3), tendent à étayer cette hypothèse (tableaux 5.1 et 5.2). Le calcul du coefficient de corrélation linéaire r_p entre les variables x et y revient à faire le rapport de la covariance σ_{xy} entre ces deux variables, avec le produit de leur écart type σ_x et σ_y , tel que $r_p = \frac{\sigma_{xy}}{\sigma_x \sigma_y}$. Ainsi, les coefficients de corrélation entre les variables 1 et 3 montrent que le nombre de billes impactant la cuve a une forte influence sur l'évolution de l'énergie acoustique ou vibratoire. La variable 2, qui est l'énergie cinétique, n'est toutefois pas à exclure pour l'interprétation des variables acoustiques et vibratoires puisqu'elle a une valeur proche de 0.6.

	Energie Ac	$\overline{E_c}$ moyenne	Nb billes
Energie Ac	1	0.59	0.8
$\overline{E_c}$ moyenne	0.59	1	0.29
Nb billes	0.8	0.29	0.1

TABLE 5.1: Matrice de corrélation entre les variables énergie acoustique (Energie Ac), énergie cinétique moyenne ($\overline{E_c}$ moyenne) et nombre de billes qui impactent la cuve (Nb billes).

	Energie Vib	$\overline{E_c}$ moyenne	Nb billes
Energie Vib	1	0.6	0.8
$\overline{E_c}$ moyenne	0.6	1	0.3
Nb billes	0.8	0.3	0.1

TABLE 5.2: Matrice de corrélation entre les variables énergie vibratoire (Energie Vib), énergie cinétique moyenne ($\overline{E_c}$ moyenne) et nombre de billes qui impactent la cuve (Nb billes).

5.2.2 Evolution en fonction du taux de remplissage de la cuve

Dans cette section, on propose d'examiner l'influence du taux de remplissage sur les émissions acoustique et vibratoire de la cuve et sur le mouvement des billes. Pour se faire, les mesures ont été réalisées avec trois taux de remplissages différents (25, 30 et 36%) tels que définis par l'expression (1.6), le taux intermédiaire étant celui usuellement utilisé pour un broyage d'acier ODS.

Des travaux portant sur les mesures vibratoires sur des broyeurs à charbon ont noté une évolution du contenu fréquentiel des signaux aux hautes fréquences (3500 à 7000 Hz) lorsque le remplissage de billes évolue [65]. Pour vérifier ce point, les densités spectrales de puissance mesurées pour une vitesse de rotation de 70 tours/min sont présentées en figure 5.11. Dans le cas des mesures acoustiques, une augmentation de l'amplitude de la DSP mesurée pour le taux de remplissage de 36% peut être observée sur l'ensemble de la bande fréquentielle. Les DSP mesurées pour les taux de remplissage de 25 et 30% semblent très similaires. Pour les mesures vibratoires, l'amplitude des DSP semble également varier, toutefois aucune tendance n'est réellement remarquable. Les observations des travaux menés par Tang *et al* ne sont donc pas vérifiées par cette étude. Les différences importantes dans les dimensions des broyeurs (de l'ordre d'un facteur 10) et de la quantité de billes dans la cuve pourraient en être la cause.

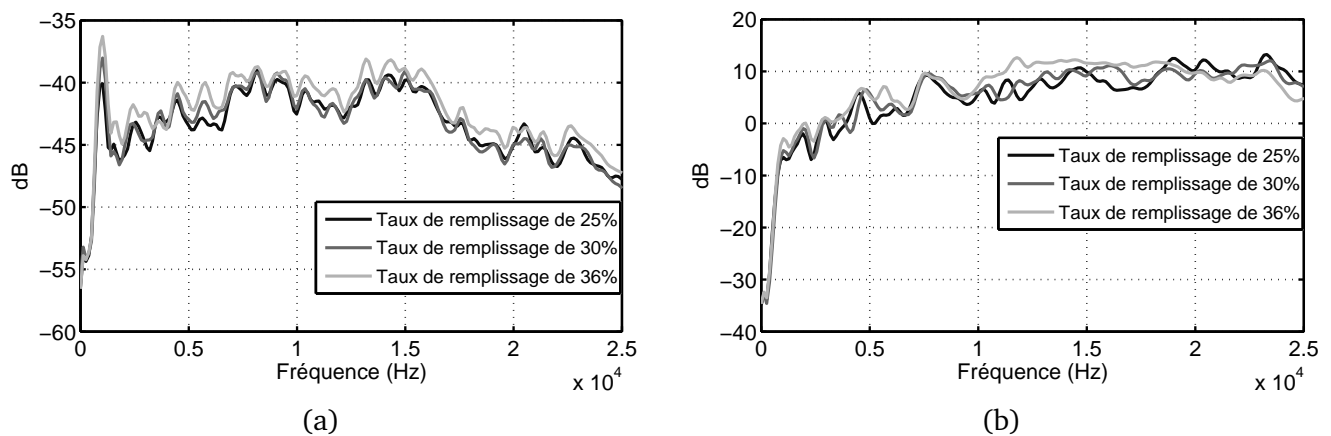


FIGURE 5.11: (a) Evolution des densités spectrales de puissance du signal acoustique émis par la cuve à la vitesse de 70 tours/min pour trois taux de remplissage différents. (b) Evolution des densités spectrales de puissance du signal vibratoire émis par la cuve à la vitesse de 70 tours/min pour trois taux de remplissage différents.

De même que pour l'analyse réalisée en section 5.2.1, les énergies acoustique et vibratoire sont calculées pour les trois taux de remplissage en fonction de la vitesse de rotation et comparées entre elles (figure 5.12). Les évolutions relatives des énergies acoustique et vibratoire semblent de nouveau être similaires pour un même taux de remplissage. Les écarts d'amplitudes entre les différents taux de remplissage sont toutefois différents. Ceci pourrait suggérer une différence de sensibilité au mouvement des billes des émissions acoustique et vibratoire de la cuve.

Les évolutions des énergies mesurées pour les taux de remplissage de 30 et 36% sont très similaires. Elles présentent un maximum à 70 tours/min puis diminuent au delà de cette vitesse avec les mêmes point d'inflexion aux vitesses 90 et 110 tours/min. L'évolution du mouvement des billes présenté précédemment pour un taux de remplissage de 30% est donc très proche du taux de remplissage de 36%.

Les évolutions des énergies acoustique et vibratoire mesurées pour le taux de remplissage de

25% différent cependant de celles obtenues pour les taux de remplissage supérieurs. Les amplitudes des énergies atteignent une valeur seuil dès la vitesse de 60 tours/min. Une légère diminution à la vitesse de 90 tours/min, suivie d'une faible augmentation, peuvent également être observées respectivement aux vitesses de 90 et 100 tours/min. Pour expliquer ces évolutions, le mouvement des billes pour ce taux de remplissage a fait l'objet d'une analyse visuelle (figure 5.13).

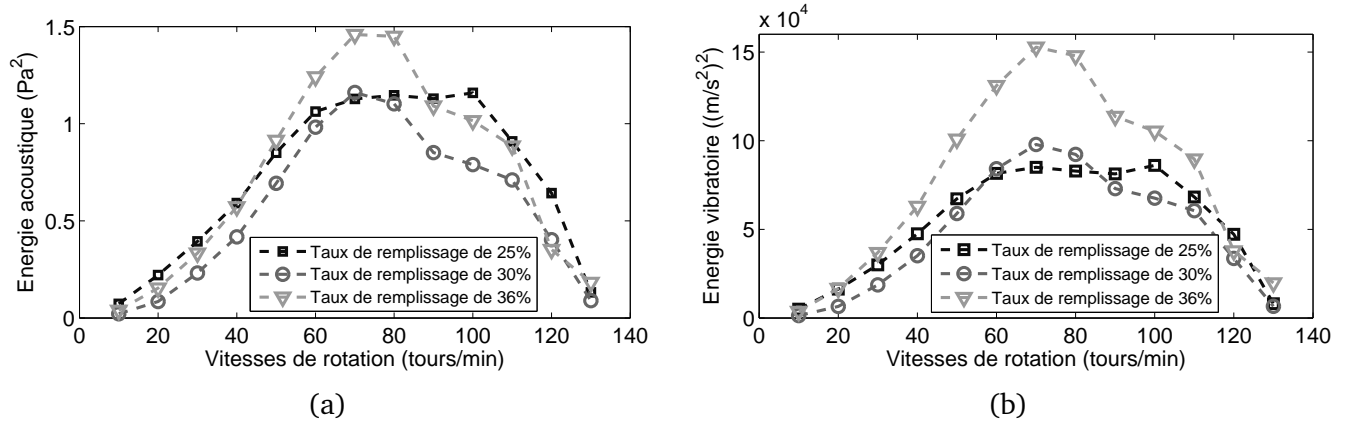


FIGURE 5.12: Evolution des énergies acoustique (a) et vibratoire (b) en fonction des vitesses de rotation calculées respectivement sur les bandes [2000-18000] Hz et [4000-18000] Hz et pour différents taux de remplissage de la cuve du broyeur.

D'après la figure 5.13 (b) et de même que pour le taux de remplissage de 30%, le nombre de billes en chute libre atteint un maximum à 70 tours/min puis diminue. Une forte diminution de ce nombre à la vitesse de 90 tours/min est également présente, ce qui signifie que la vitesse critique de rotation est atteinte pour cette même vitesse. En revanche, l'énergie cinétique moyenne (figure 5.13 (a)) évolue différemment. Elle augmente progressivement jusqu'à son maximum à 100 tours/min et diminue ensuite avec une pente plus importante. Le seuil observé pour les variations des grandeurs acoustiques et vibratoires peut donc être associé au nombre de billes en chute libre pour les vitesses inférieures à 90 tours/min et à l'énergie cinétique pour celles qui sont supérieures et en particulier à 100 tours/min.

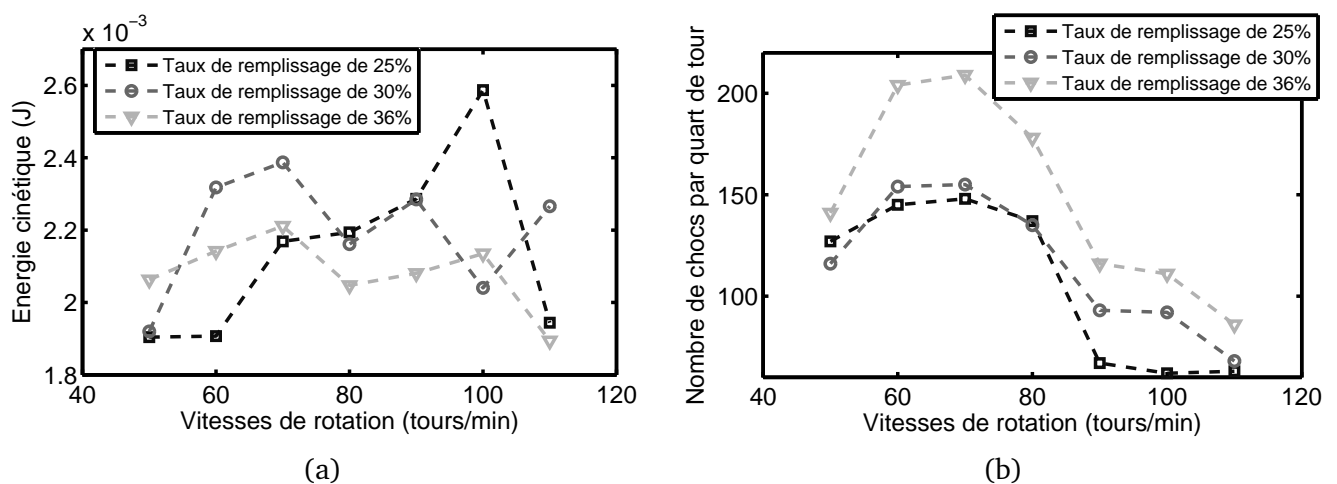


FIGURE 5.13: Evolution de l'énergie cinétique $\overline{E_c}$ (a) et du nombre moyen de billes qui impactent la cuve par quart de tour (b) en fonction de la vitesse de rotation et pour différents taux de remplissage.

Les similitudes quant aux évolutions relatives du nombre de billes impactant la cuve entre les

taux de remplissage à 30 et à 25% signifient que le mouvement des billes reste inchangé quelle que soit la valeur du taux de remplissage. Cette même observation avait été réalisée par M.H. Wang lors de ses travaux de simulation numérique [58]. La quantité de billes dans la cuve influence toutefois l'énergie cinétique moyenne des chocs. Pour un faible taux de remplissage, l'épaisseur de la charge localisée au niveau de la base de la cuve est moins importante. La chute des billes est donc interrompue plus tard par cette charge, ce qui permet aux billes d'accumuler plus d'énergie lors de leur chute.

Par ailleurs, lorsque le taux de remplissage diminue, les grandeurs acoustiques et vibratoires sont davantage influencées par l'énergie cinétique moyenne. Cela s'explique par l'effet conjugué de l'augmentation de l'énergie cinétique moyenne et de la diminution du nombre de billes impactant la cuve. Le fait que les écarts d'amplitudes entre les différents taux de remplissage soient plus marqués pour les énergies vibratoires, suggère également que ces dernières sont plus influencées par le nombre de billes en chute libre que les énergies acoustiques.

Enfin, dans son étude, B.Behera [66] avait également observé l'évolution des vibrations en fonction du taux de remplissage. A l'inverse de ce qui a été observé figure 5.12, il obtient des courbes dont les amplitudes diminuent lorsque le taux de remplissage augmente. Selon lui cette diminution s'explique par une réduction de l'énergie cinétique moyenne des billes lorsque le taux de remplissage augmente. Aucune étude visuelle n'est toutefois proposée pour appuyer cette hypothèse. Outre le fait que la méthode de traitement des données est différente, la différence de tendance pourrait provenir de la taille du broyeur (diamètre de 90 cm) et de la quantité de billes introduites dans la cuve (de 140 à 225 kg). Dans son article M.H. Wang a montré qu'au delà d'un certain taux de remplissage, l'efficacité du broyage diminuait [58]. Il est donc possible que les expériences menées sur le broyeur de 90 cm de diamètre aient dépassées ce seuil et que l'augmentation du nombre de billes entrave les mouvements de celles qui sont en chute libre.

5.3 Détection de la vitesse optimale de rotation pour un remplissage de la cuve composé de billes et de poudre

Les observations précédentes ont été obtenues dans le cas d'un remplissage de cuve composé uniquement de billes. Pour se rapprocher au mieux d'une configuration de broyage, une étude identique a été réalisée en ajoutant un volume de poudre identique à celui qui est prescrit pour la réalisation d'un broyage d'acier ODS (444 g de poudre pour 3.2kg de billes).

