



**HAL**  
open science

# Suivi par émission acoustique de la compaction de particules fragiles d'UO<sub>2</sub>

Lise Hégron

► **To cite this version:**

Lise Hégron. Suivi par émission acoustique de la compaction de particules fragiles d'UO<sub>2</sub>. Génie mécanique [physics.class-ph]. Aix-Marseille Université, 2014. Français. NNT: . tel-03337493

**HAL Id: tel-03337493**

**<https://theses.hal.science/tel-03337493>**

Submitted on 8 Sep 2021

**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

Pour obtenir le titre de

**Docteur de l'Université d'Aix-Marseille**

Spécialité : Mécanique des solides

Présentée et soutenue publiquement le 12 Novembre 2014 par :

**Lise HÉGRON**

---

## Suivi par émission acoustique de la compaction de particules fragiles d' $\text{UO}_2$

---

Devant le jury composé de :

M. Maxime NICOLAS	Professeur, Polytech Marseille	Président
M. Fabrice ROSSIGNOL	Directeur de Recherche CNRS, SPCTS	Rapporteur
M. Vincent TOURNAT	Directeur de Recherche CNRS, LAUM	Rapporteur
M. Fahrang RADJAI	Directeur de Recherche CNRS, LMGC	Examineur
M. Pascal REYNAUD	Chargé de Recherche CNRS, INSA Lyon	Examineur
M <sup>me</sup> Nathalie FAVRETTO-CRISTINI	Chargée de Recherche CNRS, LMA	Directrice de Thèse
M. Philippe SORNAY	Docteur ingénieur CEA, LCU	Encadrant de Thèse

# Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire est le fruit de l'investissement d'un très grand nombre de personnes qui ont, de près ou de loin, apporté une pierre à l'édifice, ou plus précisément une granule à l'empilement.

Je tiens tout d'abord à remercier chaleureusement Fabrice ROSSIGNOL et Vincent Tournat qui m'ont fait l'honneur d'évaluer avec une grande attention et un esprit critique de qualité, un sujet ne touchant qu'en partie à leur domaine d'expertise. Je remercie également Maxime NICOLAS, Pascal REYNAUD et Fahrang RADJAI qui ont su juger ce travail avec un regard extérieur pertinent.

Ce mémoire n'aurait jamais pu être édité sans les apports tant scientifiques que pédagogiques de Nathalie FAVRETTO-CRISTINI et Philippe SORNAY. Un grand merci à toi Nathalie pour ta disponibilité, tes nombreux conseils avisés, ton expertise d'acousticienne et d'enseignante-chercheuse, et surtout l'énergie et la bonne humeur que tu as su mettre à profit lors de nos très nombreuses rencontres. Je mettrai un petit *accent circonflexe* sur les quelques expressions marseillaises que je m'efforce d'utiliser avec une légère maladresse, mais avec une grande fierté. Un grand merci à toi Philippe pour ta disponibilité quotidienne durant ces trois années, ton expertise tant théorique que technique de la métallurgie des poudres, ainsi que tes nombreuses idées et réflexions toujours pertinentes. Travailler en votre compagnie à vous deux fût un réel plaisir !

Mes remerciements vont ensuite à Méryl BROTHIER qui m'a accueilli au sein du Laboratoire des Combustibles Uranium (LCU) du CEA de Cadarache et m'a permis de valoriser ce travail lors de congrès nationaux et internationaux. Au travers de ses nombreuses qualités, je garde en mémoire un modèle de manager exemplaire. Je remercie également Sylvie CAMARRO de m'avoir suivi et soutenu tout au long de ces trois années.

Il est inconcevable de mentionner le LCU sans évoquer Nicole, une super secrétaire dévouée et avec qui il est difficile de s'ennuyer. Merci à toi Nicole, pour tout. Je remercie ensuite toutes les personnes du laboratoire UO<sub>2</sub>, exploitants et expérimentateurs. Vous avez tous contribué à ce travail, sans exception. Je remercie en particulier Eric BERTRAND qui m'a transmis une petite partie de son expertise technique en métallurgie des poudres et qui m'a été d'une très grande aide pour pallier aux caprices de la presse uniaxiale. Je remercie vivement José(ph) S., Nico T., Hélène R., Jean-Pierre A., Christophe B., Laëtitia S., Franck M., Claude V., James D., Romain T., Noëlle A., Cathy T., Pierre M., Carine A., Olivier F., Xavière I., Joël R., Dominique M., Philippe S., Eric G., Christophe B., Catherine C., Sébastien L., Joël R., Thérèse F. et Christophe G., qui m'ont tous, à un moment donné, aidé au laboratoire. J'ai une forte pensée pour Noëlle

et Cathy qui m'ont permis, avec grand plaisir, de m'évader quelque peu de la thèse.

J'adresse également mes remerciements à Xuanjie LI qui, au travers de son stage de fin d'études ENSAM, a fortement contribué à l'avancée du volet acoustique dans sa phase de « débroussaillage ». Je poursuis en remerciant tous mes jeunes collègues thésards, apprentis, stagiaires et post-doctorants. Je pense tout d'abord à Abibatou NDIAYE qui m'a donné l'envie (et le courage) de me lancer dans cette aventure. Je garde de très bons souvenirs des moments passés avec Abi, Aurélie T., Maxime D., Lionel D., Arnaud B., Julien B., Guillaume C., Maryline L., Philippe R., Mickaël M., Vanessa P., Florence V., Guillaume B., Claire O., Céline C., Tiphaine H., Jean-Eric M. et ma super collègue de bureau Aziza C., pour ne citer qu'eux.

Mes remerciements vont ensuite au bureau 2011-2012 de l'ASsociation des THEsards de Cadarache (ASTHEC) : Bertrand BAURENS, Simon CLEMENT, Pierre COTTIER, Giannina DOTTAVIO et Gaëlle RAVEU. Cette année passée avec vous cinq fût plus qu'enrichissante et stimulante.

Je remercie ensuite Frédéric LEBON et Nathalie FAVRETTO-CRISTINI de m'avoir permis de travailler en collaboration avec le Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique (LMA) du CNRS à Marseille. Mes venues au LMA étaient toujours un réel plaisir au vu de l'accueil qui m'était réservé. Mes remerciements à Paul CRISTINI qui m'a consacré un peu de son temps aux traitements de données acoustiques.

Je finirai par remercier tous mes proches et surtout ma famille ainsi que Guillaume qui m'ont soutenue tout au long de mon parcours et qui ont été mon meilleur public.

Je dédie cette thèse à mes parents, à Adèle et à Ronan.

# Résumé

Une option à l'étude pour le recyclage des actinides mineurs consiste à en incorporer environ 10% à une matrice d' $\text{UO}_2$ . La présence de pores ouverts interconnectés au sein de ce combustible devrait permettre d'évacuer l'hélium et les gaz de fission pour prévenir le gonflement de la pastille et in fine son interaction avec la gaine qui l'entoure. La mise en œuvre des actinides mineurs oblige à travailler en cellule blindée, à minimiser leur rétention et à proscrire les ajouts de produits organiques. L'emploi de particules fragmentables de quelques centaines de micromètres paraît une solution intéressante pour contrôler la microstructure des comprimés crus et ainsi maîtriser la porosité ouverte après frittage.

L'étude consiste à suivre par émission acoustique la compaction de particules fragiles d' $\text{UO}_2$  et à relier leurs caractéristiques à la porosité ouverte obtenue après frittage des compacts.

Le signal acquis lors d'essais de cisaillement sur des granulés individuels et sur des compacts montre que l'émission acoustique autorise la détection de la fragmentation et permet l'identification d'une forme d'onde caractéristique. Les influences de la contrainte de compaction, de la distribution granulométrique initiale et de la cohésion interne des granulés, sur la tenue mécanique des compacts et sur la microstructure des frittés, en particulier sur la porosité ouverte sont analysées.

Moyennant quelques précautions, l'émission acoustique, par sa capacité à déterminer le domaine de fragmentation des granulés pendant la mise en forme, paraît une technique prometteuse pour suivre la compaction de particules fragiles en vue de la fabrication de combustibles à porosité maîtrisée.

**Mots-clés** : Emission acoustique, compaction, empilement granulaire, microstructure, porosité ouverte, dioxyde d'uranium, fragmentation, cohésion, essai brésilien.



# Abstract

One of the options considered for recycling minor actinides is to incorporate about 10% to UO<sub>2</sub> matrix. The presence of open pores interconnected within this fuel should allow the evacuation of helium and fission gases to prevent swelling of the pellet and ultimately its interaction with the fuel clad surrounding it. Implementation of minor actinides requires working in shielded cell, reducing their retention and outlawing additions of organic products. The use of fragmentable particles of several hundred micrometers seems a good solution to control the microstructure of the green compacts and thus control the open porosity after sintering.

The goal of this study is to monitor the compaction of brittle UO<sub>2</sub> particles by acoustic emission and to link the particle characteristics to the open porosity obtained after the compact sintering.

The signals acquired during tensile strength tests on individual granules and compacts show that the acoustic emission allows the detection of the mechanism of fragmentation and enables identification of a characteristic waveform of this fragmentation. The influences of compaction stress, of the initial particle size distribution and of the internal cohesion of the granules, on the mechanical strength of the compact and on the microstructure and open porosity of the sintered pellets, are analyzed.

By its ability to identify the range of fragmentation of the granules during compaction, acoustic emission appears as a promising technique for monitoring the compaction of brittle particles in the manufacture of a controlled porosity fuel.

**Keywords** : Acoustic emission, compaction, granular packing, microstructure, open porosity, uranium dioxide, fragmentation, cohesion, tensile strength test.





# Table des matières

<b>Résumé</b>	<b>III</b>
<b>Abstract</b>	<b>V</b>
<b>Glossaire</b>	<b>XI</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Etude Bibliographique</b>	<b>5</b>
1.1 Les milieux granulaires . . . . .	6
1.1.1 Quelques propriétés des empilements granulaires : compacité et texture . . . . .	6
1.1.2 Forces de contact au sein d'un milieu granulaire cohésif . . . . .	7
1.1.2.1 Forces d'attraction entraînant la cohésion . . . . .	8
1.1.2.2 Phénomène "collé-glissé" . . . . .	8
1.1.2.3 Réseau de forces de contact . . . . .	10
1.1.3 La rupture fragile : cas de l'essai de compression . . . . .	11
1.1.3.1 Généralités . . . . .	11
1.1.3.2 Résistance à la rupture . . . . .	12
1.1.3.3 Principe de l'essai brésilien . . . . .	13
1.1.3.4 Essai brésilien sur une particule . . . . .	14
1.2 Compaction œdométrique des matériaux granulaires . . . . .	16
1.2.1 Description phénoménologique des étapes de mise en forme . . . . .	17
1.2.2 Mécanismes de compaction . . . . .	20
1.2.2.1 La fragmentation . . . . .	20
1.2.2.2 Les réarrangements . . . . .	22
1.2.3 Quelques caractéristiques des comprimés . . . . .	23
1.2.3.1 Compressibilité . . . . .	24
1.2.3.2 Transmission des forces et gradients de densité . . . . .	24
1.2.4 Vers la densification par frittage des comprimés . . . . .	26
1.2.5 Influence des caractéristiques des particules . . . . .	27
1.2.5.1 Taille et distribution granulométrique . . . . .	27
1.2.5.2 Cohésion interne . . . . .	28
1.2.5.3 Forme . . . . .	29

1.3	Acoustique des milieux granulaires . . . . .	30
1.3.1	Propagation des ondes dans les solides . . . . .	31
1.3.1.1	Nature et caractéristiques des ondes . . . . .	31
1.3.1.2	Facteurs influençant la propagation des ondes . . . . .	33
1.3.2	Généralités sur l'émission acoustique . . . . .	33
1.3.2.1	Définitions . . . . .	33
1.3.2.2	Types d'émission acoustique et paramètres de salve . . . . .	34
1.3.3	Acoustique dans les milieux granulaires sous contrainte . . . . .	36
1.3.3.1	Signaux acquis au sein de milieux granulaires statiques . . . . .	36
1.3.3.2	Interactions non linéaires . . . . .	38
1.3.3.3	Influence des caractéristiques du milieu granulaire . . . . .	39
1.3.3.4	Rupture fragile . . . . .	40
1.3.3.5	Réarrangements granulaires . . . . .	42
1.3.4	Etat de l'art de l'émission acoustique pendant la compaction . . . . .	43
1.3.4.1	Identification des étapes de compaction . . . . .	45
1.3.4.2	Influence du matériau granulaire . . . . .	47
1.3.4.3	Identification des fragmentations et réarrangements . . . . .	48
1.4	Conclusion . . . . .	49
<b>2</b>	<b>Méthodologie, Matériaux et Techniques</b>	<b>51</b>
2.1	Méthodologie de l'étude . . . . .	52
2.1.1	Fabrication des céramiques poreuses . . . . .	52
2.1.1.1	Procédés industriels . . . . .	52
2.1.1.2	Pores ouverts interconnectés au sein de l' $\text{UO}_2$ . . . . .	53
2.1.2	Suivi par émission acoustique de l'évolution de l'empilement granulaire . . . . .	54
2.1.3	Démarche expérimentale . . . . .	55
2.2	Caractéristiques des particules d' $\text{UO}_2$ . . . . .	56
2.2.1	Propriétés de l' $\text{UO}_2$ . . . . .	56
2.2.2	Morphologie des poudres d' $\text{UO}_2$ . . . . .	58
2.2.3	Fabrication des granulés d' $\text{UO}_2$ . . . . .	59
2.2.3.1	Granulation . . . . .	59
2.2.3.2	Consolidation thermique . . . . .	60
2.2.4	Caractéristiques des granulés étudiés . . . . .	60
2.2.4.1	Granulés non consolidés thermiquement . . . . .	60
2.2.4.2	Granulés consolidés thermiquement . . . . .	62
2.3	Essais mécaniques . . . . .	64
2.3.1	Le pressage uniaxial : dispositif et conditions expérimentales . . . . .	64
2.3.1.1	Presse et capteurs . . . . .	64
2.3.1.2	Compliance . . . . .	65
2.3.1.3	Cycle de pressage et conditions expérimentales . . . . .	65

2.3.1.4	Suivi des contraintes de compaction et de la densification des granulés . . . . .	66
2.3.2	Mesure de résistance mécanique par essai brésilien . . . . .	67
2.3.2.1	Dispositif de cisaillement d'un granulé . . . . .	67
2.3.2.2	Dispositif de cisaillement d'un comprimé . . . . .	68
2.4	Moyens de mesure de l'émission acoustique . . . . .	69
2.4.1	Chaîne d'acquisition . . . . .	69
2.4.1.1	Capteur EA : caractéristiques, localisation et couplage . . . . .	69
2.4.1.2	Préamplificateur . . . . .	71
2.4.1.3	Système d'acquisition . . . . .	72
2.4.2	Paramètres d'acquisition . . . . .	72
2.4.2.1	Paramètres d'échantillonnage . . . . .	72
2.4.2.2	Paramètres temporels . . . . .	73
2.4.2.3	Influence des paramètres d'acquisition sur les caractéristiques des salves . . . . .	75
2.4.3	Effet du milieu environnant sur l'émission acoustique . . . . .	77
2.5	Conclusion . . . . .	79
<b>3</b>	<b>Emission acoustique pendant la compaction</b>	<b>81</b>
3.1	Compaction oedométrique d'un lit de granulés . . . . .	82
3.2	EA lors de la fragmentation d'un granulé . . . . .	84
3.2.1	Mode de rupture . . . . .	84
3.2.2	Tenue mécanique . . . . .	85
3.2.2.1	Cisaillement d'un granulé . . . . .	85
3.2.2.2	Cisaillement de comprimés . . . . .	86
3.2.2.3	Synthèse des essais brésiliens . . . . .	88
3.2.3	Signature acoustique de la rupture d'un granulé . . . . .	88
3.2.4	Corrélation entre contrainte à la rupture et amplitude de salves . . . . .	94
3.3	EA lors de la compaction d'un lit de granulés . . . . .	96
3.3.1	Signal brut . . . . .	97
3.3.1.1	Sources d'émissions acoustiques autres que la compaction des granulés . . . . .	98
3.3.1.2	Formes d'onde au cours de la compaction . . . . .	100
3.3.2	Signal discrétisé en salves . . . . .	106
3.3.2.1	Discrétisation du signal . . . . .	106
3.3.2.2	Analyses monoparamètres . . . . .	110
3.3.3	Influence des paramètres de l'essai sur le nombre de salves détectées . . . . .	111
3.3.3.1	Géométrie de la matrice . . . . .	111
3.3.3.2	Position du capteur d'émission acoustique . . . . .	113
3.3.3.3	Vitesse de compression . . . . .	114
3.3.4	Analyses multiparamètres . . . . .	115
3.4	Conclusion . . . . .	117

<b>4 Fabrication d'une céramique poreuse</b>	<b>119</b>
4.1 Influence de la contrainte de mise en forme . . . . .	120
4.1.1 Densité et microstructure du compact . . . . .	120
4.1.2 Tenue mécanique du compact . . . . .	124
4.1.3 Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	125
4.2 Influence de la répartition granulométrique des granules . . . . .	127
4.2.1 Compressibilité et émission acoustique . . . . .	127
4.2.2 Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	130
4.3 Influence de la cohésion des granules . . . . .	131
4.3.1 Essai Brésilien sur des granules consolidés . . . . .	132
4.3.1.1 Courbe de charge et contrainte à rupture . . . . .	132
4.3.1.2 Emission acoustique . . . . .	134
4.3.2 Compressibilité et émission acoustique . . . . .	135
4.3.2.1 Compressibilité et microstructure des compacts . . . . .	135
4.3.2.2 Emission acoustique lors de la compaction . . . . .	136
4.3.3 Tenue mécanique des compacts . . . . .	139
4.3.4 Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	140
4.4 Synthèse . . . . .	143
4.4.1 Corrélation entre émission acoustique et fragmentation . . . . .	143
4.4.2 Corrélation entre taux de fragmentation et tenue mécanique des compacts	144
4.4.3 Corrélation entre taux de fragmentation et porosité ouverte après frittage	145
4.5 Conclusion . . . . .	146
<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>149</b>
<b>A Lois empiriques de compressibilité</b>	<b>165</b>
<b>B Description des modèles de Janssen et de Thompson</b>	<b>167</b>
<b>C Paramètre acoustiques</b>	<b>169</b>
<b>D Théorie de Weibull</b>	<b>171</b>
<b>E Réponse du capteur acoustique</b>	<b>173</b>
<b>F Analyse multiparamètres</b>	<b>175</b>

# Glossaire

## *Notations*

$c$  : cohésion  
 $C$  : Célérité (m/s)  
 $d$  : durée (s)  
 $E$  : Module d'Young (Pa)  
(E) : signal cohérent  
 $E_{abs}$  : Energie absolue (J)  
 $\phi$  : Diamètre (m)  
 $f$  : fréquence (Hz)  
 $F$  : Force (N)  
 $h$  : hauteur (m)  
 $K$  : Facteur d'intensité de contrainte  
 $k$  : nombre d'onde ( $m^{-1}$ )  
 $l_s$  : longueur de salve  
 $\lambda$  : Longueur d'onde (m)  
 $\lambda_0, \mu_0$  : Coefficients de Lamé  
 $MV$  : Masse volumique ( $kg/m^3$ )  
 $\mu$  : Coefficient de frottement  
 $\nu$  : Coefficient de Poisson  
 $p$  : pression  
 $P$  : Onde de compression  
 $P_b$  : Taux de fragmentation  
 $R_C$  : Résistance à la compression  
 $R_T$  : Résistance à la traction  
 $\rho$  : Densité relative à la densité théorique de l' $UO_2$   
 $\rho_{GC}$  : Densité relative à la densité des granulés  
 $S$  : Onde de cisaillement  
(S) : Onde multiples diffusées  
 $\sigma$  : Contrainte (Pa)  
 $\sigma_c$  : Contrainte de cohésion (Pa)  
 $\sigma_g$  : Contrainte de granulation (Pa)  
 $\sigma_m$  : Contrainte de maintien (Pa)  
 $\sigma_{max}$  : Contrainte au palier (Pa)  
 $v_n$  : vitesse de numérisation  
 $\omega$  : pulsation ( $s^{-1}$ )