Mis à part l'effet d'amortissement des chocs qui peut être apporté par la présence de la poudre, la littérature n'est pas unanime sur l'influence que peuvent avoir les poudres sur le mouvement des billes. Dans leur étude, M.H. Wang et al n'identifient pas de changement notable du mouvement global de la charge lors de l'introduction de poudre dans leur simulation numérique [58]. En revanche, d'autres travaux identifient la présence d'effets de ségrégation pour certaines vitesses de rotation, ce qui se traduit par une modification du mouvement des billes et de la distribution de la charge dans la cuve du broyeur [69, 13]. Aux faibles vitesses de rotation, les grandes particules tendent à migrer à l'extérieur de la charge. A l'inverse, lorsque les vitesses de rotation sont plus importantes, les billes se déplacent dans la direction opposée au champ d'accélération et les grains de poudre se dirigent dans sa direction. Il s'agit d'un effet couramment décrit dans les milieux granulaires. Pour ces vitesses, une majeure partie de la charge de la poudre est localisée contre les parois et en particulier au niveau des barres de levage. La trajectoire des billes s'en trouve alors modifiée puisqu'elles sont moins entraînées par les barres de levage. Cet effet complexe et ses conséquences sur le mouvement de la charge dépendent bien évidemment de la géométrie de la cuve, ainsi que de la configuration de remplissage (proportion billes/poudre, taux de remplissage...).

L'objectif de cette section est d'étudier le mouvement global de la charge lorsque des poudres de taille et morphologie variables sont introduites dans la cuve, et de conclure quant à l'influence que peut avoir un éventuel changement du mouvement de la charge sur le bruit émis et sur la vibration de la cuve. Une première étude est réalisée sur un échantillon de poudre d'acier d'un diamètre moyen suffisamment important pour permettre l'observation du mouvement des billes par caméra rapide. La seconde étude porte sur l'évolution des énergies acoustique et vibratoire de la cuve du broyeur en fonction de la vitesse de rotation lorsque de la poudre d'acier ODS est introduite. Les conclusions de la première étude serviront de base pour l'interprétation de la seconde, c'est pourquoi la poudre d'acier est qualifiée de poudre "témoin".

5.3.1 Mesures préliminaires avec un échantillon de poudre "témoin"

Une première observation est réalisée en ajoutant une poudre métallique composée de grains d'acier sphériques, monodisperses et d'une taille suffisamment importante pour que les vidéos réalisées par caméra rapide puissent être exploitables, c'est-à-dire que les grains ne sont pas susceptibles de se déposer sur la paroi en plexiglas transparent (diamètre de 500 μm environ). De même que précédemment, le mouvement des billes, l'émission acoustique et les vibrations du broyeur sont observés et mesurés en fonction de la vitesse de rotation de la cuve.

Les amplitudes des densités spectrales de puissance (DSP) acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation sont présentées en figure 5.14.

Sur les figures 5.14 (a) et (b), l'amplitude globale des DSP décroît de 10 à 5 dB par rapport aux DSP mesurées lorsque la cuve est remplie uniquement de billes. L'amortissement des chocs qu'exerce la présence de la poudre semble évident. Le contenu fréquentiel des DSP diffère également de ceux obtenus lors des mesures précédentes (figures 5.6). Sur les DSP du signal acoustique, le niveau en hautes fréquences est davantage atténué et les pics sont lissés. Pour les mesures vi-

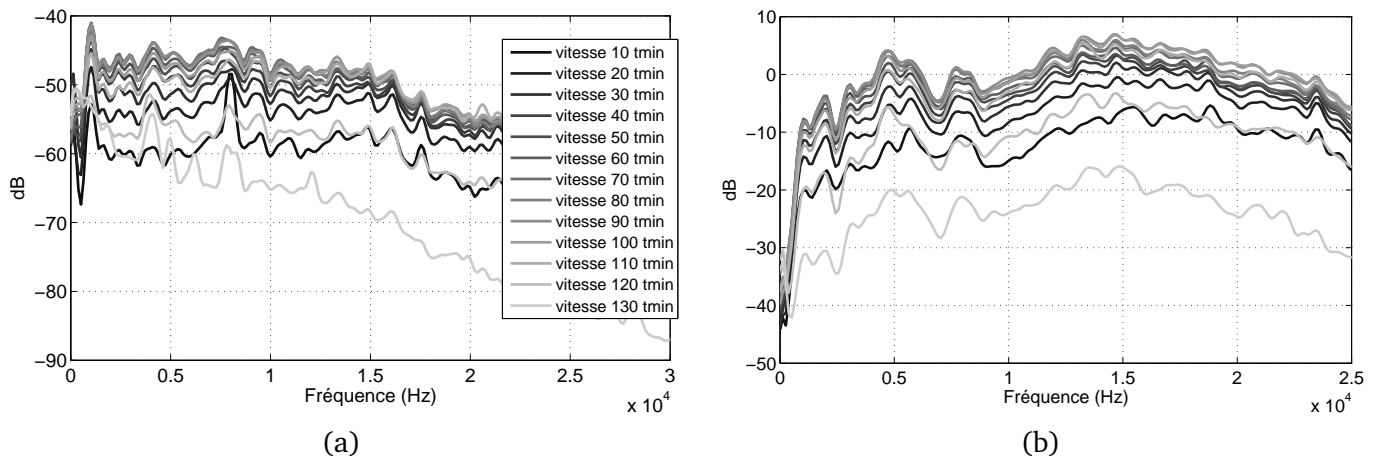


FIGURE 5.14: (a) Evolution des densités spectrales de puissance du signal acoustique émis par la cuve pour différentes vitesses de rotation lorsque qu'elle est remplie de poudre d'acier, composée de grains d'un diamètre d'environ $500 \mu\text{m}$. (b) Evolution des densités spectrales de puissance du signal vibratoire émis par la cuve pour différentes vitesses de rotation.

bratoires en revanche, c'est principalement le niveau dans la bande fréquentielle 5 kHz - 13 kHz qui est atténué. De plus, les écart des DSP acoustique se réduisent progressivement aux hautes fréquences, contrairement aux observations faites sans la poudre où ces écarts étaient constants. Le classement hiérarchique entre les différentes courbes reste néanmoins le même sur toute la bande fréquentielle. Aussi, la bande fréquentielle considérée comme sensible lors des mesures précédentes pour le calcul des énergies acoustique (calculée sur la bande fréquentielle 2000 Hz à 18000 Hz) et vibratoire (calculée sur la bande fréquentielle 4000 Hz à 18000 Hz) est conservée. Les évolutions obtenues en fonction de la vitesse de rotation sont présentées figure 5.15.

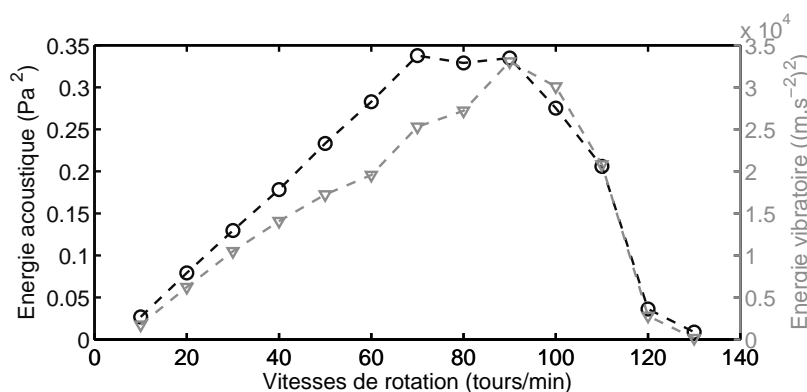


FIGURE 5.15: Evolution des énergies acoustique (calculée sur la bande fréquentielle 2000 Hz à 18000 Hz) et vibratoire (calculée sur la bande fréquentielle 4000 Hz à 18000 Hz).

Contrairement aux évolutions obtenues lorsque la cuve est uniquement remplie de billes, les évolutions des énergies acoustique et vibratoire ne sont pas similaires en fonction de la vitesse de rotation. L'énergie acoustique augmente de manière quasi linéaire jusqu'à 70 tours/min, se stabilise puis diminue au delà de 90 tours/min. Un léger point d'inflexion à 80 tours/min peut également être remarqué. Le maximum de l'énergie vibratoire n'est atteint en revanche qu'à partir de 90 tours/min. Un mécanisme semble donc atténuer davantage les vibrations pour les vitesses

inférieures à cette dernière. Les évolutions sont ensuite semblables ; les amplitudes des énergies diminuent avec des changements notables de pente à 110 et 120 tours/min. D'après cette figure, en supposant que le bruit et les vibrations émis par la cuve sont de nouveau corrélés avec le mouvement de la charge, il semblerait que la poudre ait pour effet une modification du mouvement globale de la charge. Par ailleurs, les différences qui ont été décelées suggèrent que ces deux quantités sont influencées différemment par le mouvement des billes.

Pour comprendre les changements qui ont lieu et leur influence sur les quantités acoustiques, les évolutions des descripteurs visuels sont de nouveau comparées à celles des énergies acoustique et vibratoire.

Quelques images instantanées obtenues par caméra rapide sont présentées en figure 5.16. De même que pour la figure 5.9, les quatre modes de mouvement de la charge qui sont décrits par la littérature se succèdent sur les images à mesure que la vitesse de rotation augmente. La vitesse critique paraît être décalée à 100 tours/min puisque pour la vitesse inférieure les billes ne recouvrent pas la totalité de la paroi intérieure de la cuve. Les points de départ des billes en mode cascade et cataracte ainsi que leurs points d'arrivée semblent se positionner à des hauteurs plus faibles pour les vitesses allant de 70 à 90 tours/min. Toutefois les modifications du mouvement des billes en présence de poudre sont difficilement décelables.

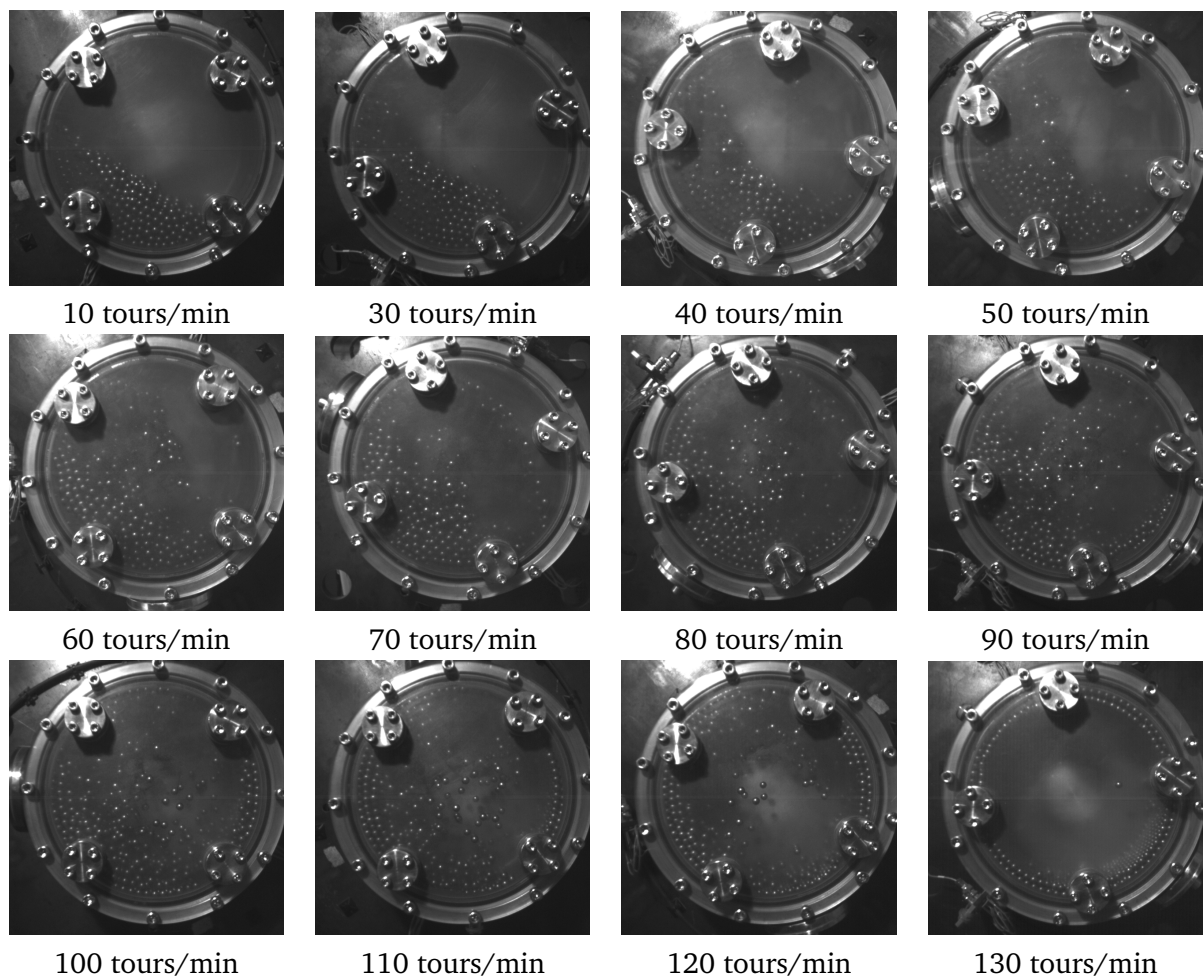


FIGURE 5.16: Captures des vidéos réalisées par caméra rapide à différentes vitesses de rotation lorsque la cuve est remplie de poudre d'acier.

Les variations des quantités issues des observations visuelles (énergie cinétique et nombre de chocs) permettent de quantifier les modifications du mouvement de la charge (figure 5.17). Comme l'illustre cette figure, les évolutions de l'énergie et du nombre de chocs sont dissemblables. L'énergie cinétique évolue de manière non monotone avec une forte diminution de sa valeur à 80 tours/min, alors que l'évolution du nombre de billes en chute libre atteint son maximum pour cette même vitesse ainsi que pour la vitesse suivante avant de chuter de manière brutale.

Les évolutions des quantités acoustiques et vibratoires peuvent alors être en partie expliquées. L'influence du nombre de billes en chute libre sur le bruit émis et sur le niveau vibratoire semble de nouveau avérée puisque les maxima des énergies acoustique et vibratoire coïncident avec celui du nombre de billes à 90 tours/min. En revanche, le léger point d'inflexion présent pour l'énergie acoustique à la vitesse de 80 tours/min suggère que cette quantité acoustique est également influencée par l'énergie cinétique moyenne.