## *Acronymes*

ADU : Ammonium DiUranate  
ASL : Average Signal Level  
CCAM : Couvertures Chargées en Actinides Mineurs  
EA : Emission Acoustique  
FFT : Fast Fourier Transform  
G : Granulés non consolidés thermiquement  
GC : Granulés consolidés thermiquement  
HDT : Hit Definition Time  
HLT : Hit Lockout Time  
MEB : Microscope Electronique à Balayage  
MOX : Mixed Oxide Fuel  
MSPS : Mega Samples Per Seconds  
NIST : National Institute of Standards and Technology  
PDT : Peak Definition Time  
PSD : Densité Spectrale de Puissance  
RMS : Root Mean Square (Vrms : tension efficace)  
S.s.a. : Surface spécifique apparente  
 $UO_2$  : Dioxyde d'uranium

## *Lexique*

**Particule** : appellation générique d'un grain de matière. Une particule peut être un granulé, un agglomérat, un agrégat ou une cristallite.

**Cristallite** : monocristal de matière.

**Agrégat** : amas de cristallites liées entre elles par des liaisons solides.

**Agglomérat** : amas d'agrégats qui se sont regroupés sous l'effet de forces de Van der Waals, de forces électrostatiques, de ponts capillaires. Ils sont liés entre eux par des liaisons faibles.

**Granulé** : amas d'agrégats qui ont été volontairement regroupés (granulation mécanique, granulation par atomisation séchage... ). Ils sont liés entre eux par des liaisons faibles.

**Comprimé** : empilement dense de particules obtenu par compaction.

**Pastille** : comprimé ayant été fritté.

# Introduction

Le combustible actuel des réacteurs nucléaires électrogènes est constitué de dioxyde d'uranium ( $\text{UO}_2$ ) ou d'un mélange d'oxyde d'uranium et de plutonium (MOX). Les réactions de capture et de fission créent des produits de fission et des actinides qui rendent le combustible utilisé extrêmement radioactif. C'est la raison pour laquelle, après un séjour de 3 à 4 ans passé en réacteur, le combustible est traité de manière à, d'une part séparer les matières à recycler des autres éléments radioactifs qui constituent les déchets, et d'autre part conditionner ces derniers sous forme inerte et sûre. La séparation des actinides est un élément essentiel du cycle du combustible nucléaire. L'uranium représente encore près de 95% en masse du combustible utilisé et le plutonium près de 1%. Les actinides dits mineurs (Neptunium, Américium, Curium) par rapport à l'uranium et au plutonium, s'ils ne représentent que le millième de la masse du combustible utilisé, constituent la principale composante de sa nocivité résiduelle au-delà de quelques siècles. Le recyclage des actinides mineurs contribue dès lors à réduire les déchets non seulement en volume mais aussi en toxicité.

Parmi les options à l'étude, l'une d'elles consiste à incorporer de l'ordre de 10% d'actinides mineurs par rapport à la quantité totale d'actinides et à obtenir une pastille de combustible poreuse. La présence d'espaces libres connectés avec l'extérieur contribuerait à évacuer le plus rapidement possible l'hélium et les gaz de fission, afin de prévenir le gonflement de la pastille et in fine son interaction avec la gaine qui l'entoure et qui constitue la première barrière de confinement.

La mise en œuvre d'actinides mineurs présente trois particularités par rapport à celle de l'uranium, et dans une moindre mesure celle du plutonium, qui vont fortement impacter le procédé de fabrication. Premièrement, les actinides mineurs sont de forts émetteurs thermiques, ce qui impose de limiter au maximum l'utilisation d'additifs organiques ou organométalliques lors de la préparation et de la mise en forme des poudres. Deuxièmement, ce sont de forts émetteurs gamma et neutronique, nécessitant une manipulation en cellules blindées et non plus en boîte à gants, comme c'est le cas aujourd'hui. Troisièmement, il convient de limiter au maximum la rétention pour ne pas ajouter aux radiations de la matière manipulée celle de la matière séquestrée dans les équipements. En conséquence, le procédé de fabrication et les contrôles associés doivent être les plus simples possible et mettre en œuvre des particules de quelques centaines de micromètres pour limiter la rétention de matière.

**Il s'agit donc de fabriquer un combustible à porosité ouverte interconnectée à partir de particules de l'ordre de la centaine de micromètres sans ajout d'additifs organiques.** Il faut ajouter que la porosité doit être stable aux températures vues par le com-

bustible en réacteur. A titre d'exemple, le combustible actuel est stable thermiquement lorsqu'il ne subit qu'un écart de densification d'environ 1% pendant un traitement thermique de 24 heures réalisé à la température de frittage.

Plusieurs procédés de synthèse des particules mixtes d'uranium et d'américium notamment sont actuellement en cours de développement, et plus particulièrement le procédé aux résines échangeuses d'ions [1]. Ce procédé met en jeu l'échange cationique entre une perle de résine échangeuse d'ions et les cations d'actinides en solution. Il s'ensuit une étape de traitements thermiques qui comprend une calcination sous air permettant la dégradation du polymère de la résine et la formation des oxydes, puis une réduction thermique nécessaire à l'ajustement de la stoechiométrie des oxydes à base d'uranium.

De forme quasi sphérique et de taille allant de la dizaine à quelques centaines de micromètres, les particules appelées *sphérules* présentent de fait une coulabilité importante, facilitant le remplissage des matrices de presse. Ce sont des objets fragiles dans le sens où ils se déforment très peu plastiquement. Les sphérules se rompent par ailleurs sous des charges qui dépendent de leur taux de consolidation, *i.e.* leur température de calcination/réduction. Ainsi, elles se fragmentent plus ou moins lors de leur compaction et c'est en jouant sur leur taux de fragmentation que nous proposons de fixer la porosité ouverte après un frittage naturel. En effet, nous ne pouvons pas utiliser de produits organiques comme c'est quasiment toujours le cas pour les céramiques poreuses. De plus, cette porosité doit être stable en température, ce qui proscrit un frittage partiel utilisé notamment pour la fabrication des filtres métalliques.

La thèse s'inscrit dans ce cadre et son objectif est double. **Il s'agit alors de suivre la fragmentation de particules fragiles lors de leur compaction œdométrique et de montrer que cette fragmentation est fonction, en particulier, de leur taux de consolidation et influence directement la porosité après frittage.**

**Pour suivre la fragmentation de particules fragiles, nous proposons de mettre en œuvre la technique par émission acoustique** qui présente par ailleurs l'avantage d'être simple à nucléariser. En effet, la fragmentation est une source potentielle d'ondes élastiques qui peuvent être détectées à l'aide d'un capteur piézoélectrique. Suivre la fragmentation revient alors à identifier la signature acoustique qui lui est associée et à trouver si possible des marqueurs quantifiables.

Les travaux décrits dans ce manuscrit sont réalisés avec des agglomérats polyédriques d'une poudre d' $\text{UO}_2$  granulée mécaniquement. L' $\text{UO}_2$  représente environ 90% de la matière qui constituera le combustible et il présente aussi l'avantage d'être manipulable en boîte à gants. Les granulés sont disponibles en grande quantité et représentatifs, en terme de cohésion, de celle des sphérules.

Le premier chapitre introduit les caractéristiques et le comportement des milieux granulaires lors d'une compaction œdométrique, ainsi que les notions générales concernant l'acoustique dans les milieux granulaires. Il présente également l'état de l'art du suivi par émission acoustique de la compaction de matériaux granulaires céramiques en particulier.

Le deuxième chapitre expose la méthodologie adoptée pour répondre au double objectif qui est d'estimer le potentiel de la technique d'émission acoustique pour suivre la compaction de



particules céramiques fragiles, et de relier leurs caractéristiques (taille et cohésion) à la porosité ouverte obtenue après frittage. Les différentes techniques utilisées et moyens mis en œuvre dans notre étude, ainsi que quelques propriétés de l' $\text{UO}_2$ , sont également exposés.

Le troisième chapitre traite de l'émission acoustique produite lors d'un essai de compaction. Le cisaillement d'un seul granulé lors d'un essai dit brésilien permet d'identifier la signature acoustique de la fragmentation. Les signaux acoustiques enregistrés lors de la compaction des granulés sont ensuite étudiés, tout d'abord dans le but de vérifier qu'ils sont émis par les granulés eux-mêmes, et ensuite pour déterminer l'influence des paramètres de l'essai sur leurs caractéristiques.

Le quatrième chapitre présente l'impact de la contrainte de compaction, de la distribution granulométrique et de la cohésion des particules initiales sur leur fragmentation au cours de la compaction, étudié par observations microstructurales et émission acoustique. L'influence de ces deux caractéristiques des granulés et de la contrainte de compaction sur la porosité ouverte après frittage est détaillée en parallèle.



# Chapitre 1

## Etude Bibliographique

<b>1.1</b>	<b>Les milieux granulaires</b>	<b>6</b>
1.1.1	Quelques propriétés des empilements granulaires : compacité et texture	6
1.1.2	Forces de contact au sein d'un milieu granulaire cohésif	7
1.1.3	La rupture fragile : cas de l'essai de compression	11
<b>1.2</b>	<b>Compaction œdométrique des matériaux granulaires</b>	<b>16</b>
1.2.1	Description phénoménologique des étapes de mise en forme	17
1.2.2	Mécanismes de compaction	20
1.2.3	Quelques caractéristiques des comprimés	23
1.2.4	Vers la densification par frittage des comprimés	26
1.2.5	Influence des caractéristiques des particules	27
<b>1.3</b>	<b>Acoustique des milieux granulaires</b>	<b>30</b>
1.3.1	Propagation des ondes dans les solides	31
1.3.2	Généralités sur l'émission acoustique	33
1.3.3	Acoustique dans les milieux granulaires sous contrainte	36
1.3.4	Etat de l'art de l'émission acoustique pendant la compaction	43
<b>1.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>49</b>

## 1.1 Caractéristiques et comportements mécaniques des milieux granulaires

Dans l'industrie nucléaire, le procédé de fabrication des pastilles d'oxydes d'actinides est un procédé de métallurgie des poudres qui sont des matériaux granulaires avec leurs propriétés et leurs comportements bien spécifiques. Considéré comme un fluide lors de son écoulement, le matériau granulaire se comporte comme un solide lorsqu'il est au repos sans sollicitation extérieure [2]. Cette dualité fluide/solide est une caractéristique fondamentale des milieux granulaires et rend l'interprétation des phénomènes physiques complexe.

La limite entre l'état fluide et l'état solide s'identifie par les interactions entre les particules qui sont régies par les lois de contact. Il est à noter que la répartition des points et forces de contact entre les particules est désordonnée, ce qui constitue une autre caractéristique des matériaux granulaires. La création et la suppression des liaisons entre les particules évoluent continûment lorsque le matériau est soumis à une sollicitation extérieure, telle que par exemple une contrainte appliquée sur un tas de poudre (compaction en matrice). Cette évolution régit l'arrangement des particules les unes par rapport aux autres, leur déformation plastique, ainsi que leur fragmentation. Ces mécanismes de compaction dépendent fortement des propriétés des particules et vont impacter le comportement mécanique du matériau granulaire, aussi bien à l'échelle des particules (anisotropie des contacts, des forces...) qu'à l'échelle macroscopique (compacité, gradient de densité, cohésion macroscopique...).

Nous allons plus particulièrement investiguer les interactions de contact permettant de densifier le matériau granulaire, ainsi que les réseaux de force qui se développent au sein de l'empilement granulaire sous charge. Ces propriétés peuvent entraîner des hétérogénéités dans la distribution des contraintes et de la densité qui sont l'une des origines de la fragilité des compacts.

### 1.1.1 Quelques propriétés des empilements granulaires : compacité et texture

Un matériau granulaire est un milieu solide discret ou divisé, au sens où la phase solide est composée d'un ensemble de particules macroscopiques généralement de taille supérieure à 100  $\mu\text{m}$ . Nous parlons de poudre dans le cas d'une assemblée de particules de taille comprise entre 1  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et d'un milieu colloïdal pour des tailles inférieures au micromètre. Les particules constituant le milieu interagissent les unes avec les autres par des forces de contact dissipatives ou des forces à distance, et forment un *empilement granulaire*. Cet empilement peut être statique, comme un tas de sable contraint par des effets de bords (*e.g.*, par les parois d'un silo), ou en écoulement comme dans un sablier [3]. L'espace disponible entre les particules constitue une seconde phase qui correspond à la porosité du milieu granulaire. Dans le cas des procédés de mise en forme de poudres d'oxydes d'actinides, les interstices sont essentiellement remplis de gaz (air ou azote).

Le milieu est donc hétérogène car doté d'une microstructure à deux phases que sont les particules solides et les vides présents entre ces particules. La *compacité* caractérise le matériau granulaire en termes d'occupation des particules. Elle est donc définie par le ratio du volume

solide des particules sur le volume total de l'empilement (Figure 1.1). Dans le cas d'empilement de sphères monodisperses, c'est-à-dire de particules de même taille, l'empilement le plus dense possède une fraction volumique de 0,74 et l'empilement le plus lâche a une fraction volumique de 0,55, en considérant que toutes les sphères ont le même nombre de contact.

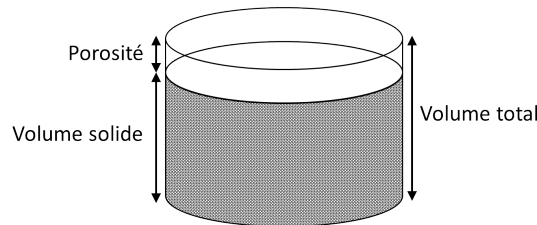


Figure 1.1 – Illustration de la compacité au sein d'un matériau granulaire.

Les comprimés crus de poudre des combustibles actuels des REP (Réacteurs à Eau sous Pression) présentent une microstructure dont la compacité est comprise entre 0,55 et 0,65.

La distribution des phases poreuses et des phases solides joue un rôle important sur le comportement mécanique du matériau. Cette répartition est régie par la manière dont les particules s'arrangent dans un empilement, elle est traduite par la notion de *texture*. Il s'agit d'une caractéristique purement géométrique qui fait également intervenir l'orientation des particules, dans le cas où celles-ci sont anisotropes, l'orientation des contacts entre les particules, ainsi que le nombre de coordination. La compression biaxiale de particules conduit à une orientation de leurs contacts dans la direction principale majeure [4], et l'empilement granulaire ainsi formé supporte la majeure partie du chargement extérieur, contribuant alors à accroître la résistance mécanique du matériau.

Par ailleurs, le réseau des contacts est caractérisé par le *nombre de coordination*, qui correspond au nombre moyen de particules en contact avec une particule donnée. Sa valeur décrit la connectivité moyenne des particules, qui augmente de manière discontinue avec la contrainte appliquée sur un lit de particules [5]. Sachant qu'il est difficile de mesurer le nombre de coordination au sein d'un milieu granulaire sous charge, l'évolution des contacts entre particules est généralement étudiée par analyses statistiques [6], ou simulations numériques [7, 8].

### 1.1.2 Forces de contact au sein d'un milieu granulaire cohésif

Un matériau granulaire *cohésif* est caractérisé par la présence de forces qui s'opposent à la séparation des particules, alors qu'un matériau granulaire non cohésif est composé de forces de contact purement répulsives. Un des paramètres sans dimension qui détermine le degré d'importance de la cohésion est le rapport de l'intensité des forces de cohésion entre les particules et la pression de confinement.

Les interactions interparticulaires peuvent être plus importantes que le simple effet de la force de gravité sur ces particules. Lors d'un écoulement gravitaire, si le poids des particules est insuffisant pour vaincre la cohésion et rompre les interactions entre les particules, l'écoulement n'a pas lieu. Ainsi, le niveau de la cohésion interparticulaire peut conduire à l'obtention de macrostructures granulaires mécaniquement stables, tout en possédant une forte porosité.

### 1.1.2.1 Forces d'attraction entraînant la cohésion

Les forces d'attraction [9] peuvent agir à distance ou à l'interface de deux particules en contact. Elles résultent à la fois des propriétés de l'interface entre les particules, comme la rugosité, de la taille des particules et des conditions de température environnantes. En-dessous de 100  $\mu\text{m}$ , des interactions d'origine physico-chimique apparaissent spontanément entre les particules au travers des forces de Van Der Waals, des liaisons électrostatiques (faible cohésion) et des ponts capillaires. Dans la gamme millimétrique, les forces d'adhésion peuvent provenir de l'énergie de surface et des ponts solides (forte cohésion).

Les forces d'attraction engendrent des contacts entre les particules, et lorsque celles-ci se déplacent les unes par rapport aux autres, le frottement entre les surfaces en contact conduit à la manifestation d'une force tangentielle. Amontons (1699) et Coulomb (1785) ont décrit ce phénomène de friction à partir d'un modèle simple de patin posé sur un solide plan (Figure 1.2). Le patin subit un frottement solide, similaire au frottement entre deux particules dans un milieu granulaire. Ce frottement est initié par une force tangentielle  $F_T$  opposée au mouvement relatif tangent au plan de contact. Le mouvement du patin est décrit à partir des normes de la réaction normale  $R_N$  et de la réaction tangentielle  $R_T$  appliquées sur le patin. Lorsque le patin entre en mouvement,  $|R_T| = \mu_s |R_N|$ , où  $\mu_s$  est le coefficient de friction statique entre les deux solides en contact. Lorsque le patin est en mouvement, les frottements entre les deux solides introduisent un coefficient de friction dynamique  $\mu_d$  tel que  $|R_T| = \mu_d |R_N|$ . Le coefficient de frottement statique  $\mu_s$  correspond à la force tangentielle nécessaire pour déclencher le glissement et le coefficient de frottement dynamique  $\mu_d$  correspond à la force tangentielle nécessaire pour entretenir le glissement. Il dépend uniquement de la nature du matériau.

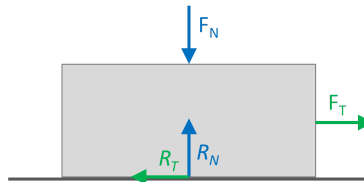


Figure 1.2 – Patin sur un plan solide et forces normales et tangentielles associées à son mouvement.

Les milieux granulaires non-cohésifs, sont composés de particules qui interagissent uniquement par ces forces de contact frottant. Certains sables secs, la plupart des poudres pharmaceutiques et les céréales non humides sont des exemples de matériaux granulaires non cohésifs.

### 1.1.2.2 Phénomène "collé-glissé"

Il est généralement plus difficile d'initier le glissement que de l'entretenir, ce qui impose l'inégalité  $\mu_s > \mu_d$ . Cette variation est à l'origine du mouvement collé-glissé (stick-slip) qui correspond à la succession plus ou moins rapide de périodes d'adhérence (collé) et de glissement brusque (glissé) (Figure 1.3) rencontrées dans certaines conditions. Ce phénomène de mouvement saccadé d'un solide frottant est entraîné par un dispositif élastique capable de stocker puis de restituer de l'énergie [10].