Par ailleurs, pour les faibles vitesses et en présence de poudre, les amplitudes des vibrations de la cuve sont plus atténuées que son rayonnement acoustique (figure 5.15). Cette atténuation ne peut pas seulement s'expliquer par le nombre de billes qui chutent, puisque cette quantité atteint des valeurs voisines de son maximum dès la vitesse de 60 tours/min. L'observation des images présentées figure 5.16 permet d'apporter un élément de réponse. Pour les faibles vitesses, une majorité des billes en chute libre impactent la charge (c'est-à-dire l'ensemble des billes) située au niveau de la base de la cuve, et ce qu'elles soient en mode cascade ou cataracte lorsqu'il est présent. Or à l'aide des simulations par DEM, des études ont montré que la plus grande partie de la poudre est localisée dans la charge [57, 58]. En étant piégés dans la charge de billes, les grains de poudre sont donc susceptibles d'absorber davantage l'énergie des chocs lorsqu'ils se transmettent à travers le réseau de contacts des particules. Une fois que les vitesses sont suffisamment importantes pour que la plupart des billes aient leur point d'impact plus haut que la charge, le niveau vibratoire augmente, ce qui s'illustre par un changement de pente de l'évolution de l'énergie vibratoire après 60 tours/min. Le léger point d'inflexion à 80 tours/min de l'énergie vibratoire pourrait être lui aussi influencé par l'énergie cinétique moyenne mais à une proportion moins importante que l'énergie acoustique.

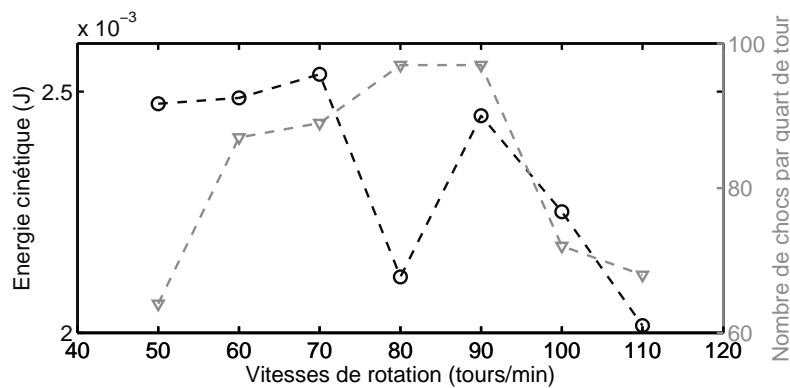


FIGURE 5.17: Evolution de l'énergie cinétique $\overline{E_c}$ et du nombre moyen de billes qui impactent la cuve par quart de tour en fonction de la vitesse de rotation.

La diminution de l'énergie cinétique à 80 tours/min, et donc des énergies acoustique et vibratoire, sont la conséquence d'une modification de la trajectoire des billes et en particulier de la disposition même de la charge située au niveau de la base de la cuve (délimitée par les points "shoulder" et "bulk toe"). A cette vitesse, la majorité des billes en chute libre est en mode cascade

(3 fois plus de billes que pour le mode cataracte). La figure 5.18 qui décrit l'évolution des hauteurs des descripteurs définis dans la figure 5.5, montre que les positions des points "shoulder" et "bulk toe" s'abaissent à 80 tours/min lorsque la poudre a été introduite dans la cuve. Cette diminution globale de la hauteur des points de départ et d'impacts des billes en mode cascade a pour effet une diminution l'amplitude de leur chute et par conséquent une diminution de l'énergie cinétique moyenne. Un changement de la trajectoire des billes en mode cataracte, illustré par une diminution de la hauteur du point "impact toe", peut également être remarqué. Ces glissements pourraient être la conséquence de la présence d'un effet de ségrégation qui a été décrit précédemment. Lorsque la vitesse augmente, les particules contenues dans la charge migrent jusqu'aux parois de la cuve. Elles forment alors une couche intermédiaire entre les billes et la paroi de la cuve qui peut jouer le rôle d'effet de roulement et entraîner ainsi un glissement de l'ensemble de la charge et donc un décalage des points "Shoulder" et "Bulk toe".

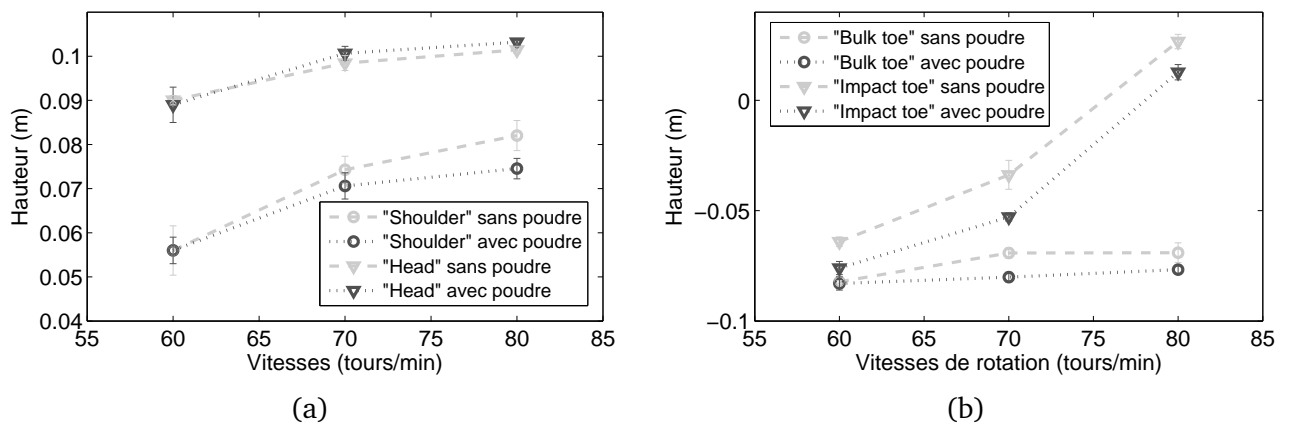


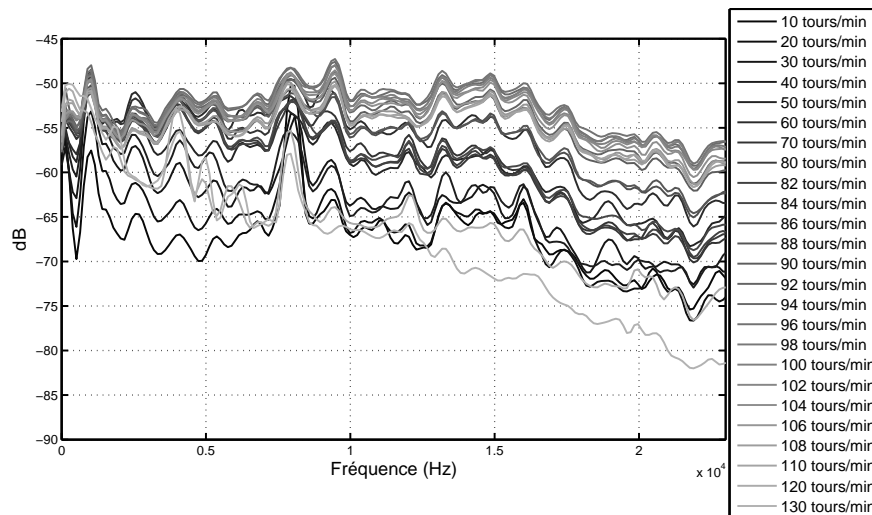
FIGURE 5.18: (a) Evolution de la hauteur des points "Shoulder" et "Head" en fonction de la vitesse de rotation avec et sans l'introduction de poudre "témoin" dans la cuve. (b) Evolution de la hauteur des points "Bulk toe" et "Impact toe".

5.3.2 Mesures sur un échantillon de poudre d'acier ODS non broyée

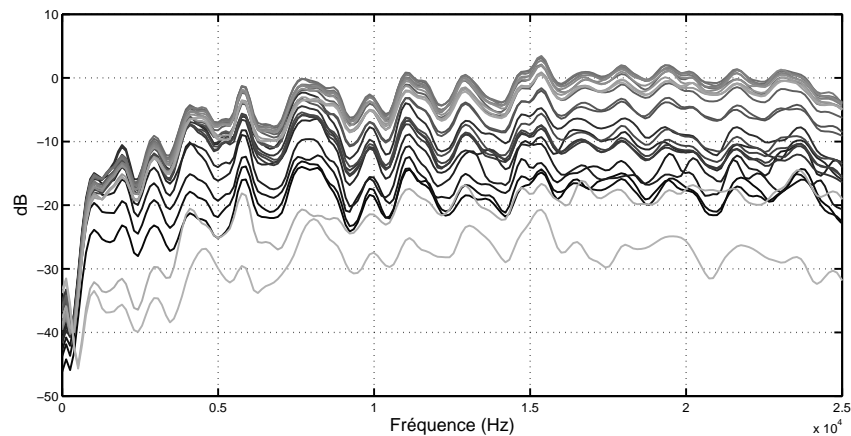
Les études précédentes ont permis d'élaborer une base de réflexion pour l'interprétation de l'évolution des mesures acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation, notamment en les corrélant avec l'évolution du mouvement de l'ensemble des particules contenues dans la cuve. Les paramètres influents sur les grandeurs acoustiques ayant été identifiés, il est maintenant possible d'interpréter les mesures réalisées sur un échantillon de poudre d'aciers ODS non broyée en l'absence de support visuel. Pour ces mesures, la configuration de remplissage est identique à celle prescrite pour la mise en oeuvre d'un broyage d'aciers ODS.

La figure 5.19 présente les densités spectrales de puissance mesurées. De même que pour les mesures réalisées sur un échantillon de poudre "témoin" (cf figure 5.14), une diminution globale des amplitudes peut être observée. Toutefois, ces diminutions sont globales sur toute la bande fréquentielle alors que les diminutions observées précédemment avaient lieu pour des bandes fréquentielles localisées en hautes fréquences pour l'acoustique et en moyenne fréquence pour les vibrations.

Les évolutions des énergies acoustique et vibratoire sont présentées figure 5.20. En comparai-



(a)



(b)

FIGURE 5.19: (a) Evolution des densités spectrales de puissance du signal acoustique émis par la cuve pour différentes vitesses de rotation lorsque qu'elle est remplie de poudre d'acier ODS non broyée. (b) Evolution des densités spectrales de puissance du signal vibratoire émis par la cuve pour différentes vitesses de rotation.

son des énergies mesurées pour un remplissage composé uniquement de billes, celles-ci ont une amplitude 10 fois inférieures. L'effet d'amortissement des chocs avec la poudre ODS est donc davantage mis en évidence puisque l'atténuation produite par la poudre "témoin" était deux fois moins importante.

En outre, les évolutions des énergies sont identiques et fortement non-monotones. Les énergies augmentent tout d'abord de manière non linéaire jusqu'à 60 tours/min. Au delà de cette vitesse elles décroissent et atteignent un seuil minimum à 80 tours/min. Un second pic avec un maximum à 96 tours/min d'une amplitude bien plus importante que le premier fait ensuite son apparition.

De même que précédemment la similitude des courbes d'énergies acoustique et vibratoire sous-entend que ces deux grandeurs apportent le même type d'information quant au mouvement de l'ensemble de la charge. Par ailleurs, l'amplitude des vibrations semble de nouveau être davantage atténuée pour les vitesses inférieures à 90 tours/min. La diminution des énergies à 80 tours/min

est beaucoup plus accentuée que celle observée pour la poudre "témoin". Cela suggère une modification de la trajectoire des billes (par la présence d'un effet de ségrégation plus marqué) qui aurait pour conséquence une diminution de l'énergie cinétique plus conséquente qu'auparavant. L'augmentation de la disparité de taille entre les particules de poudre ODS et les billes en serait la cause.

La seconde phase décroissante des énergies permet d'estimer la vitesse critique de rotation entre 100 et 110 tours/min. L'introduction de la poudre a donc également pour effet une augmentation de cette vitesse limite. Ceci peut aussi s'expliquer par l'effet de ségrégation qui a pour conséquence une modification de la trajectoire. Pour les très grandes vitesses de rotation, la quasi totalité des grains de poudre est plaqués sur la paroi de la cuve et forme une couche intermédiaire entre cette dernière et les billes. La distance des billes par rapport au centre de la cuve s'en trouve alors diminuée. Les billes ont donc besoin d'une vitesse angulaire plus importante pour palier cette diminution, se plaquer à la paroi et compenser leur poids (eq 1.1).

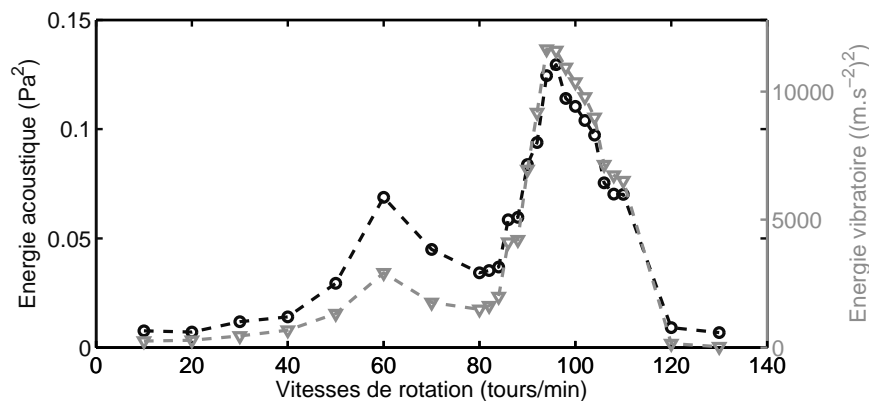


FIGURE 5.20: Evolution des énergies acoustique (calculée sur la bande fréquentielle 2000 Hz à 18000 Hz) et vibratoire (calculée sur la bande fréquentielle 4000 Hz à 18000 Hz) lorsque de la poudre d'acier ODS non broyée est introduite dans la cuve.

La vitesse de rotation prescrite par les industriels pour un broyage d'acier ODS est fixée à 87 % de la vitesse critique, calculée par l'équation 1.4 et qui considère une configuration de remplissage composée uniquement de billes. Pour ce broyeur elle correspond à 80 tours/min. Or les mesures réalisées ont permis d'associer cette vitesse à un minimum de l'énergie cinétique.

La forte augmentation des énergies acoustique et vibratoire observée pour les vitesses comprises entre 90 et 100 tours/min correspond à un accroissement du nombre de billes en chute libre et de l'énergie cinétique. Toutefois il a été montré que ce maximum des grandeurs acoustiques était corrélé aux impacts de billes principalement localisés sur les parois de la cuve et donc non efficaces pour le broyage de la poudre. La vitesse correspondant aux maxima des énergies acoustique et vibratoire n'est donc pas à retenir pour un broyage.