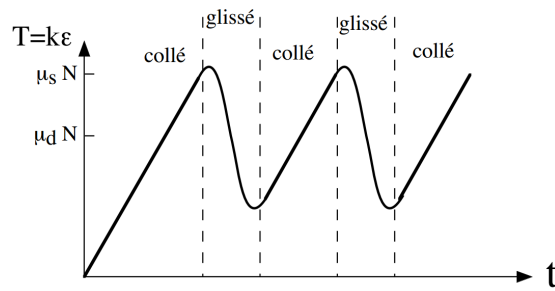


Figure 1.3 – Modèle Stick-Slip [11].

De plus, le mouvement collé-glissé participe à la création de vibrations sonores souvent émises lors des frottements de glissement. Patek et al. [12] ont mis en parallèle le glissement d'un morceau d'antenne de langouste contre un morceau de sa carapace, et le signal acoustique produit par les frottements qu'il induit<sup>1</sup>. La Figure 1.4 montre qu'un signal acoustique est émis dans les zones grisées qui correspondent aux phases de frottement. En effet, la majeure partie de l'énergie stockée par le matériau est dissipée au cours de la phase de glissement, avec une proportion relativement faible libérée lorsque les surfaces « collent » (par transfert de quantité de mouvement résiduel) [13].

Ces expérimentations montrent aussi que la vitesse du glissement et la force normale appliquée sur le morceau d'antenne influencent les caractéristiques du signal acoustique. L'augmentation de ces deux paramètres induit des signaux de plus fortes amplitudes lors de la phase de frottement. Notons que la fin du signal est masquée par les échos dans le dispositif.

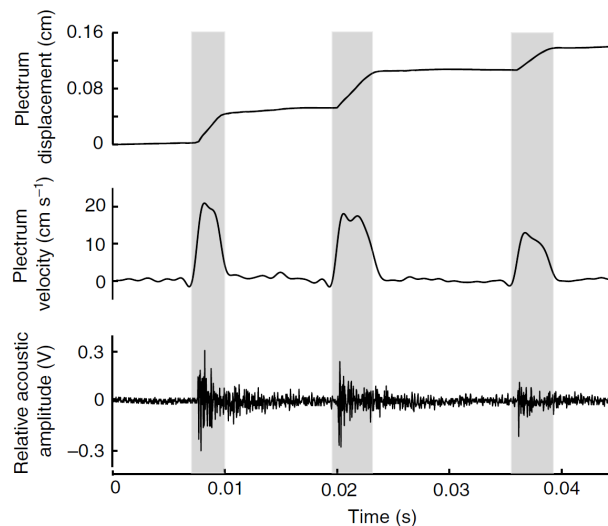


Figure 1.4 – Mesures simultanées du déplacement et de la vitesse de déplacement d'un morceau d'antenne (plectrum) contre un morceau de carapace et des signaux acoustiques induits, lors du mouvement « collé-glissé » [12].

Pour revenir aux matériaux granulaires, le frottement entre deux particules, ainsi que celui entre une particule et une paroi solide, peut donc générer des émissions acoustiques.

1. Les langoustes se servent de leurs antennes pour émettre des bruits très caractéristiques en frottant leur base contre la carapace, ce qui peut faire fuir les prédateurs. Pour ce faire, la base de l'antenne possède une structure spécifique appelée « plectrum ».

### 1.1.2.3 Réseau de forces de contact

Dans un empilement granulaire sous charge, la répartition des contraintes entre les particules en contact est très hétérogène [14]. Une petite fraction des particules supporte de manière disproportionnée des forces normales dites fortes, car supérieures à la force normale moyenne [15, 16]. Les particules porteuses sont généralement alignées dans la direction de contrainte principale [17] et forment une microstructure filamentaire appelée *chaînes de force* (Figure 1.5). Ces chaînes de force sont observées à la fois expérimentalement (Figure 1.5a) [18, 19], et par simulations numériques [20–22] (Figure 1.5b).

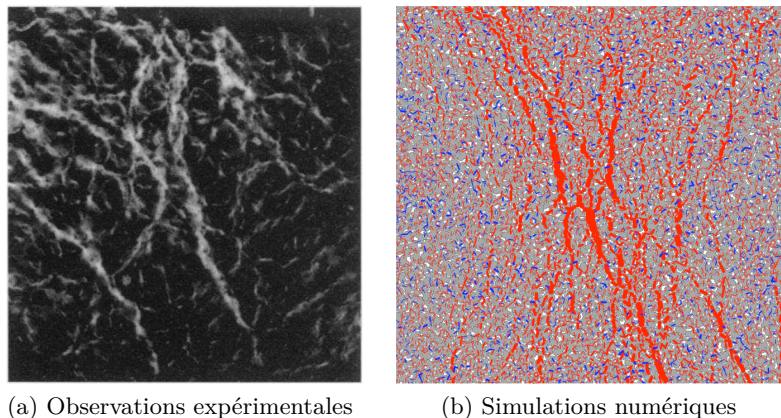


Figure 1.5 – Réseaux de forces au sein de milieux granulaires sous charge : a) observation expérimentale des chaînes de force, formées suite à l’application d’une force de 200 N sur des billes de verre de 3 mm de diamètre, et révélées par biréfringence [18], b) mise en évidence des chaînes de forces normales de compression (en rouge) et des forces de traction (en bleu) au sein d’un échantillon numérique composé de particules consolidées non convexes, simulées par la méthode de dynamique des contacts [22].

A l’échelle microscopique, la distribution des forces de contact au sein du milieu granulaire s’explique par le mouvement relatif des particules et l’évolution des forces d’interactions. Ce désordre des forces à l’échelle de la particule influence à l’échelle macroscopique l’équilibre mécanique de l’empilement granulaire qui évolue considérablement sous l’effet d’un cisaillement [23], de vibrations [3, 24], ou de compaction [25].

Par ailleurs, la rupture de ces chaînes de force provoque une libération d’énergie élastique qui peut être responsable de la propagation d’ondes acoustiques dans un milieu granulaire, en particulier le long des chaînes de force les plus fortes [26].

En conclusion, malgré des forces de cohésion importantes au sein d’un comprimé de poudre, le matériau reste très friable de par l’absence de ponts solides. Il n’est par exemple pas possible d’usiner un comprimé cru d’ $\text{UO}_2$ . La résistance mécanique du matériau granulaire est mesurée par des essais en traction ou en compression qui mènent jusqu’à sa rupture, dite fragile. Nous investiguons plus particulièrement la rupture fragile en compression car ce type d’essais est mis en œuvre dans notre étude.



### 1.1.3 La rupture fragile : cas de l'essai de compression

#### 1.1.3.1 Généralités

La rupture d'un solide élastique est la séparation irréversible, partielle ou complète, d'un milieu continu en deux ou plusieurs morceaux sous l'action d'une contrainte [27]. Lorsqu'une sollicitation extérieure est appliquée, le matériau se comporte comme un ressort : il stocke de l'énergie élastique qui se répartit dans le volume de la structure, sauf dans le voisinage immédiat des fissures préexistantes. Pour qu'une rupture se produise, une part suffisante de cette énergie doit être transmise au niveau des fissures pour actionner effectivement le mécanisme de rupture. Une rupture se produit donc par propagation de fissures, amorcées aux points de concentration de contraintes les plus élevées. Une fois qu'une fissure est amorcée dans le matériau, elle est capable de se propager rapidement sur des distances considérables jusqu'à ce qu'une hétérogénéité l'arrête. L'énergie nécessaire à la rupture des liaisons dans un matériau fragile, tel que les céramiques, est plus faible que celle nécessaire au déchirement ductile, d'où la fragilité de ce type de matériaux. Autrement dit, pour les céramiques, le matériau rompt avant d'avoir quitté le régime élastique. La rupture fragile, au contraire de celle ductile, est alors caractérisée par l'absence de déformation plastique macroscopique. Cette absence quasi-totale de zone de déformation plastique en tête de fissure confère un faciès de rupture particulier, à savoir une surface plane et sans aspérité.

Trois modes de rupture (Figure 1.6) sont en général distingués :

- le mode I, appelé mode d'ouverture,
- le mode II, appelé mode de glissement plan ou cisaillement perpendiculaire au front de fissure,
- le mode III, appelé mode de glissement anti-plan ou cisaillement parallèle au fond de fissure, ou déchirure.

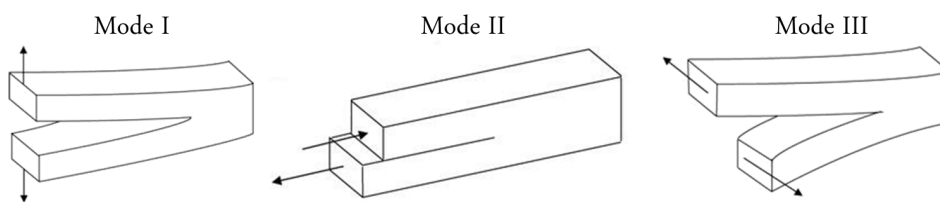


Figure 1.6 – Modes de rupture.

Les fissurations de matériaux fragiles sont généralement considérées comme des défauts, en particulier par les industriels, puisqu'elles viennent ajouter des zones de fragilité et conduisent souvent à la rupture totale du matériau. L'étude de ces défauts et l'établissement des données expérimentales permettent de déterminer la cinétique de propagation de ces fissures et la taille critique au-delà de laquelle, pour une sollicitation donnée, la rupture se produit. Une fissure se propage dans un matériau si elle libère plus d'énergie qu'elle en consomme pour se propager, et la condition d'amorçage de sa propagation en mode d'ouverture (mode I) s'écrit sous la forme :

$$K_c = \sigma_c \sqrt{\pi a} \quad (1.1)$$

Le facteur d'intensité de contrainte  $K$ , exprimé en  $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ , est uniquement fonction du chargement  $\sigma$  et de la géométrie, en particulier de la taille  $a$  de la fissure. Au seuil critique de chargement  $\sigma_c$ , le facteur  $K_c$  est une caractéristique physique du matériau appelée *ténacité* ou facteur critique de contrainte.

La rupture peut être provoquée par une surcharge occasionnelle ou, plus insidieusement, par un mécanisme de fatigue au cours duquel les fissures se forment et croissent lentement sous chargement plus faible, lorsque ce dernier est appliqué de manière cyclique. En compression, les fissures se propagent de manière stable et dévient de leur orientation initiale pour se propager parallèlement à l'axe de compression. La rupture est provoquée par la progression lente de nombreuses fissures qui forment une zone d'écrasement. La résistance  $R_c$  à la compression d'un matériau de ténacité  $K_c$  et de longueur de fissure moyenne  $a_{\text{moy}}$  s'écrit sous la forme :

$$R_c \sim \frac{K_c}{\sqrt{\pi a_{\text{moy}}}} \quad (1.2)$$

Nous parlerons plus généralement de *résistance à la rupture* pour évoquer la résistance à la compression.

### 1.1.3.2 Résistance à la rupture

La résistance à la rupture d'un matériau dépend fortement de sa cohésion, elle-même régie par la présence des forces de contact interparticulaires. La cohésion d'un matériau granulaire peut alors être assimilée à une contrainte interne du milieu. Il existe cependant une limite à cette contrainte qui correspond à la rupture des contacts entre les particules. Cette limite est appelée *Critère de Coulomb* [28]. Deux particules cohésives peuvent être assimilées à un seul bloc, comme schématisé sur la Figure 1.7.

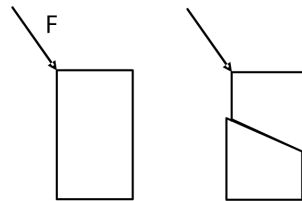


Figure 1.7 – Schéma de la rupture de la cohésion entre deux solides.

L'application d'une force  $F$  sur ce bloc entraîne la séparation en deux blocs rigides correspondant aux deux particules individuelles si, localement le long du plan de glissement, la contrainte tangentielle  $\tau$  et la contrainte normale  $\sigma$  vérifient :

$$\tau = \mu\sigma + c \quad (1.3)$$

La cohésion  $c$  rend compte des forces interparticulaires,  $\tau$  correspond au cisaillement à appliquer pour séparer les deux particules cohésives et  $c/\mu$  est la résistance à la traction du matériau, caractéristique d'un milieu cohésif.

A l'échelle microscopique, les surfaces solides glissant l'une contre l'autre ne sont pas totalement lisses mais présentent des aspérités. La surface est dite rugueuse. La rugosité de deux surfaces en contact résulte de « micro-soudures » qui lient les aspérités entre elles et provoque donc une résistance à leur séparation par glissement. Une contrainte de cisaillement  $\tau_m$  est alors nécessaire pour rompre ces micro-soudures. L'aire  $S_r$  de contact réelle (somme des contacts microscopiques) dépend de la force appliquée  $F_N$  et le coefficient de frottement  $\mu_m$  est défini par :

$$\mu_m = \frac{\tau_m S_r}{F_N} \quad (1.4)$$

Le mouvement relatif des deux surfaces peut être continu ou être de type « collé-glissé » (*cf.* §1.1.2.2, p.8).

Pour des matériaux constitués de particules cohésives, plusieurs formules sont utilisées dans la littérature pour décrire cette résistance mécanique, suivant deux approches théoriques : les ruptures instantanées et les cinétiques de propagation des fissures. La première approche énoncée par Rumpf en 1962 [9] suggère que la rupture se produit lorsque toutes les forces de liaisons entre les particules sont supplantées par la force appliquée sur le matériau, provoquant une rupture simultanée des liaisons interparticulaires le long du plan de rupture. Kendall [29] affirme en 1988 que le concept de Rumpf surestime l'énergie nécessaire à la rupture. Il propose alors une deuxième approche qui stipule que la rupture se produit par la propagation de fissures amorcées sur un défaut initial dans la structure, avec une consommation d'énergie proportionnelle à la formation de la nouvelle surface de rupture. Le calcul de la résistance mécanique par cette approche nécessite alors d'inclure une indication sur la taille de la fissure ou du défaut concourant à l'amorçage de la rupture. Cependant, l'analyse des résultats expérimentaux de Coury et al. [30] et d'Abdel-Ghani et al. [31] indique que ces deux approches théoriques ne suffisent pas pour déterminer une valeur de résistance mécanique de matériaux constitués de particules cohésives. En effet, leur comportement mécanique est plus complexe que les modèles proposés qui surestiment le module d'élasticité de plusieurs ordres de grandeur, et sous-estiment par conséquent la résistance à la rupture.

Les nombreuses techniques de mesures de résistance à la traction de comprimés [32] donnent alors les valeurs les plus réalistes et nous investiguons en particulier l'essai brésilien que nous mettrons en œuvre.

### 1.1.3.3 Principe de l'essai brésilien

L'essai brésilien permet d'évaluer la compactabilité d'un milieu granulaire qui est définie par l'aptitude du milieu à former un compact de cohésion suffisante pour une manipulation ultérieure. Cet essai est alors un moyen simple de mesurer la force jusqu'à laquelle le comprimé résiste à la rupture. Il est d'ailleurs beaucoup mis en œuvre dans l'industrie.

De manière pratique, le comprimé de géométrie cylindrique est placé couché le long d'une génératrice sur un plan lisse, indéformable et fixe (Figure 1.8). Une plaque mobile lisse et indéformable applique la force sur la partie supérieure jusqu'à ce que le comprimé rompe. Ainsi, les deux plaques indéformables exercent une contrainte tout au long des deux génératrices opposées. L'action de ces forces de compression  $F$  se répartit dans le plan axial suivant deux composantes,

à savoir  $\sigma_y$  pour la compression et  $\sigma_x$  pour la traction [33].

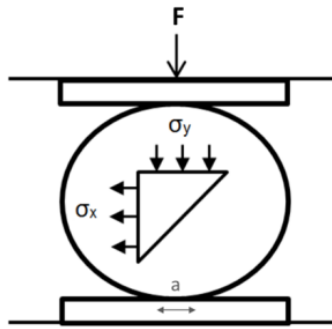


Figure 1.8 – Schéma d'un essai brésilien et répartition des contraintes.

En réalité, le contact entre le comprimé et les plaques ne se limite pas aux deux génératrices. Il se produit sur une bande de largeur variable  $a$  (Figure 1.8), entraînant une répartition des charges au niveau des zones de contact plaque/comprimé. Plus la largeur de la bande de contact  $a$  est faible, plus l'essai se rapproche d'une mesure de résistance à la traction classique [34]. La rupture doit s'amorcer au centre de l'éprouvette, être franche, verticale et se produire rigoureusement suivant le plan diamétral de l'éprouvette [35]. Ces conditions sont satisfaites si les charges sont réparties sur une bande  $a$  égale approximativement au 1/5 du diamètre du comprimé, *e.g.* 2 mm pour un comprimé de 10 mm de diamètre. Dans ce cas, la résistance à traction  $R_T$  est calculée effectivement, à partir des dimensions du comprimé et de la charge à la rupture  $F$ , via la relation :

$$R_T = \frac{2F}{\pi dL} \quad (1.5)$$

où  $d$  est le diamètre du comprimé et  $L$  sa longueur. Dans la suite, nous parlerons de résistance à la rupture pour évoquer la résistance à la traction calculée par la relation (1.5).

#### 1.1.3.4 Essai brésilien sur une particule

La maîtrise de la fragmentation d'un matériau granulaire passe en premier lieu par celle de ses particules élémentaires [36]. L'essai brésilien est alors appliqué à une seule particule dans le but de définir sa résistance à la rupture. En considérant cette particule au sein d'un empilement sous contrainte, la sollicitation exercée par la plaque mobile symbolise soit une autre particule, soit une surface rigide correspondant aux parois de confinement. Sachant que les particules sont généralement micrométriques, des outils de haute précision sont nécessaires pour suivre l'évolution de la charge appliquée par les plaques en fonction de la déformation de la particule. C'est pourquoi nombre d'auteurs se sont attachés à modéliser la rupture d'une particule élémentaire par des simulations numériques [37–39].

Tout d'abord, un essai brésilien effectué par méthode DEM<sup>2</sup> sur une particule circulaire com-

2. La Modélisation par Eléments Discrets (DEM) est basée sur la prise en compte individuelle des particules (grains), par opposition à la Méthode des Eléments Finis (FEM) qui est utilisée lorsqu'une loi de comportement homogénéisée est choisie, en assimilant le matériau granulaire à un milieu continu. Ainsi, la méthode DEM considère les forces d'adhésion et de contact pour chacune des particules du milieu granulaire modélisé.

posée de  $N_v$  particules élémentaires<sup>3</sup> montre qu'elle se fragmente diamétralement en mode I [39] (Figure 1.9). De plus, la résistance à la rupture augmente avec la cohésion interne de la particule.

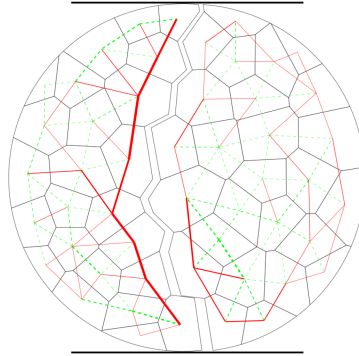


Figure 1.9 – Particule cisailée par méthode DEM prenant en considération les frottements entre les particules élémentaires et les interactions particules-parois [39].

Ensuite, les simulations numériques indiquent que le mode de rupture dominant est la rupture instantanée. Ce mode de rupture dépend principalement des conditions de chargement, avec ou sans confinement<sup>4</sup>, et de la forme de la particule (Figure 1.10). De plus, l'hétérogénéité des particules gouverne les chemins de propagation des fissures.