En dessous de 90 tours/min, l'amplitude relative de l'énergie vibratoire par rapport à son maximum à 96 tours/min reste inférieure à celle de l'énergie acoustique. L'amplitude des vibrations est donc plus atténuée ce qui signifie que la majeure partie des billes impactent la charge où est concentrée la poudre. Par ailleurs, la forte sensibilité des grandeurs acoustiques à l'énergie cinétique, précédemment mise en évidence, suggère que cette dernière est plus importante pour les vitesses comprises entre 60 et 78 tours/min que pour celles comprises entre 82 et 88 tours/min. Par ailleurs, au delà de 80 tours/min le nombre de billes impactant la cuve augmente progressivement même s'il reste minoritaire en dessous de 90 tours/min. Pour les vitesses inférieure à 80

tours/min, ce nombre est très faible mais la fréquence des salves de chocs s'en trouve diminuée (nombre de salves/minutes).

En conclusion, l'optimisation de la vitesse de rotation du broyeur consiste en un choix judicieux entre favoriser l'énergie cinétique des chocs et leur nombre ou bien la fréquence des salves de chocs. La mécano-synthèse étant un procédé complexe, seuls de nouveaux broyages à des vitesses de rotations différentes pourraient permettre de trancher.

5.4 Discussions et conclusion du chapitre

Les mesures acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation lorsque la cuve est uniquement remplie de billes ont montré que l'émission sonore et les vibrations du broyeur sont fortement corrélées au mouvement de la charge contenue dans la cuve. L'évolution des énergies acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation prennent la forme d'une cloche, dont les maxima coïncident avec ceux de l'énergie cinétique moyenne et du nombre de billes en chute libre par quart de tour.

Les mesures réalisées pour différents taux de remplissage ont montré que les énergies acoustiques et vibratoires sont davantage influencées par l'énergie cinétique moyenne lorsque le taux diminue, en particulier pour les grandeurs acoustiques. En revanche lorsqu'il augmente, le nombre de chocs par quart de tour voit son influence croître. Par ailleurs, une augmentation du taux de remplissage entraîne un accroissement du nombre de billes en chute libre ce qui conduit à l'augmentation de l'amplitude des niveaux acoustiques et vibratoires de la cuve. Les différences relevées avec la littérature suggèrent qu'au delà d'un certain seuil de remplissage, cette tendance s'inverse [58]. Les mesures réalisées pour un remplissage de cuve composé uniquement de billes ont montré que la vitesse critique de rotation est bien identifiée par l'expression définie par Rose et Sullivan (eq 1.6) et ce, quelque soit le taux de remplissage.

Lorsque la poudre est ajoutée au reste de la charge, le mouvement des billes s'en trouve modifié. Cette modification est de plus en plus marquée à mesure que la différence entre la taille des grains de poudre et celle des billes augmente. La vitesse critique de rotation augmente d'autant plus que la taille des grains de poudre diminue. Ce mécanisme serait lié à la présence d'un effet de ségrégation qui, pour les fortes vitesses, entrainerait les grains de poudre à migrer contre les parois de cuve, à l'inverse des billes qui seraient entraînées vers le centre de la cuve. Dans le domaine acoustique, cette modification du mouvement se traduit par une modification de l'évolution des énergies acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation de la cuve. Ces évolutions deviennent non monotones avec un minimum à la vitesse de 80 tours/min. L'analyse visuelle, qui a été réalisée avec un échantillon de poudre "témoin", a montré que ce minimum coïncidait avec une diminution de l'énergie cinétique moyenne.

Lorsque le remplissage est composé de billes et de poudre, l'énergie acoustique est un peu plus corrélée avec l'énergie cinétique. Cela pourrait être lié au fait qu'en présence de poudre, les chocs sont amortis et donc que le bruit aérien des chocs, localisés en surface de la charge, prend plus d'importance.

La comparaison des évolutions des énergies acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation, lorsque leur amplitude est normalisée avec leur maxima à 96 tours/min, a montré que l'énergie vibratoire est plus atténuée pour les vitesses inférieures à 90 tours/min. Cette diminution est liée au fait que pour ces vitesses, la majorité des billes en chute libre impacte principalement la charge de billes située au niveau de la base de la cuve et où la poudre est principalement localisée. Cette atténuation est donc liée à la présence de la poudre qui absorbe une partie des chocs. Lorsque la différence entre les amplitudes normalisées de l'énergie vibratoire et celles de l'énergie acoustique est nulle, cela signifie que la majorité des chocs n'est plus atténuée et donc que les impacts

sont localisés sur les parois de la cuve.

Les maxima des énergies acoustique et vibratoire correspondent à un maximum de l'énergie cinétique moyenne et du nombre de billes en chute libre. Toutefois pour ces vitesses, les chocs sont principalement localisés au niveau des parois de la cuve. Ils ne participent donc pas au broyage.

La vitesse actuelle de broyage, qui est de 80 tours/min, correspond à un minimum de l'énergie cinétique. Pour augmenter cette énergie cinétique, il faudrait, soit diminuer la vitesse de rotation du broyage, ce qui augmenterait le nombre de billes qui impactent la charge où est contenu la poudre mais qui diminuerait la fréquence des salves de choc, soit augmenter la vitesse de rotation ce qui aurait l'effet inverse.

En conclusion, il faudrait réaliser de nouveaux broyages pour tester l'influence de ces différentes conditions de broyage sur les matériaux fins. Quoiqu'il en soit, cette étude a montré l'utilité de la mesure des énergies acoustique et vibratoire pour l'interprétation du mouvement de la charge dans la cuve et donc pour l'optimisation de la vitesse de rotation du broyeur. Par ailleurs il a également été montré que les mesures acoustiques et vibratoires apportent des informations complémentaires, ce qui n'a pas été encore abordé dans la littérature.

Au cours de leurs mesures vibratoires, Behera *et al* n'avaient pas observé une évolution non monotone de l'amplitude des vibrations [66]. Cela peut être lié aux dimensions du broyeur, au remplissage de ce dernier, qui est bien plus important et à la différence de taille entre les billes et le matériau à broyer. Cela signifie donc que le mouvement de l'ensemble de la charge est extrêmement sensible au design du broyeur et à son chargement. Il est donc nécessaire de réaliser de nouvelles mesures acoustiques pour chaque broyeur considéré ou le développement de modèles mécaniques permettant de prendre en compte, sous forme de paramètres, les dimensions de la cuve, le nombre de barres de levage et les quantités de billes et de poudre.

Chapitre 6

ÉCOUTE ACOUSTIQUE ET VIBRATOIRE LORS DU PROCESSUS DE BROYAGE

Durant le broyage, les grains de poudre subissent en continu des mécanismes de déformation, de soudage à froid et de fragmentation. Plusieurs étapes se succèdent durant lesquelles ces mécanismes vont être à tour de rôle dominants, puis s'équilibrer (chapitre 1), jusqu'à ce que les grains de poudre atteignent un état pour lequel le stockage de l'énergie devient impossible, c'est-à-dire que ces mécanismes vont cesser.

Outre la présence des mécanismes de déformation plastique responsables de l'évolution de la taille des grains, de leur forme et de leur microstructure, d'autres mécanismes susceptibles d'altérer le procédé métallurgique peuvent également faire leur apparition durant le broyage. Leur présence qui nécessiterait une modification des paramètres de broyage pour les annihiler (vitesse de rotation de la cuve, atmosphère) ou bien dans le cas critique une interruption définitive du procédé, reste toutefois indétectable de part l'opacité de la cuve.

Un grand nombre d'opérateurs ont perçu une modification du bruit émis par la cuve de broyeurs à boulets lors du broyage des aciers ODS. Cela sous-entend donc que la succession des mécanismes de déformation plastique, ou bien la présence de mécanismes non désirés, sont susceptibles d'être détectées par des mesures acoustiques et vibratoires.

L'objectif de ce chapitre est de suivre le processus de broyage par des mesures acoustiques et vibratoires et de conclure quant à l'influence de la présence des différents mécanismes sur l'évolution des grandeurs acoustiques et vibratoires. La première étude consiste à réaliser des mesures acoustiques et vibratoires du broyeur instrumenté du LAUM en cours de broyage. La seconde étude propose d'étudier les évolutions des signaux acoustiques et vibratoires lorsqu'ils sont uniquement influencés par les variations granulométriques de la poudre. Pour ce faire, les mesures ont été réalisées sur les échantillons de poudres d'acier ODS fournis par Mécachrome et extraits à différentes étapes de broyage.

6.1 Ecoute acoustique et vibratoire d'un broyage réalisé sous air

Cette première étude consiste à suivre le signal acoustique émis par la cuve du broyeur lorsqu'un broyage de 176h est lancé. Le broyage a été réalisé en suivant le protocole prescrit par Mécachrome pour le broyage de poudre d'acier ODS (lot NX797 à 99.3%, de MY2O3 à 0.2% et de MTiH2 à 0.3%), c'est à dire avec un rapport de poids poudre/billes de 13%, un taux de remplissage de 30% (soit 3.26 kg de billes) et une vitesse de rotation de 80 tours/min (soit 87% de la vitesse critique de rotation donnée par l'équation 1.4). Seule l'atmosphère de broyage différerait de celle usuellement

utilisée, puisque dans ce cas là le broyage a été réalisé sous air et non sous argon (pour des raisons matérielles liées à des problèmes d'étanchéité).

Le montage expérimental reste identique à celui qui a été présenté figure 5.2. A l'issue des mesures, une base de données contenant les enregistrements acoustiques et vibratoires a pu être constituée. Elle est composée d'enregistrements de 30 secondes acquis toutes les heures.

6.1.1 Choix de la bande fréquentielle pour le traitement

La première étape du traitement a consisté en un découpage des signaux temporels et en un calcul des DSP tel que cela a été décrit en section 5.1.2.1. La superposition des DSP des grandeurs acoustiques et vibratoires mesurées en cours de broyage permet ensuite d'observer l'évolution du contenu fréquentiel des signaux (figure 6.1). D'après la figure 6.1 (a), il semble que l'influence du broyage sur les signaux acoustiques de la cuve soit croissante à mesure que la fréquence augmente. Dans le cas des mesures vibratoires, l'écart entre les amplitudes des DSP augmente progressivement aux basses fréquences puis semble se stabiliser dès la fréquence de 4000 Hz environ (6.1 (b)). L'effet du broyage sur le contenu fréquentiel des signaux peut alors être quantifié par le calcul des écarts normalisés Δ_{DSP} (eq. 5.1) entre les amplitudes des DSP par point fréquentiel (figure 6.2).

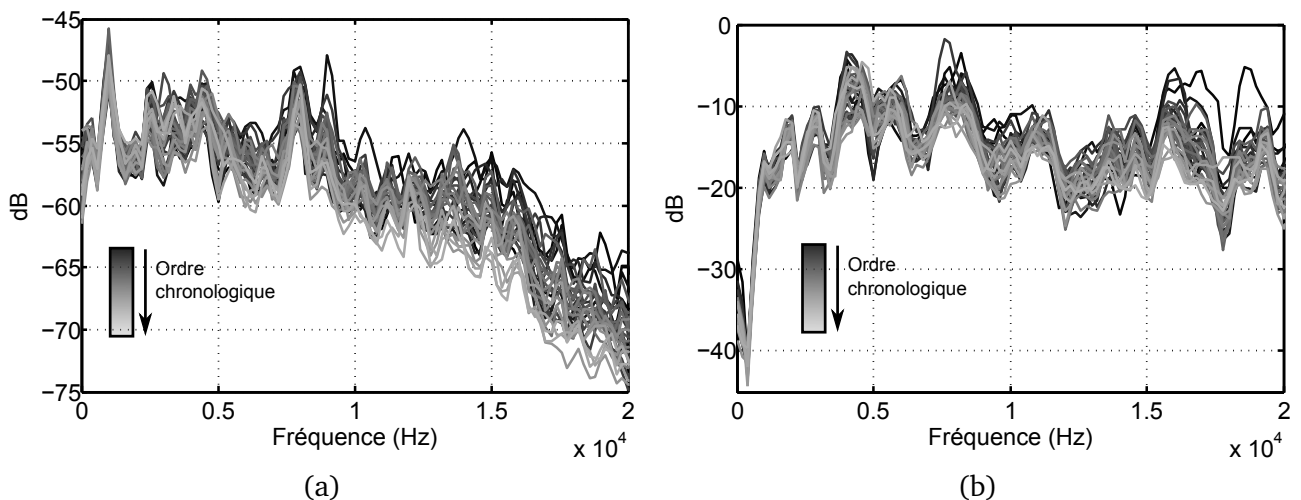


FIGURE 6.1: Densités spectrales de puissance obtenues pour différentes étapes :
(a) signal acoustique ;
(b) signal vibratoire.

Sur la figure 6.2 (a), l'écart Δ_{DSP} entre les amplitudes des DSP des signaux acoustiques semble bien augmenter progressivement, à quelques fluctuations près, en fonction de la fréquence.

Pour les mesures vibratoires, l'écart entre les amplitudes s'accroît faiblement de 1000 à 4000 Hz. Au delà de cette fréquence, des fluctuations autour d'une valeur moyenne qui augmente faiblement et qui est délimitée par deux sauts importants autour des fréquences de 5000 Hz et 17000 Hz, peuvent ensuite être observées. Le report sur la figure 6.1 (b) permet d'associer ce second saut de Δ_{DSP} à des modifications ponctuelles du contenu fréquentiel, c'est-à-dire qu'elles ne concernent pas la globalité des enregistrements.

En supposant que les évolutions des signaux caractérisant les changements qui ont lieu durant le broyage sont localisées dans les bandes fréquentielles pour lesquelles les écarts augmentent le plus, il est possible de définir une bande fréquentielle utile pour le calcul des énergies acoustiques et vibratoires. A partir des observations précédentes et en fixant arbitrairement la bande

utile d'analyse des signaux telle que $\Delta_{DSP} \geq 35\%$, les énergies acoustiques et vibratoires sont calculées respectivement pour les bandes fréquentielles [6000 - 18000] Hz et [4000 - 16000] Hz.

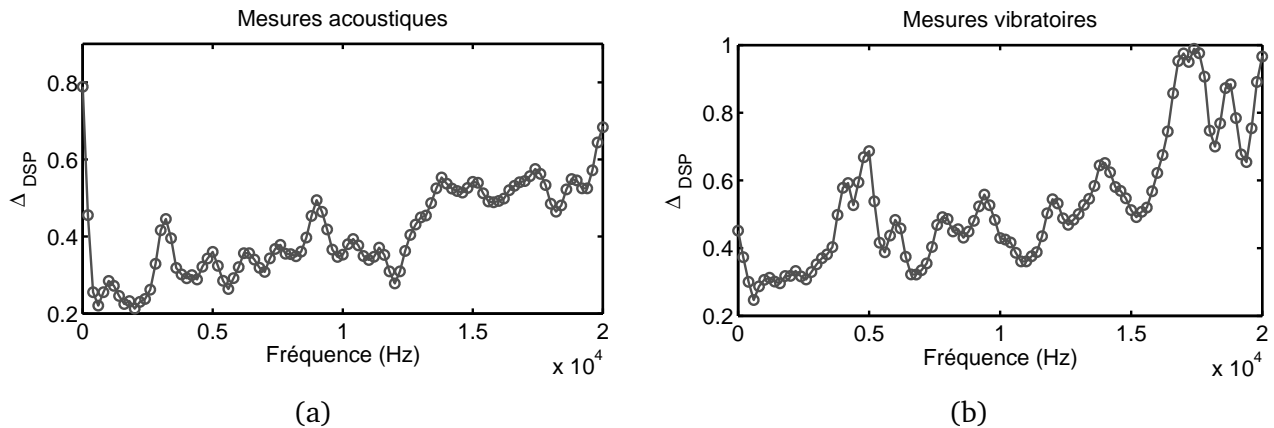


FIGURE 6.2: Calcul des écarts normalisés entre les amplitudes des DSP mesurées en cours de broyage par point fréquentiel, (a) mesures acoustiques et (b) mesures vibratoires.