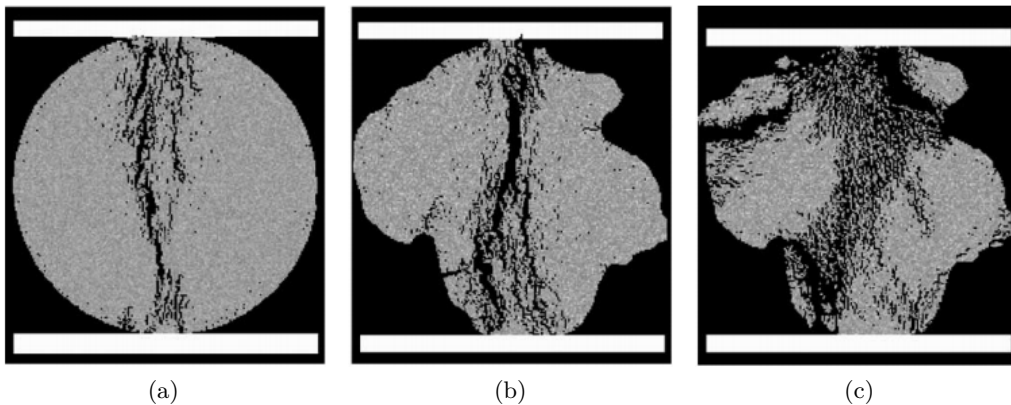


Figure 1.10 – Illustration des ruptures à la force  $F_r$  de particules numérisées : a) particule sphérique non confinée ( $F_r = 1481$  N), b) particule irrégulière non confinée ( $F_r = 1176$  N), c) particule irrégulière confinée [38].

Les résultats expérimentaux [40] sont en moyenne plus nombreux dans la littérature que les simulations numériques qui sont de plus principalement en deux dimensions. Ainsi, les tests de compression de particules individuelles [37, 41, 42], majoritairement sphériques et de quelques centaines de micromètres, sont réalisés entre deux plaques indéformables. La Figure 1.11 illustre l'essai de cisaillement d'une particule de  $(\text{Th,U})\text{O}_2$  élaborée par le procédé sol-gel et dont le diamètre est compris entre 270 et 300  $\mu\text{m}$ . La charge appliquée par la plaque supérieure (*upper punch*) est mesurée par une cellule de force de 500 N et suivie en fonction du déplacement de

3. Les particules élémentaires sont des cellules de Voronoï qui représentent des fragments interagissant par une loi de cohésion irréversible.

4. Une particule cisailée numériquement est confinée lorsque des contraintes supplémentaires lui sont appliquées afin de prendre en compte les contacts avec des particules voisines.

la plaque, dont la vitesse est fixée à  $50 \mu\text{m}/\text{min}$ <sup>5</sup>. Une caméra permet d'observer en parallèle le comportement de la particule sous chargement uniaxial. Dans cet exemple, la première fissure se forme lorsque la charge appliquée sur la particule a atteint environ 1,45 N.

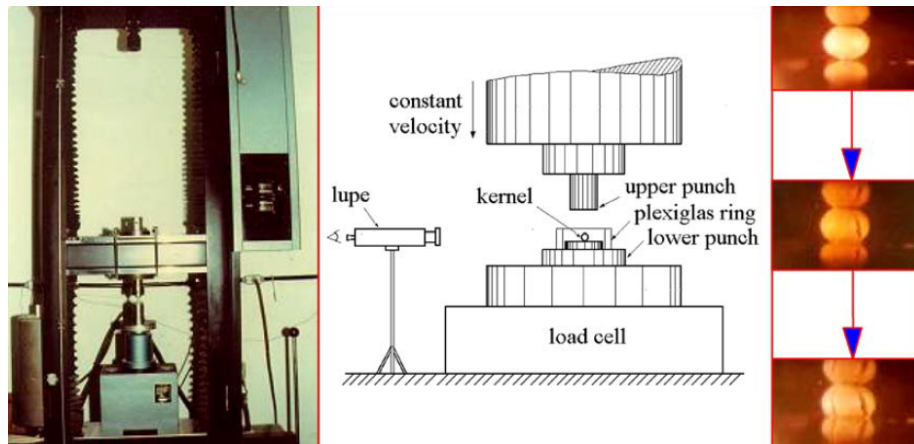


Figure 1.11 – Cisaillement d'une seule particule sphérique de  $(\text{Th,U})\text{O}_2$  obtenue par le procédé sol-gel [41].

Ferreira et al. [41] ont également montré à l'aide de ces essais que la résistance à la rupture des particules augmente avec la température de calcination<sup>6</sup>. En effet, ce traitement thermique, compris entre  $650$  et  $900^\circ\text{C}$ , permet la création de ponts solides entre les agrégats de la particule (cf. §2.2.2, p.58). De fait, la densité de la particule augmente avec la température de calcination. Ainsi, la résistance à la rupture d'une particule est gouvernée par la nature des liaisons qui garantissent sa cohésion, sa forme et les contraintes qu'elle supporte.

Remarquons que Shin et al. [43] ont évalué la résistance à la rupture d'agrégats de poudres ferriques par le simple suivi de la densité du lit de poudre en fonction de la contrainte appliquée. Ils ont relevé une discontinuité sur la courbe de densification entre  $200$  et  $300 \text{ MPa}$  qu'ils ont attribuée à la fragmentation des agrégats, et donc à leur résistance à la rupture.

## 1.2 Compaction œdométrique des matériaux granulaires

La compaction de matériaux granulaires, le plus souvent sous forme de poudres, vise deux objectifs. Le premier est la densification par rapprochement/déformation/fragmentation des particules solides à l'aide d'une pression externe. Le second objectif s'inscrit dans un cadre plus industriel. Il s'agit d'obtenir un objet de forme et de dimensions souhaitées, définies par le moule de la presse.

Il existe au moins deux principaux modes de pressage à sec de particules, à savoir le *pressage uniaxial* ou *œdométrique*, et le *pressage isostatique*. Le pressage uniaxial consiste en la compaction de poudres à l'aide d'un piston pénétrant dans un moule rigide dénommé matrice, alors que le pressage isostatique met en œuvre un moule plastique rempli de la poudre, sur lequel

5. Pour nos essais brésiliens de particules individuelles présentés dans les chapitres 3 et 4, la vitesse de déplacement est dix fois supérieure ( $500 \mu\text{m}/\text{min}$ ).

6. La calcination est un traitement thermique qui contribue à éliminer les éléments organiques du matériau et à créer des ponts solides entre les particules.

une pression est appliquée par l'intermédiaire d'un liquide ou d'un gaz. Les poudres d'oxydes d'actinides sont mises en forme par compaction uniaxiale à froid. La presse uniaxiale est dite à *simple effet* lorsque seul le poinçon supérieur se déplace, et *double effet* lorsque le poinçon inférieur se déplace à la même vitesse que le poinçon supérieur.

### 1.2.1 Description phénoménologique des étapes de mise en forme

La compaction uniaxiale à froid consiste à appuyer à l'aide d'un poinçon sur l'empilement granulaire contenu dans la matrice. La contrainte verticale appliquée sur les particules augmente jusqu'à une force maximale. Le milieu granulaire se densifie jusqu'à l'obtention d'un comprimé suffisamment solide pour être manipulé sans être endommagé. Pour l' $\text{UO}_2$ , cette technique met en jeu de très forts niveaux de contraintes qui entraînent, non seulement l'enchevêtrement des particules et/ou leur déformation/rupture, mais également la création de liens cohésifs entre elles, donnant sa résistance au comprimé [44]. Les trois grandes étapes de la mise en forme d'un comprimé sont illustrées sur la Figure 1.12.

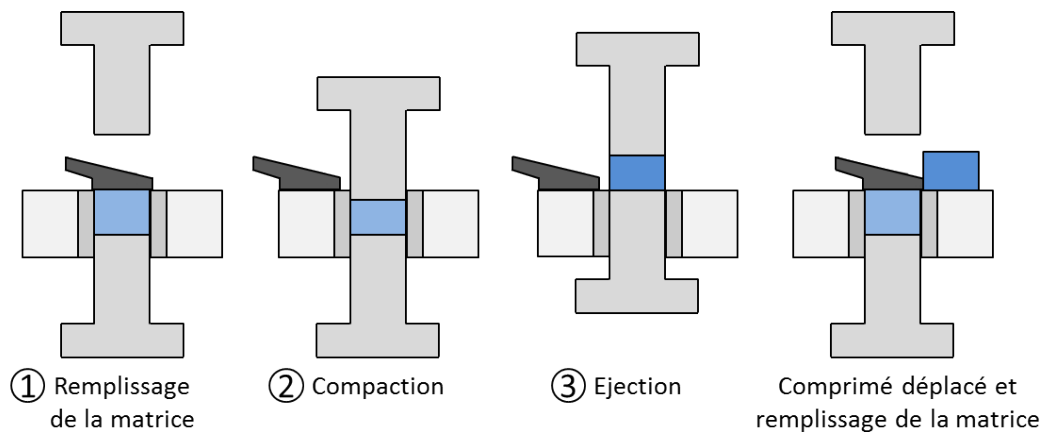


Figure 1.12 – Illustration des étapes de compaction uniaxiale.

#### ① Le remplissage

Généralement, la poudre est déversée dans le moule à l'aide d'un sabot, puis le surplus est enlevé par arasage. La poudre doit présenter des propriétés d'écoulement suffisantes pour permettre un remplissage rapide et homogène du moule de la presse. En effet, une poudre fortement agglomérée ou cohésive peut entraîner des difficultés d'écoulement [45, 46]. La non-coulabilité d'une poudre est notamment liée à la taille des particules car plus elles sont fines, et plus les forces d'attraction entre particules dominent les forces de pesanteur. L'utilisation de particules de quelques centaines de micromètres facilite alors leur écoulement, et donc le remplissage des moules de presse.

Par ailleurs, la géométrie de la matrice et des pistons influencent le remplissage de la poudre. Par exemple, une matrice cylindrique doit présenter un rapport dimensionnel hauteur sur diamètre (*i.e.*, un élancement) de sorte à laisser un espace de réarrangement latéral suffisant. Un faible diamètre est propice à la formation de voûtes entre les particules, due aux frottements interparticulaires et particules-parois [47]. Ces contacts particules-parois sont fortement liés à

l'usinage et l'entretien de la matrice et peuvent être amoindris par une lubrification préalable des parois. Les coefficients de frottement interparticulaire, mais aussi parois-particules, sont également contrôlés par l'état de surface des particules. Les arêtes et aspérités présentes aux échelles macro- et microscopiques peuvent être réduites par des actions mécaniques, telles que la sphéroïdisation.