6.1.2 Evolution des énergies acoustiques et vibratoires

L'évolution des énergies acoustiques et vibratoires dans les bandes fréquentielles retenues est présentée figure 6.3. Les énergies moyennes sur plusieurs salves de chocs (c'est à dire sur plusieurs segments temporels) ainsi que leur écart type sont calculées toutes les heures. Par soucis de lisibilité, les barres d'erreurs ne sont représentées que toutes les cinq heures.

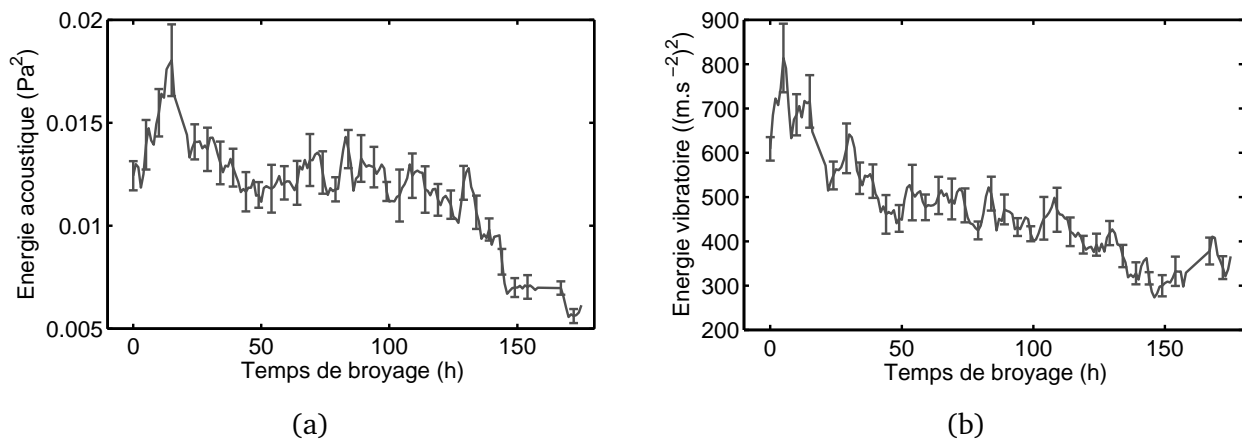


FIGURE 6.3: (a) Energie acoustique durant le broyage (calculée sur la bande fréquentielle [6000 - 18000] Hz). (b) Energie vibratoire durant le broyage (calculée sur la bande fréquentielle [4000 - 16000] Hz).

Ces deux grandeurs présentent une forte augmentation en début de broyage qui s'interrompt lorsqu'elles atteignent chacune une valeur maximale. Ces maxima ne sont toutefois pas obtenus pour les mêmes durées de broyage. Dans le cas des mesures acoustiques la valeur maximale est atteinte après 15 heures de broyage alors que pour les mesures vibratoires elle intervient dès 5h de broyage. Un second pic d'amplitude inférieure au précédent peut toutefois être détecté pour la durée de broyage de 15h.

Au delà de ses maxima, l'énergie acoustique présente une évolution non monotone au cours du broyage. Elle diminue fortement tout d'abord, après 50h de broyage elle se stabilise avec de légères fluctuations et enfin elle présente une seconde diminution après 140h de broyage. L'énergie vibratoire suit une évolution similaire à l'énergie acoustique avec toutefois une légère augmentation à 150h.

La diminution des énergies qui intervient dès 15h de broyage laisse supposer l'intervention d'un mécanisme responsable de l'atténuation des chocs. Les caractérisations morphologiques des poudres broyées sous air du CEA ont rapporté une diminution continue de la taille des particules, du fait des contaminations par les oxydes sur les surfaces des grains, plutôt qu'une augmentation suivie ensuite d'une diminution comme il est annoncé dans la littérature [4]. Les évolutions des énergies pourraient donc être liées à une modification du mouvement global des billes lors de la rotation de la cuve du fait de la diminution de la taille des grains (présence de l'effet de ségrégation) ou bien à une modification de leur propriété élastique induite par les chocs successifs. Une autre explication serait que cet amortissement progressif soit lié à la présence de colmatage des grains de poudre sur les parois de la cuve. L'ouverture de la cuve du broyeur après 176h de broyage révèle en effet la présence de colmatage (figure 6.4). Le suivi de l'énergie acoustique et vibratoire en cours de broyage pourrait donc être soit un indicateur de la présence de colmatage, soit un indicateur de l'évolution de la nature des poudres.

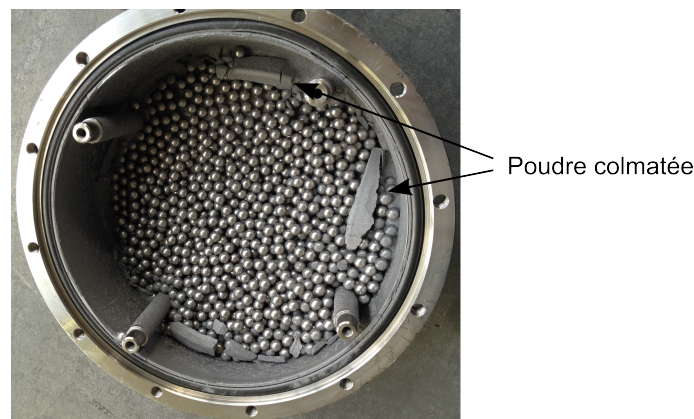


FIGURE 6.4: Photo de la cuve ouverte après 176h de broyage avec présence de colmatage.

De nouvelles mesures réalisées sur un échantillon de poudre obtenu en fin de broyage (176h) et pour lequel le colmatage a été supprimé a permis de répondre en partie à cette question. La figure 6.5 présente la superposition des DSP calculées à partir d'enregistrements réalisés en début de broyage (poudre initiale), en fin de broyage avec la présence de colmatage (poudre broyée 176h + colmatage) et sur l'échantillon de poudre broyée 176h sans colmatage (poudre broyée 176h). Pour les enregistrements acoustiques, cette figure montre une atténuation de l'amplitude de la DSP en présence de colmatage. En revanche, lorsque le colmatage est supprimé et que la poudre a été broyée 176h, l'amplitude augmente sur une plus large bande fréquentielle. Ces observations sont semblables pour les mesures vibratoires bien que la diminution des amplitudes en présence de colmatage soit moins visible.

D'après cette étude, l'évolution de la nature des grains est caractérisée par une augmentation globale de l'amplitude des DSP et donc des énergies acoustiques et vibratoires du signal émis par la cuve. A l'inverse, la présence de colmatage entraîne une diminution de l'amplitude des chocs dans le domaine des hautes fréquences, masquant ainsi les informations utiles quant à l'évolution de la nature des grains. Par ailleurs, la figure 6.5 suggère que l'énergie acoustique est plus sensible

à la présence de colmatage. De plus, l'expérience des opérateurs lors des broyages par broyeurs à boulets a révélé l'existence de la succession de cycles de colmatage et décolmatage. Les fluctuations observées lors de la décroissance des énergies sur la figure 6.3 pourraient donc être liées à la présence de tels cycles.

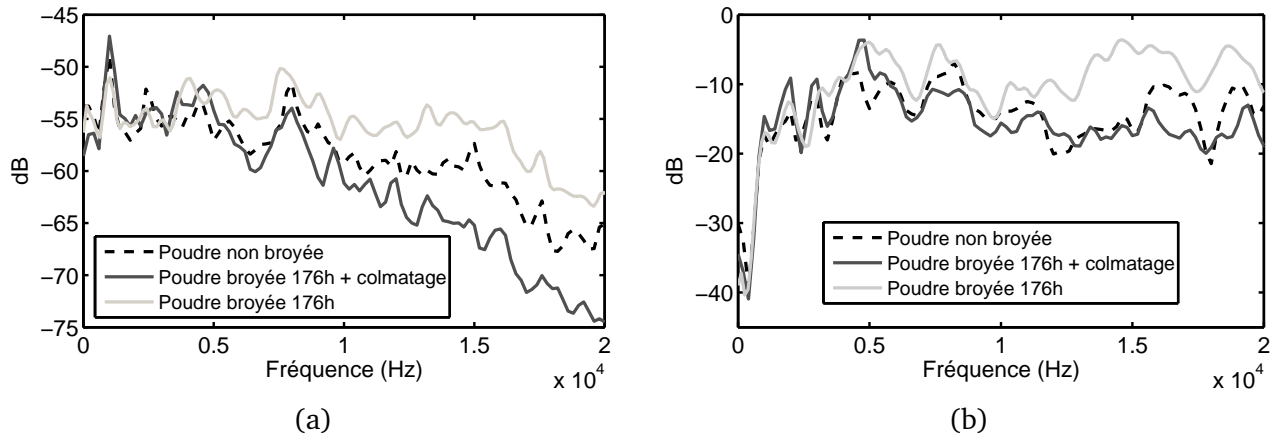


FIGURE 6.5: Densités spectrales de puissance calculées à partir d'enregistrements réalisés en début de broyage (Poudre non broyée), en fin de broyage avec la présence de colmatage (Poudre broyée 176h + colmatage) et lorsque le colmatage a été retiré (Poudre broyée 176h) :

- (a) signal acoustique ;
- (b) signal vibratoire.

6.2 Mesures sur des échantillons de poudre d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage

Pour étudier indépendamment l'influence des variations de la granulométrie des échantillons de poudre en cours de broyage, de nouvelles mesures sont réalisées sur des échantillons de poudre d'acier ODS fournis par Mécachrome et extraits à différentes étapes de broyage (0h, 44h, 88h, 176h et 352h). Les caractéristiques morphologiques des grains (tailles, polydispersité et formes) ont été présentées dans le chapitre 1 (figures 4.2, 1.10 et 1.11.).

Les contenus fréquentiels des signaux mesurés pour les différents échantillons de poudre sont présentés figure 6.6. Ces figures présentent une augmentation de l'amplitude des DSP dès 44h de broyage, que ce soit pour les mesures acoustiques ou vibratoires. La sélection de la bande fréquentielle utile pour le calcul des énergies est réalisée à partir du calcul de l'écart normalisé. Son évolution sur toute la bande fréquentielle efficace des transducteurs est représentée figure 6.7.

D'après la figure 6.7 (a), les écarts entre les amplitudes augmentent progressivement en fonction de la fréquence. Cette évolution est donc semblable à celle qui avait été observée lors des acquisitions en cours de broyage, à ceci près que les valeurs de Δ_{DSP} sont deux fois plus petites. Dans le cas des mesures vibratoires, l'écart est proche de 15% en dessous de 4000 Hz, puis au delà de grandes fluctuations autour de 40% apparaissent. Les bandes fréquentielles utiles qui avaient été sélectionnées pour le calcul des énergies acoustiques et vibratoires lors de l'étude précédente peuvent donc être conservées.

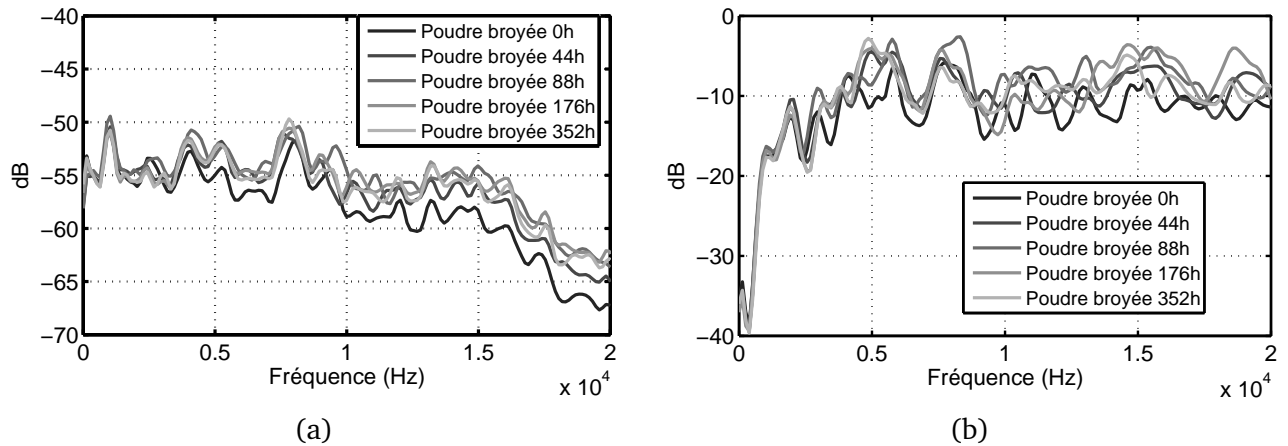


FIGURE 6.6: Densités spectrales de puissance mesurées à la vitesse de 80 tours/min pour des échantillons de poudres d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage :
 (a) signal acoustique ;
 (b) signal vibratoire.

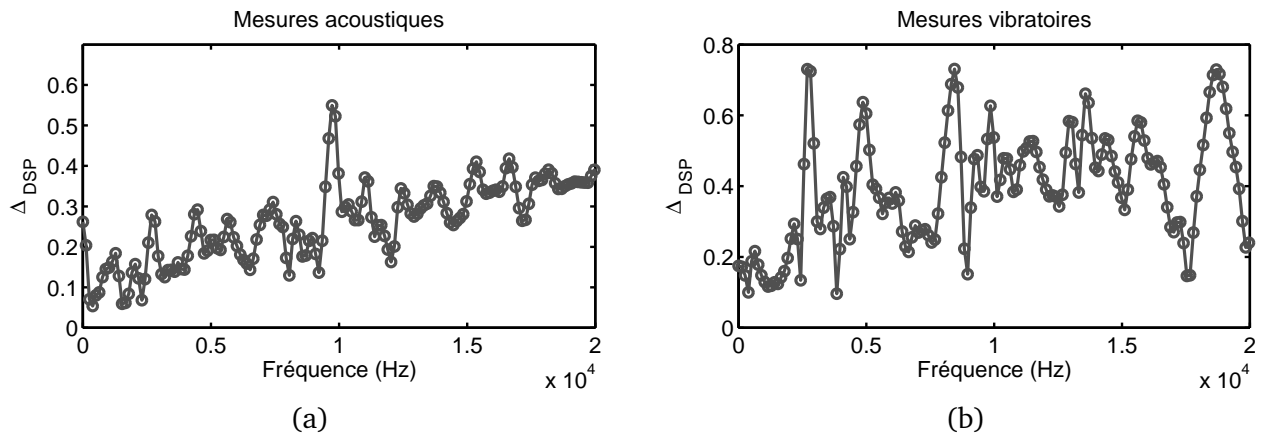


FIGURE 6.7: Calcul des écarts normalisés entre les amplitudes des DSP par points fréquentiels, (a) mesures acoustiques et (b) mesures vibratoires.

Les énergies acoustiques et vibratoires mesurées pour les différents échantillons de poudre sont données figure 6.8. D'après ces figures, le broyage jusqu'à 88h des échantillons de poudre entraîne une augmentation de l'amplitude des signaux acoustiques et vibratoires émis par la cuve du broyeur. Au delà, l'amplitude des vibrations se stabilise pour l'échantillon suivant (176h), puis décroît avec une pente moins importante que celle de la croissance. L'évolution de l'amplitude des signaux acoustiques diffère légèrement des mesures vibratoires en diminuant dès 88h de broyage.

Une augmentation similaire de l'amplitude des vibrations avait été observée lors des mesures réalisées par l'équipe de Behera & al [66]. Ces derniers s'étaient intéressés à l'évolution des vibrations durant une heure de broyage de poudre d'argile, lorsqu'il est réalisé par un broyeur de laboratoire de 90 cm de diamètre. Ils observent une augmentation progressive de l'amplitude des vibrations sur les 25 premières minutes de broyage puis une stabilisation. Selon eux, l'absorption des vibrations est liée à l'énergie transmise au mécanisme de fracture des grains. A mesure que le matériel à broyer se raréfie, les vibrations sont de moins en moins absorbées.

Une telle augmentation des énergies acoustique et vibratoire est également observable sur les échantillons broyés jusqu'à 88h de broyage. Toutefois, l'analyse de la granulométrie des échan-

tillons extraits à différentes étapes de broyage (figure 1.10) témoigne de la succession des mécanismes de déformation et de soudage lorsque la taille augmente en début de broyage, puis de l'intervention progressive du mécanisme de fracture après 88h de broyage lorsque qu'elle diminue. Aussi, l'augmentation des énergies ne peut pas s'expliquer dans le cas des aciers ODS par la présence du mécanisme de fracture. En revanche, cette diminution progressive de l'absorption des chocs par les grains pourrait traduire la présence d'un mécanisme d'érouissage en début de broyage, qui se caractérise par une augmentation progressive de la dureté des grains. Une telle évolution des propriétés élastiques des grains avait été mentionnée dans le cas du procédé de mécano-synthèse [67, 68]. La valeur seuil de l'amplitude des énergies qui peut être observée après 88h de broyage, pourrait être associée à un état proche de la limite d'érouissage des grains, c'est-à-dire que le matériau qui compose les grains a atteint sa limite de plasticité. Les grains ne peuvent alors plus se déformer et sont davantage sujets aux mécanismes de fracture. Au delà, les grains ne sont plus sujets aux déformations mais uniquement au mécanisme de fracture, ce qui dans le cas d'un broyage réel pourrait se caractériser par une diminution des énergies, comme l'a montré l'équipe de Behera & al [66].

Le chapitre précédent a montré qu'à la vitesse de rotation de 80 tours/min, les grandeurs acoustiques et vibratoires étaient influencées par l'énergie cinétique moyenne des billes. Par ailleurs, à cette même vitesse le mouvement des billes est très fortement modifié par l'effet de ségrégation. L'analyse granulométrique présente une augmentation de la polydispersité de l'échantillon broyé 176h et une diminution de la taille moyenne des particules en particulier après 352h de broyage (figures 1.10 et 1.11). Pour ces échantillons, l'effet de ségrégation est donc susceptible d'être davantage présent. En outre, la sensibilité plus marquée des grandeurs acoustiques aux évolutions de l'énergie cinétique moyenne par rapport à l'énergie vibratoire a également été remarquée lors du chapitre précédent. La diminution des énergies et en particulier pour les énergies acoustiques, observée à partir de l'échantillon de 88h, pourrait donc être liée à une modification de l'énergie cinétique des billes, elle même induite par une modification du mouvement global de la charge dans la cuve.

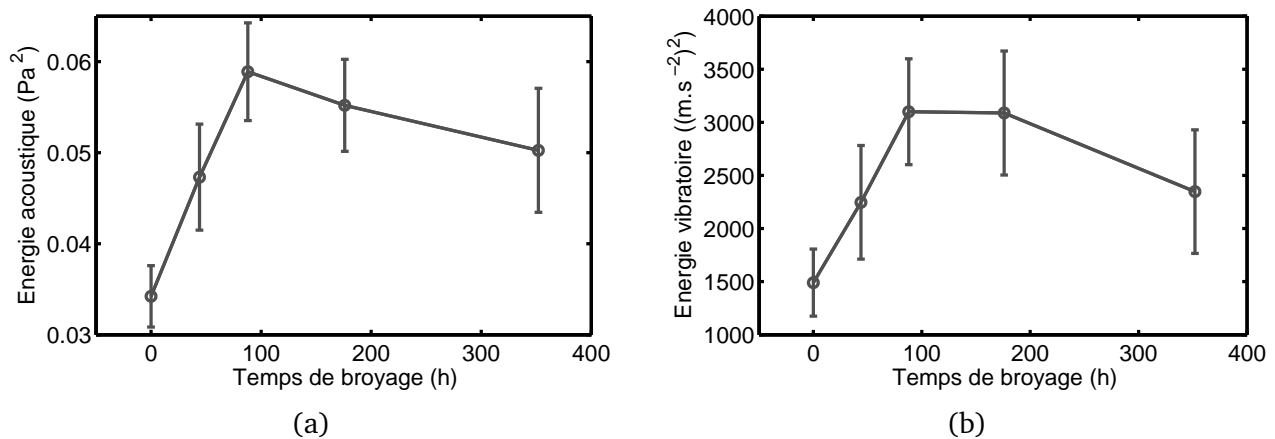


FIGURE 6.8: (a) Énergies acoustiques calculées sur la bande [6000 - 18000] Hz et (b) énergies vibratoires calculées sur la bande [4000 - 16000] Hz pour des échantillons de poudre d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage.

Les études précédentes menées sur l'évolution des grandeurs acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation de la cuve, ont mis en évidence leur forte sensibilité à la ductilité des grains pour les vitesses inférieures à 90 tours/min (en particulier pour les mesures vibratoires) et à leur morphologie pour les vitesses qui sont supérieures. De nouvelles mesures sont donc réalisées

pour observer l'évolution de l'amplitude des émissions acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation, et ce pour les différents échantillons de poudre d'acier ODS (figure 6.9).

Sur la figure 6.9 (b) et pour les vitesses inférieures à 90 tours/min, l'amplitude des vibrations reste maximale pour l'échantillon broyé 88h. Par ailleurs, le classement en amplitude qui avait été observé à la vitesse de 80 tours/min (figure 6.8) est conservé pour les autres vitesses excepté à 60 tours/min. L'hypothèse selon laquelle les grains subissent un renforcement progressif de la dureté jusqu'à 88h de broyage est donc plausible puisque l'atténuation des vibrations est minimale pour cet échantillon, et ce sur toute la bande de vitesse pour laquelle les mesures vibratoires sont particulièrement sensibles à l'amortissement induit par la présence de la poudre (chapitre 5).

L'échantillon de poudre initiale (broyée 0h) atteint un premier maxima à 60 tours/min alors que les autres échantillons présentent un maxima à 70 tours/min. Par ailleurs, les seconds maxima observés pour les vitesses supérieures à 90 tours/min ne sont pas atteints pour les mêmes vitesses de rotation. Ces différences suggèrent une modification du mouvement de la charge à l'intérieur de la cuve au cours du broyage. Les caractérisations des échantillons données au chapitre 1 font état d'une modification de la morphologie (taille, polydispersité et forme) en fonction du temps de broyage. Il a également été montré que l'effet de ségrégation est d'autant plus présent et donc influent sur le mouvement des billes à mesure que la taille des grains de poudre diminue (décalage des maxima vers la droite). On pourrait donc s'attendre à ce que les vitesses pour lesquelles les maxima sont atteints suivent l'évolution de la taille des grains. Or, la figure 6.10 ne décrit pas une telle tendance. Cela suggère l'influence d'autres caractéristiques des grains sur le mouvement global de la charge. La forme des grains, plus aplatie pour certains échantillons, pourrait par exemple être susceptible de limiter l'effet de glissement de la couche intermédiaire que forme les grains de poudre aux fortes vitesses et par conséquent modifier le mouvement des billes (chapitre 5).

6.3 Conclusion

La première étape du travail qui consistait à réaliser une écoute acoustique et vibratoire le long d'un broyage de 176h sous air a montré la sensibilité des grandeurs acoustiques et vibratoires au mécanisme de colmatage de la poudre sur les parois de la cuve, en particulier pour l'énergie acoustique. Ainsi, le colmatage est le phénomène principal expliquant les évolutions des énergies acoustique et vibratoire mesurées. Sa présence se traduit par une diminution de l'amplitude du signal acoustique et vibratoire.

En outre, les mesures réalisées sur des échantillons de poudres d'acier ODS broyées par Mécachrome et extraits à différentes étapes de broyage, décrivent une augmentation de l'amplitude des vibrations et de l'émission acoustique jusqu'à environ 88h de broyage. Cette augmentation a pu être corrélée par un renforcement progressif de la dureté des grains sous l'effet des déformations plastiques [67, 68, 66]. Au delà de 88h de broyage, les énergies acoustiques et vibratoires se stabilisent et/ou diminuent. Ce temps de broyage seuil pourrait être lié à l'obtention d'un état limite de dureté des grains au delà duquel les mécanismes de déformation plastique des grains s'interrompent au profit des mécanismes de fracture. [67, 68].

Les évolutions des énergies acoustique et vibratoire en fonction de la vitesse de rotation du broyeur et pour les échantillons de poudre extraits à différentes étapes de broyage ont également été observées. Ces mesures révèlent qu'en dessous de 84 tours/min les énergies sont principalement influencées par la ductilité du matériel à broyer. Au delà, ce sont principalement les évolutions de la taille des grains qui influencent les grandeurs acoustiques et vibratoires, notamment par le biais de l'effet de ségrégation. Les interprétations quant aux variations de la granulométrie des grains en cours de broyage par les écoutes acoustiques et vibratoires sont néanmoins délicates, en partie à cause des variations de la forme des grains. En effet, la non-sphéricité des grains complexifie

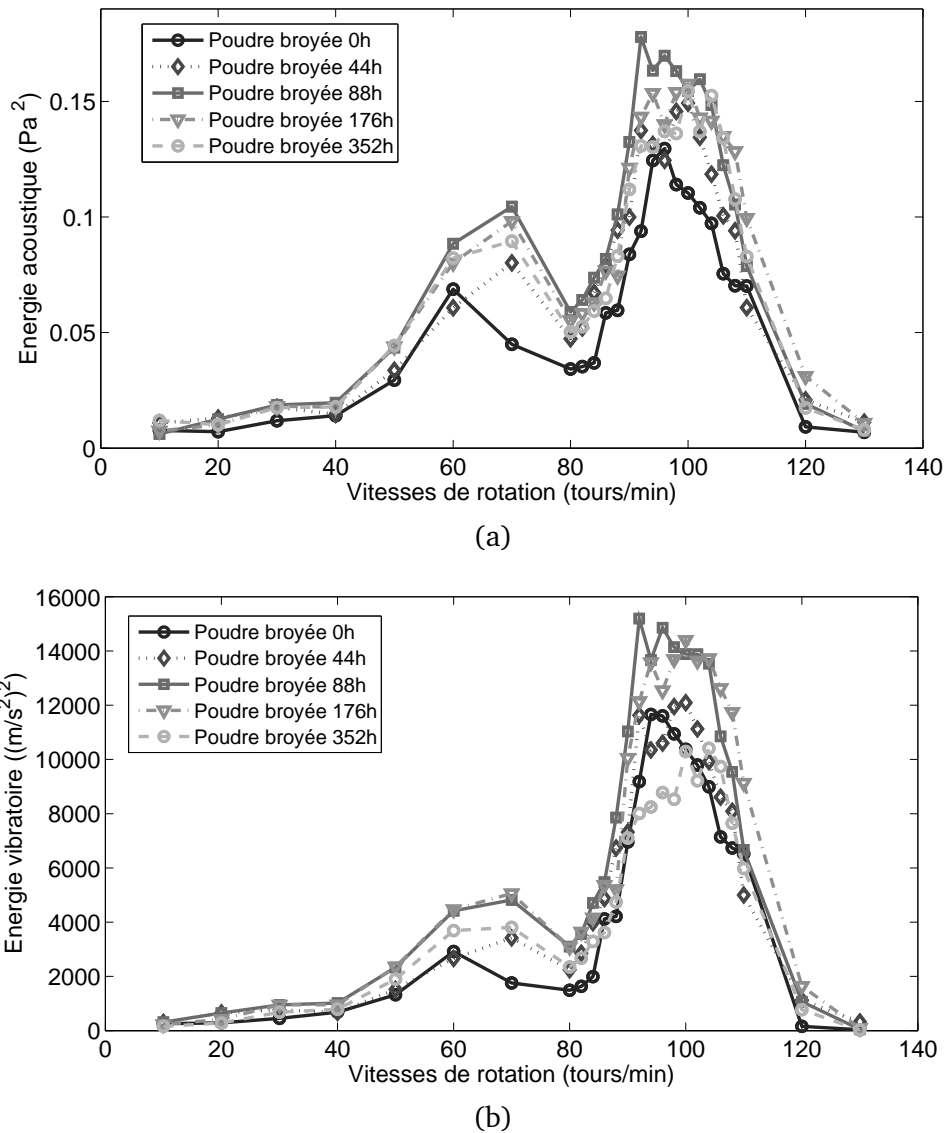


FIGURE 6.9: (a) Energies acoustiques calculées sur la bande fréquentielle 2000 Hz à 18000 Hz et (b) vibratoires calculées sur la bande fréquentielle 4000 Hz à 18000 Hz pour des échantillons de poudres d'acier ODS extraits à différentes étapes de broyage.

les mécanismes induits par l'effet de ségrégation observés précédemment, tel que le décalage des maxima des énergies acoustique et vibratoire vers des vitesses de rotation plus importantes lorsque la taille des grains diminue.

Enfin, d'après la figure 6.9, les écarts de variation des amplitudes entre les différents échantillons et pour une même vitesse de rotation sont plus importants pour les vitesses comprises entre 60 tours/min et 80 tours/min. Il pourrait être donc envisagé de réaliser des écoutes à des vitesses inférieures à 80 tours/min, en cours de broyage, pour caractériser la ductilité des grains et donc identifier l'état d'équilibre de dureté des grains.

Par ailleurs, dans leur travaux, Abdellaoui & *al* mentionnent l'existence d'un autre état d'équilibre pour lequel la microstructure et l'état structural des grains se stabilisent [67, 68]. Lorsque cet état est atteint, l'absorption par les grains de l'énergie élastique transmise lors des chocs devient impossible, le processus de broyage ne peut alors plus provoquer les mécanismes de fracture et de

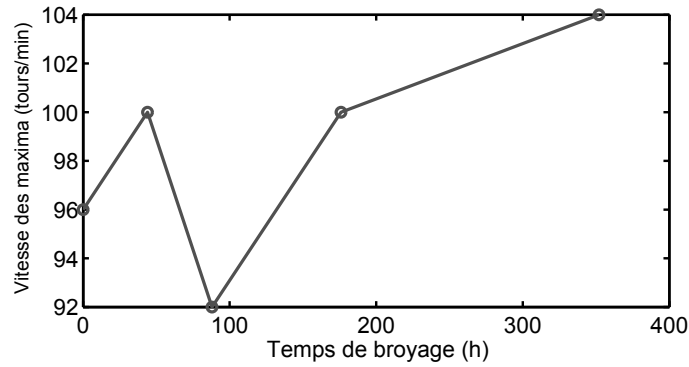


FIGURE 6.10: Vitesses de rotation correspondant aux maxima d'énergie acoustique ou vibratoire obtenus pour les poudres extraites à différents temps de broyage.

déformation. Lors d'une écoute acoustique et vibratoire, un tel état pourrait se traduire par une stabilisation de l'amplitude des énergies acoustique et vibratoire, au delà d'une certaine durée de broyage. La détection d'un tel état serait susceptible d'aider au suivi et au contrôle du procédé de mécano-synthèse, puisque qu'il correspond à un état au delà duquel le broyage ne participe plus à l'évolution de la microstructure des grains.

Pour conclure, en terme d'application pour le suivi du processus de broyage par écoute acoustique et vibratoire, il peut être envisagé comme procédure :

1. arrêt de la machine ;
2. décolmatage de la cuve si besoin (sous forme de vibrations par exemple) ;
3. rotation à la vitesse présentant la meilleure sensibilité à dureté des grains de poudre (70 tours/min dans la cas du broyeur installé au LAUM) ;
4. enregistrement et calcul des indicateurs acoustique et vibratoire pour le suivi de la nature des grains ;
5. reprise du broyage à la vitesse de rotation préconisée.

Puis de répéter périodiquement ces étapes durant le broyage.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Ce travail avait pour objectif de mettre en oeuvre une instrumentation d'un broyeur à boulets afin d'optimiser, de suivre et de contrôler le processus de mécano-synthèse, qui a lieu en cours de broyage, au moyen de mesures acoustiques (hautes et moyennes fréquences) et vibratoires (basses fréquences).

Un travail de recherche bibliographique portant sur le processus de mécano-synthèse ainsi que sur le fonctionnement du broyeur à boulets a été réalisé en premier lieu. Les études traitant du processus de mécano-synthèse font état de l'évolution des caractéristiques morphologiques (taille des grains, distribution de leur taille, forme) et microstructurales de la poudre, qui sont la conséquence de la succession des mécanismes de soudure et de fragmentation. Les évolutions de la morphologie des grains et des mécanismes de déformation sont donc apparues comme étant des informations clé pour le suivi de la mécano-synthèse. Par ailleurs, le recensement des paramètres de broyages influents sur l'état structural final des matériaux a mis en lumière l'importance de la vitesse de rotation de la cuve. Dans le cas d'un broyeur à boulets, c'est la vitesse de rotation qui pilote le mouvement des billes, la fréquence des chocs, leur niveau d'énergie et par conséquent les mécanismes de déformations mis en oeuvre (déformation, fracture ou bien usure en cas de faible amplitude des chocs). L'optimisation du processus de broyage nécessite donc en premier lieu de définir une vitesse de rotation optimale.

La première partie du travail de thèse a consisté en l'élaboration d'une méthode de caractérisation ultrasonore pour le suivi des caractéristiques morphologiques des poudres métalliques. Cette méthode consiste en un sondage ultrasonore par transmission d'une tranche de poudre métallique introduite dans une cellule rigide sous faible pression de confinement. Une évolution non-monotone des paramètres élastiques de l'onde longitudinale a été observée pour des échantillons de poudres extraits à différentes étapes de broyage. En assimilant les poudres métalliques à des milieux granulaires, l'interprétation des mesures s'est basée sur la théorie des milieux effectifs, qui décrit l'élasticité des milieux granulaires et qui quantifie l'influence relative des paramètres du milieu (pression de confinement, élasticité des matériaux qui constitue les grains et morphologie des grains). Une étude paramétrique portant sur l'expression de la vitesse de propagation de l'onde longitudinale donnée par la théorie des milieux effectifs et dans le cas d'un milieu granulaire faiblement confiné, a permis de corrélérer l'évolution des paramètres élastiques mesurés avec l'évolution des caractéristiques morphologiques des grains de poudre (non sphéricité et polydispersité) extraites à différentes étapes de broyage. Pour étudier l'influence de la polydispersité sur les paramètres élastiques de l'onde et pour s'affranchir de la non-sphéricité que présentent les grains de poudre, une seconde étude a été menée sur des échantillons de billes en verre de forme sphérique et de polydispersités différentes. Les mesures obtenues ont montré la forte influence de la polydispersité du milieu sur l'évolution du module élastique de compression, de telle sorte que la valeur de ce dernier est d'autant plus importante que la polydispersité est élevée. Cette étude a permis de

corrélés, de manière certaine, l'évolution non-monotone des paramètres élastiques de l'onde longitudinale avec l'évolution de la polydispersité et de la non-sphéricité des grains de poudre en cours de broyage.

Le chapitre 5 visait à élaborer une méthode permettant l'optimisation de la vitesse de rotation du broyeur, en s'appuyant sur des indicateurs acoustique et vibratoire pouvant être corrélés avec le mouvement des billes. La première étape du travail a consisté en la mesure de l'émission sonore et vibratoire de la cuve en fonction de la vitesse de rotation, puis en la comparaison de ces évolutions avec celle du mouvement des billes filmé par caméra rapide. Ces mesures, tout d'abord réalisées dans le cas d'une configuration de remplissage de cuve composée uniquement de billes, ont démontré la forte corrélation de l'évolution des énergies acoustique et vibratoire avec l'évolution de l'énergie cinétique moyenne des billes avant impact et du nombre de billes en chute libre par quart de tour. Ainsi, les maxima des énergies acoustique et vibratoire correspondent à un maximum de l'énergie cinétique moyenne et du nombre de billes en chute libre. Pour une configuration de remplissage réelle, c'est-à-dire composée de billes et de poudre, les évolutions des énergies acoustique et vibratoire sont modifiées, ce qui traduit une modification du mouvement des billes. Cette modification du mouvement des billes est d'autant plus marquée que la granulométrie des poudres diminue.

De plus, lors de la comparaison des évolutions de l'amplitude des énergies acoustique et vibratoire normalisée avec leur maximum, une atténuation plus importante des vibrations sur une certaine gamme de vitesse a été observée. Cette zone a été associée à un mouvement des billes où une majorité d'entre elle impacte la charge de billes située au niveau de la base de la cuve et où la poudre est principalement localisée. L'atténuation est liée à la présence de la poudre qui absorbe une partie des chocs. Ainsi, dans cette gamme de vitesse, une majorité des billes participent au broyage. La diminution de cette proportion s'associe à une diminution de la différence entre les amplitudes normalisées des énergies acoustiques et vibratoires.

En supposant la vitesse optimale de rotation liée à une énergie cinétique importante provenant des impacts de la majorité des billes participant au broyage, cette vitesse peut donc être identifiée de façon complémentaire par les mesures acoustiques et vibratoires.

Enfin, l'objectif du chapitre 6 était de suivre le processus de broyage par des mesures acoustiques et vibratoires et de conclure quant à l'influence de l'évolution de la nature des poudres et de la présence des différents mécanismes sur l'évolution des grandeurs acoustiques et vibratoires. En cours de broyage et sous l'effet des impacts successifs, les grains subissent un mécanisme d'écrasement qui s'associe à une augmentation progressive de l'amplitude des énergies acoustique et vibratoire. Au delà d'une certaine durée de broyage, les énergies acoustique et vibratoire atteignent un seuil qui s'explique par une limite de dureté des grains de poudre. Une fois cet état stable atteint, les grains ne sont plus en mesure de se déformer et le mécanisme de fracture prédomine. De plus, durant les broyages réalisés sous air par le broyeur instrumenté, les énergies acoustique et vibratoire se sont montrées sensibles à la présence du mécanisme de colmatage de la poudre sur les parois de la cuve. Cette présence du mécanisme de colmatage s'accompagne d'une diminution de l'amplitude des grandeurs acoustiques et vibratoires.

Plusieurs perspectives sont à envisager à l'issue de ce travail.

Les sondages ultrasonores sur les échantillons de billes en verre ont démontré l'influence de la polydispersité sur le module élastique de compression. D'après la théorie des milieux effectifs et compte tenu de la configuration des assemblages (faible pression de confinement) et de la faible

variation de la compacité entre les différents échantillons, cette évolution du module élastique serait liée à la dépendance du nombre de coordination Z avec la polydispersité. Or des simulations ont relevées [30, 50] une faible variation de Z en fonction de la polydispersité. Ces résultats expérimentaux suggèrent donc la nécessité de prendre en compte des moments d'ordre supérieur dans le nombre de contacts par bille (plutôt que Z le nombre de contacts moyen par billes) dans l'expression donnée par la théorie des milieux effectifs. Par ailleurs, dans ces travaux expérimentaux la forme de la distribution de la taille des grains n'a pas été considérée alors que ce paramètre pourrait être susceptible d'avoir une influence sur les modules élastiques de compression mesurés. Ces pistes pourraient être envisagées lors de travaux expérimentaux et numériques futurs.

En terme d'application, cette méthode de caractérisation ultrasonore externe pourrait être transférée à une méthode in-situ sur le broyeur à boulets en modifiant le design de la cuve. Une encoche amovible dans laquelle la poudre s'introduirait pourrait être aménagée de manière à effectuer des sondages ultrasonores réguliers en cours de broyage.

De nouveaux broyages sont à envisager, avec des vitesses de rotation situées dans les gammes de vitesses préconisées par les mesures acoustiques et vibratoires, pour étudier l'influence du mouvement des billes, la fréquence des impacts ainsi que leur énergie sur les matériaux finaux.

En outre, les signaux vibratoires enregistrés par l'accéléromètre 2 (figure 5.2 (b)) qui n'ont pas encore été exploités, pourraient permettre de quantifier une "densité d'impacts" de billes participant au broyage (impacts amortis) et de celles n'y participant pas (impacts non amortis). Une telle distinction entre les impacts pourrait se faire par le biais de descripteurs définis au préalable. L'une des difficultés pouvant apparaître lors de la définition des descripteurs, serait de différencier les signaux caractérisant les impacts de ceux caractérisant les frottements entre billes et grains de poudre présents également au niveau de la charge de billes située au niveau de la base de cuve. La quantification de cette "densité d'impacts" et éventuellement d'une "densité de frottements" si cela est possible serait susceptible de donner des indications supplémentaires à propos de l'influence des mécanismes de frottements et de chocs sur les matériaux ODS finaux.

Enfin, les résultats issus de ce travail de thèses pourraient être déployés à des broyeurs industriels de dimensions supérieures. Bien entendu, ce transfert de technologie nécessitera de réétudier si les comportements observés ici sont les mêmes.

RÉFÉRENCES

- [1] Shigeharu Ukai and Masayuki Fujiwara. Perspective of ODS alloys application in nuclear environments. *Journal of Nuclear Materials*, 307–311, Part 1 :749–757, December 2002.
- [2] M. Laurent-Brocq, F. Legendre, M.-H. Mathon, A. Mascaro, S. Poissonnet, B. Radiguet, P. Pareige, M. Loyer, and O. Leseigneur. Influence of ball-milling and annealing conditions on nano-cluster characteristics in oxide dispersion strengthened steels. *Acta Materialia*, 60(20) :7150–7159, December 2012.
- [3] John Richard Harris. *Mathematical Modelling of Mechanical Alloying*. PhD, University of Nottingham, 2002.
- [4] C. Suryanarayana. Mechanical alloying and milling. *Progress in Materials Science*, 46(1–2) :1–184, January 2001.
- [5] D. Maurice and T. H. Courtney. Modeling of mechanical alloying : Part i. deformation, coalescence, and fragmentation mechanisms. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 25(1) :147–158, December 1994.
- [6] J. S. Benjamin and T. E. Volin. The mechanism of mechanical alloying. *Metallurgical Transactions*, 5(8) :1929–1934, August 1974.
- [7] Paul W Cleary. Charge behaviour and power consumption in ball mills : sensitivity to mill operating conditions, liner geometry and charge composition. *International Journal of Mineral Processing*, 63(2) :79–114, August 2001.
- [8] H. J. Steiner. Characterization of laboratory-scale tumbling mills. *International Journal of Mineral Processing*, 44–45 :373–382, March 1996.
- [9] Hiroshi Watanabe. Critical rotation speed for ball-milling. *Powder Technology*, 104(1) :95–99, August 1999.
- [10] Seong-Hyeon Hong and Byoung-Kee Kim. Effects of lifter bars on the ball motion and aluminum foil milling in tumbler ball mill. *Materials Letters*, 57(2) :275–279, December 2002.
- [11] L.A. Vermeulen. The lifting action of lifter bars in rotary mills. *J. S. Afr. Inst. Min. Metall.*, 85(2) :51–63, February 1985.
- [12] O. Hlungwani, J. Rikhotso, H. Dong, and M. H. Moys. Further validation of DEM modeling of milling : effects of liner profile and mill speed. *Minerals Engineering*, 16(10) :993–998, October 2003.
- [13] R. E. McIvor. Effects of speed and liner configuration on ball mill performance. *Mining Eng.*, pages 617–622, June 1983.
- [14] Esther Simondon. Caractérisation physico-chimiques de poudres d’acier ods au cours de leur mécano-synthèse. Stage de deuxième année d’ingénieur au CEA de Saclay (2014).

- [15] Pierre Philippe. *Etude théorique et expérimentale de la densification des milieux granulaires*. PhD thesis, Rennes 1, January 2002.
- [16] P. Philippe and D. Bideau. Granular medium under vertical tapping : Change of compaction and convection dynamics around the liftoff threshold. *Physical Review Letters*, 91(10) :104302, September 2003.
- [17] Bruno Andreotti, Yoel Forterre, and Olivier Pouliquen. *Les milieux granulaires : Entre fluide et solide*. EDP Sciences, December 2012.
- [18] V. Tournat and V. E. Gusev. Acoustics of unconsolidated “model” granular media : An overview of recent results and several open problems. *Acta Acustica united with Acustica*, 96(2) :208–224, March 2010.
- [19] Hernán A. Makse, Nicolas Gland, David L. Johnson, and Lawrence Schwartz. Granular packings : Nonlinear elasticity, sound propagation, and collective relaxation dynamics. *Physical Review E*, 70(6) :061302, December 2004.
- [20] J.-B. Legland, V. Tournat, O. Dazel, A. Novak, and V. Gusev. Linear and nonlinear biot waves in a noncohesive granular medium slab : Transfer function, self-action, second harmonic generation. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 131(6) :4292–4303, 2012.
- [21] X. Jia, C. Caroli, and B. Velicky. Ultrasound propagation in externally stressed granular media. *Physical Review Letters*, 82(9) :1863–1866, March 1999.
- [22] K. L. Johnson and Kenneth Langstreth Johnson. *Contact Mechanics*. Cambridge University Press, August 1987.
- [23] Aurélien Merkel. *Theoretical and experimental study of the acoustic wave propagation within three-dimensional granular phononic crystals*. PhD thesis, Université du Maine, December 2010.
- [24] Hernán A. Makse, Nicolas Gland, David L. Johnson, and Lawrence M. Schwartz. Why effective medium theory fails in granular materials. *Physical Review Letters*, 83(24) :5070–5073, December 1999.
- [25] Patrick Richard, Mario Nicodemi, Renaud Delannay, Philippe Ribière, and Daniel Bideau. Slow relaxation and compaction of granular systems. *Nature Materials*, 4(2) :121–128, February 2005.
- [26] M. Reza Shaebani, Mahyar Madadi, Stefan Luding, and Dietrich E. Wolf. Influence of polydispersity on micromechanics of granular materials. *Physical Review E*, 85(1) :011301, January 2012.
- [27] Ivana Agnolin and Jean-Noël Roux. Internal states of model isotropic granular packings. III. elastic properties. *Physical Review E*, 76 :061304, December 2007.
- [28] Fatih Göncü and Stefan Luding. Effect of particle friction and polydispersity on the macroscopic stress–strain relations of granular materials. *Acta Geotechnica*, pages 1–15.
- [29] Takashi Matsushima and Ching S. Chang. Quantitative evaluation of the effect of irregularly shaped particles in sheared granular assemblies. *Granular Matter*, 13(3) :269–276, June 2011.
- [30] Duc-Hanh Nguyen, Emilien Azéma, Farhang Radjai, and Philippe Sornay. Effect of size polydispersity versus particle shape in dense granular media. *Physical Review E*, 90(1) :012202, July 2014.
- [31] Matthias Sperl. Experiments on corn pressure in silo cells – translation and comment of janssen’s paper from 1895. *Granular Matter*, 8(2) :59–65, May 2006.

- [32] Loic Vanel, Daniel Howell, D. Clark, R. P. Behringer, and Eric Clément. Memories in sand : Experimental tests of construction history on stress distributions under sandpiles. *Physical Review E*, 60(5) :R5040–R5043, November 1999.
- [33] James B. Knight, Christopher G. Fandrich, Chun Ning Lau, Heinrich M. Jaeger, and Sidney R. Nagel. Density relaxation in a vibrated granular material. *Physical Review E*, 51(5) :3957–3963, May 1995.
- [34] Patrick Richard, Pierre Philippe, Fabrice Barbe, Stéphane Bourlès, Xavier Thibault, and Daniel Bideau. Analysis by x-ray microtomography of a granular packing undergoing compaction. *Physical Review E*, 68(2) :020301, August 2003.
- [35] V. Magnanimo, L. La Ragione, J. T. Jenkins, P. Wang, and H. A. Makse. Characterizing the shear and bulk moduli of an idealized granular material. *EPL (Europhysics Letters)*, 81(3) :34006, February 2008.
- [36] S. Domenico. Elastic properties of unconsolidated porous sand reservoirs. *GEOPHYSICS*, 42(7) :1339–1368, December 1977.
- [37] Daniel M. Mueth, Heinrich M. Jaeger, and Sidney R. Nagel. Force distribution in a granular medium. *Physical Review E*, 57(3) :3164–3169, March 1998.
- [38] J. Michael Erikson, Nathan W. Mueggenburg, Heinrich M. Jaeger, and Sidney R. Nagel. Force distributions in three-dimensional compressible granular packs. *Physical Review E*, 66(4) :040301, October 2002.
- [39] Claude Inserra. *Caractérisation de la compaction granulaire par des méthodes acoustiques linéaires et non linéaires*. PhD thesis, Université du Maine, 2007.
- [40] Jean-Baptiste Legland. *Caractérisation par acoustique non linéaire des effets de vieillissement dans les milieux granulaires non cohésifs et désordonnés*. PhD thesis, Université du Maine, May 2012.
- [41] X. Jia. Codalike multiple scattering of elastic waves in dense granular media. *Physical Review Letters*, 93(15) :154303, October 2004.
- [42] Olivier Dazel and V. Tournat. Nonlinear biot waves in granular media. *Physics Procedia*, 3(1) :451–456, January 2010.
- [43] John Valenza, Chaur-Jian Hsu, Rohit Ingale, Nicolas Gland, Hernán A. Makse, and David Linton Johnson. Dynamic effective mass of granular media and the attenuation of structure-borne sound. *Physical Review E*, 80(5) :051304, November 2009.
- [44] Th. Brunet, X. Jia, and P. Mills. Mechanisms for acoustic absorption in dry and weakly wet granular media. *Physical Review Letters*, 101(13) :138001, September 2008.
- [45] Mika M. Kohonen, Dimitrios Geromichalos, Mario Scheel, Christof Schier, and Stephan Herminghaus. On capillary bridges in wet granular materials. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 339(1–2) :7–15, August 2004.
- [46] Philippe Ribière, Patrick Richard, Renaud Delannay, and Daniel Bideau. Importance of convection in the compaction mechanisms of anisotropic granular media. *Physical Review E*, 71(1) :011304, January 2005.
- [47] C. Inserra, V. Tournat, and V. Gusev. Characterization of granular compaction by nonlinear acoustic resonance method. *Applied Physics Letters*, 92(19) :191916–191916–3, 2008.
- [48] Y. Jiang and M. Liu. Incremental stress-strain relation from granular elasticity : Comparison to experiments. *Physical Review E*, 77 :021306, February 2008.

- [49] Z. Peng L. Fu S. Song Q. Sun M. Mayer Y. Jiang, H. Zheng and M. Liu. Expression for the granular elastic energy. *Physical Review E*, 85 :051304, May 2012.
- [50] R. P. Zou, X. Bian, D. Pinson, R. Y. Yang, A. B. Yu, and P. Zulli. Coordination number of ternary mixtures of spheres†. *Particle & Particle Systems Characterization*, 20(5) :335–341, 2003.
- [51] Aleksandar Donev, Robert Connelly, Frank H. Stillinger, and Salvatore Torquato. Underconstrained jammed packings of nonspherical hard particles : Ellipses and ellipsoids. *Physical Review E*, 75(5) :051304, May 2007.
- [52] A. Castellanos. The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders. *Advances in Physics*, 54(4) :263–376, June 2005.
- [53] M. A. S. Quintanilla, A. Castellanos, and J. M. Valverde. Correlation between bulk stresses and interparticle contact forces in fine powders. *Physical Review E*, 64(3) :031301, August 2001.
- [54] C. Voivret, F. Radjaï, J.-Y. Delenne, and M. S. El Youssoufi. Space-filling properties of polydisperse granular media. *Physical Review E*, 76(2) :021301, August 2007.
- [55] C. Voivret, F. Radjaï, J.-Y. Delenne, and M. S. El Youssoufi. Multiscale force networks in highly polydisperse granular media. *Physical Review Letters*, 102(17) :178001, April 2009.
- [56] B. K. Mishra and Raj K. Rajamani. The discrete element method for the simulation of ball mills. *Applied Mathematical Modelling*, 16(11) :598–604, November 1992.
- [57] Paul W. Cleary and Rob D. Morrison. Understanding fine ore breakage in a laboratory scale ball mill using DEM. *Minerals Engineering*, 24(3–4) :352–366, February 2011.
- [58] M. H. Wang, R. Y. Yang, and A. B. Yu. DEM investigation of energy distribution and particle breakage in tumbling ball mills. *Powder Technology*, 223 :83–91, June 2012.
- [59] M. S. Powell and A. T. McBride. A three-dimensional analysis of media motion and grinding regions in mills. *Minerals Engineering*, 17(11–12) :1099–1109, November 2004.
- [60] Yigen Zeng and E. Forssberg. Monitoring grinding parameters by vibration signal measurement - a primary application. *Minerals Engineering*, 7(4) :495–501, April 1994.
- [61] Yigen Zeng and K. S. E. Forssberg. Multivariate statistical analysis of vibration signals from industrial scale ball grinding. *Minerals Engineering*, 8(4–5) :389–399, April 1995.
- [62] Zhi-gang Su, Pei-hong Wang, Xiang-jun Yu, and Zhen-zhong Lv. Experimental investigation of vibration signal of an industrial tubular ball mill : Monitoring and diagnosing. *Minerals Engineering*, 21(10) :699–710, September 2008.
- [63] Gangquan Si, Hui Cao, Yanbin Zhang, and Lixin Jia. Experimental investigation of load behaviour of an industrial scale tumbling mill using noise and vibration signature techniques. *Minerals Engineering*, 22(15) :1289–1298, December 2009.
- [64] Peng Huang, Min-ping Jia, and Bing-lin Zhong. Investigation on measuring the fill level of an industrial ball mill based on the vibration characteristics of the mill shell. *Minerals Engineering*, 22(14) :1200–1208, November 2009.
- [65] Jian Tang, Li-jie Zhao, Jun-wu Zhou, Heng Yue, and Tian-you Chai. Experimental analysis of wet mill load based on vibration signals of laboratory-scale ball mill shell. *Minerals Engineering*, 23(9) :720–730, August 2010.
- [66] B. Behera, B. K. Mishra, and C. V. R. Murty. Experimental analysis of charge dynamics in tumbling mills by vibration signature technique. *Minerals Engineering*, 20(1) :84–91, January 2007.

-
- [67] M. Abdellaoui and E. Gaffet. A mathematical and experimental dynamical phase diagram for ball-milled ni₁₀zr₇. *Journal of Alloys and Compounds*, 209(1–2) :351–361, July 1994.
- [68] M. Abdellaoui and E. Gaffet. The physics of mechanical alloying in a modified horizontal rod mill : Mathematical treatment. *Acta Materialia*, 44(2) :725–734, February 1996.
- [69] P. W. Cleary. Predicting charge motion, power draw, segregation and wear in ball mills using discrete element methods. *Minerals Engineering*, 11(11) :1061–1080, November 1998.

THÈSE DE DOCTORAT

Laurianne BARGUET

Contrôle Acoustique et Vibratoire de la mécano-synthèse des matériaux composites à matrice métallique nanostructurés

Acoustic and vibration control of the mechanical alloying of Oxide Dispersion Strengthened steel powders

Résumé

Lors de la synthèse des aciers ODS, la première étape consiste à réaliser un broyage actif, appelé mécano-synthèse, entre les matériaux de départ qui sont la poudre métallique et les renforts d'oxyde. Ce procédé peut se réaliser au moyen d'un broyeur à boulets, constitué d'une cuve cylindrique à l'intérieur de laquelle des billes en acier sont introduites. Le broyage résulte des combinaisons de chocs entre billes, poudre et paroi de la cuve, ce qui conduit à une évolution de la taille, de leur forme et de leur polydispersité. La première partie de cette thèse s'est attachée à élaborer un moyen de caractérisation de la poudre par des mesures ultrasonores. Une méthode qui consiste à sonder un échantillon de poudre métallique pour la mesure des paramètres acoustiques s'est avérée être adaptée pour la qualification de la poudre métallique en cours de broyage. Une dépendance des paramètres acoustiques avec les caractéristiques morphologiques du milieu a également été mise en évidence pour des échantillons granulaires. Dans une deuxième partie, l'optimisation du procédé par l'identification de la vitesse optimale de rotation de la cuve est recherchée dans un premier temps. Une mise en parallèle des signaux acoustiques et vibratoires en fonction de la vitesse de rotation de la cuve avec le mouvement des billes, montre que les énergies acoustique et vibratoire sont des indicateurs pouvant conduire à la vitesse de rotation optimale. Puis, il est montré comment des mesures acoustiques et vibratoires durant un broyage permettent de caractériser l'évolution de la nature des poudres et d'identifier la présence de colmatage de la poudre sur les parois de la cuve.

Mots clés

Mécano-synthèse, poudre métallique, broyeur à boulets, mesures ultrasonores, mesures acoustiques, mesures vibratoires, aciers ODS

Abstract

During the ODS steel (Oxide Dispersion Strengthened) synthesis, the first stage consists in an active milling between original materials, which are metallic powder and oxide to obtain reinforced micro/nanoscale dispersions. This process, known as mechanical alloying, could be realized by balls milling composed by a cylindrical tank rotating around its main axis, within which steel beads are introduced. The grinding results from different combinations of collisions between beads and powders on the tank walls, that lead to morphological grain powder evolution (grain size and shape). The first part of this thesis proposes an ultrasonic method to characterize the metallic powder. An experimental method, which consists in acoustic probing for measuring linear acoustic parameters (longitudinal wave velocity and elastic modulus) of a slab of powder sample, appears to be suitable to follow different mechanical alloying stages. A dependence of the acoustic parameters on the morphological characteristics of metallic powder (grain shape and grain size distribution) is shown with the same sample preparation and the same confining pressure. In the second part, optimization process by identification of ball milling optimal rotation speed is researched in a first step. Correlation between acoustic or vibration signals and bead motion versus rotation speed, shows that acoustic and vibration energy are good indicators that can be used to find the optimal rotation speed. In a second step, acoustic and vibration measures are used to follow grain material properties evolution during a grinding (for a period of 176hrs) and to identify powder clogging mechanism on a milling tank.

Key Words

Mechanical alloying, metallic powder, balls milling, ultrasonic measures, acoustic measures, vibration measures, Oxide Dispersion Strengthened steels