Enfin, la polydispersité d'une poudre peut influencer le remplissage de la matrice. La problématique du remplissage de l'espace est développée par Voivret et al. [48]. Par exemple, une poudre bimodale (*i.e.* avec deux tailles de particules suffisamment différentes) favorise l'empilement en permettant l'insertion des petites particules au sein des empilements formés par les plus grosses [49, 50].

La densité du milieu granulaire après le simple écoulement gravitationnel des particules dans le moule de presse correspond à une densité comprise entre la densité non tassée, nommée *densité apparente* et la *densité tassée* au sens de la norme NF ISO 9161.

## ② La compaction : réarrangement/fragmentation des particules

Le poinçon supérieur vient s'enfoncer dans la matrice à une charge ou un déplacement imposé.

Au début de la compaction, pour une pression appliquée très faible (inférieure à 1 MPa), la poudre subit un simple tassement sans déformation des particules. Ces dernières se rapprochent les unes des autres, puis se réarrangent par des glissements et des rotations pour combler les espaces de dimensions supérieures ou égales à celles des particules.

Il est à noter que la forme des particules influence leur orientation en particulier au début de la compaction. Les particules polyédriques, encore libres de leurs mouvements, ont tendance à orienter leur plus grande dimension perpendiculairement à la direction de la force appliquée [44]. Cette réorganisation provoque l'apparition d'une anisotropie des contacts entre les particules du lit de poudre. Des particules sphériques (sans orientation préférentielle) limitent cette anisotropie du milieu granulaire. De plus, le réarrangement des particules polyédriques s'accompagnent souvent d'un mécanisme de fragmentation de leurs arêtes.

Ainsi, les réarrangements et éventuelles fragmentations conduisent à la création de nouveaux points de contact entre les particules, et de fait à l'augmentation du nombre moyen de coordination. Ainsi, le lit de poudre gagne en compacité et les pores interparticulaires deviennent en moyenne plus petits. Remarquons qu'une faible vitesse de réarrangement granulaire favorise l'obtention d'un lit de poudre homogène, et permet d'éliminer le maximum de porosité avant que se manifestent la déformation ou la fragmentation. Les réarrangements rapides et dissipatifs permettent la formation instantanée de contacts et peuvent entraîner d'importantes collisions entre les particules.

Lorsque les particules ne peuvent plus se déplacer les unes par rapport aux autres, la poudre oppose une réelle résistance à l'enfoncement du poinçon. Son déplacement provoque alors une augmentation régulière de la contrainte appliquée sur le lit de poudre. A partir d'une contrainte suffisante, les forces de cisaillement dépassent les forces de cohésion des particules et provoquent leur déformation et/ou fragmentation, selon leurs propriétés mécaniques et le chargement qu'elles supportent. Des particules ductiles vont plutôt se déformer de manière irréversible, ce qui en-



traîne le remplissage des vides interparticulaires. En revanche, des particules fragiles auront tendance à se fragmenter, conduisant à un nouveau réarrangement des fragments et une densification locale plus importante.

En conséquence, la compacité de la poudre augmente avec la contrainte appliquée sur le lit de particules. Néanmoins, la propagation de la force de compression dans le lit de poudre s'opère principalement par des densifications successives de couches [51]. Ainsi, des particules peu résistantes se densifient plus rapidement dans des couches proches des surfaces mobiles, ce qui provoque l'apparition d'un gradient de densité important dans les comprimés. Ce point sera développé dans le paragraphe 1.2.3.2 (p.24).

La cohésion finale du comprimé dépend du nombre et de l'intensité des liaisons mécaniques entre les particules, établies lors de la compaction. Toute contrainte capable de casser ces liaisons est source de fissuration du comprimé.

Cette étape de compaction permet donc une densification du milieu granulaire et l'obtention d'un comprimé conforme à la taille et à la forme de la matrice et des poinçons.

### ③ L'éjection

Lors de la décharge, le poinçon supérieur remonte légèrement par diminution de la contrainte jusqu'à un seuil de maintien du comprimé. Cette contrainte de maintien, valant environ 5 à 10% de la contrainte maximale appliquée sur le lit de poudre, garantit la maîtrise du phénomène de *retour élastique* ou *rebond* si aucun plastifiant/liant n'est ajouté, comme c'est le cas pour les combustibles nucléaires. En effet, au cours de la compression, une partie de l'énergie injectée dans le système n'est pas consommée par les différents mécanismes qui contribuent à la densification. Elle est stockée sous forme élastique et est restituée lors de l'étape de décharge [52]. Ainsi, pendant l'éjection, des contraintes de cisaillement importantes s'exercent sur le comprimé au niveau de la sortie de la matrice [53]. Par conséquent, le comprimé continue à se dilater dans le sens radial pour atteindre un état d'équilibre quasi-stable. Les comprimés d'UO<sub>2</sub>, subissent une variation de volume de l'ordre de 10% entre l'état contraint et l'état relaxé. Néanmoins, si la cohésion du comprimé est trop faible pour absorber l'énergie élastique emmagasinée lors de la compaction, le rebond peut entraîner une fissuration et/ou le délaminage du comprimé [54].

Par ailleurs, la sortie du comprimé de la matrice induit des frottements [55,56] ainsi que des phénomènes de « collé-glissé » (*cf.* §1.1.2.2, p.8) aux parois. Ceci peut entraîner une fragilisation du comprimé et une usure de la paroi de la matrice qui, à long terme, est à l'origine d'une dégradation de l'état de surface latérale des comprimés. Une lubrification préalable de la matrice permet une réduction des frottements [57], et donc une diminution des forces nécessaires à l'éjection. Ainsi, l'usure de la matrice est ralentie et les défauts de fabrication diminués.

La compréhension de la compaction de poudres est toujours limitée par le nombre et la complexité des étapes, ainsi que par les paramètres qui contrôlent le procédé de compression. En effet, les différents mécanismes que sont les réarrangements des particules, leur fragmentation et leur déformation, peuvent se produire en même temps ou successivement.

### 1.2.2 Mécanismes de compaction

La compaction de particules fragiles est régie uniquement par leurs réarrangements et leurs fragmentations ; leur déformation plastique est quasi nulle. Nous analysons les différents modes de fragmentation et de réarrangement d'agglomérats de poudre en particulier, *i.e.* constitués de particules liées par des liaisons faibles.

#### 1.2.2.1 La fragmentation

Selon le chargement exercé sur une particule et la nature des liaisons assurant sa cohésion, elle peut se subdiviser en fragments (Figure 1.13a) ou s'éroder<sup>7</sup>, ce qui la rend plus arrondie (Figure 1.13b). La rupture peut également se produire par fatigue<sup>8</sup> (Figure 1.13c) et le chargement/déchargement de la particule favorise la formation de microfissures qui vont se propager. Dans un empilement granulaire soumis à un chargement provoquant la fragmentation des particules, les différents types de rupture coexistent.

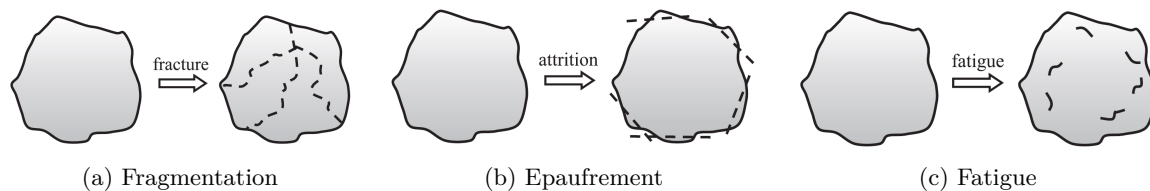


Figure 1.13 – Types de rupture d'une particule élémentaire [58].

La rupture en plusieurs fragments intervient particulièrement lorsque la particule (agglomérat pour les poudres d' $\text{UO}_2$ ) est constituée elle-même de plusieurs petites particules (agrégats), dont la cohésion entre elles est assurée par des liaisons faibles [59]. La rupture d'un agglomérat est toujours caractérisée par la propagation d'une fissure transversale interne. Cette propagation est principalement définie par les concentrations de contrainte élevées au sein de l'agglomérat, tandis que son ouverture dépend des propriétés du matériau [60] et des conditions de chargements (par compression, par impact [61], ...) [62–65].

Trois modes de fragmentation d'un agglomérat au sein d'un empilement granulaire sous contrainte peuvent être distingués (Figure 1.14), suivant un paramètre  $f$  établi par les simulations de fragmentation basées sur les méthodes par éléments discrets DEM [39]. Ce paramètre est défini comme le ratio entre le nombre de particules brisées et le nombre initial de particules constituant l'agglomérat. Le mode  $i$  pour lequel  $f < 0,1$  correspond à une fragmentation partielle de l'agglomérat, qui est généralement induite par abrasion de sommets, *i.e.* par épaufrement (Figure 1.14a). Le mode  $ii$  ( $0,1 < f < 0,9$ ) est assimilé à une fragmentation en « grands morceaux » (Figure 1.14b). La fissure traverse l'agglomérat de manière nette, et le divise en un faible nombre de fragments. Le mode  $iii$  ( $f > 0,9$ ) est la fragmentation totale de l'agglomérat (Figure 1.14c) qui est alors réduit en un amas de petites particules.

7. La rupture des arêtes est appelée « épaufrement ».

8. Le phénomène de fatigue est répandu pour les céramiques soumises à des contraintes constantes. Les fissures se propagent lentement pour des facteurs de concentration de contrainte très inférieurs à la ténacité. La rupture, qui peut arriver bien après la mise sous contrainte du matériau, ne survient que lorsque la plus grande des fissures atteint la taille critique correspondant à la contrainte appliquée.

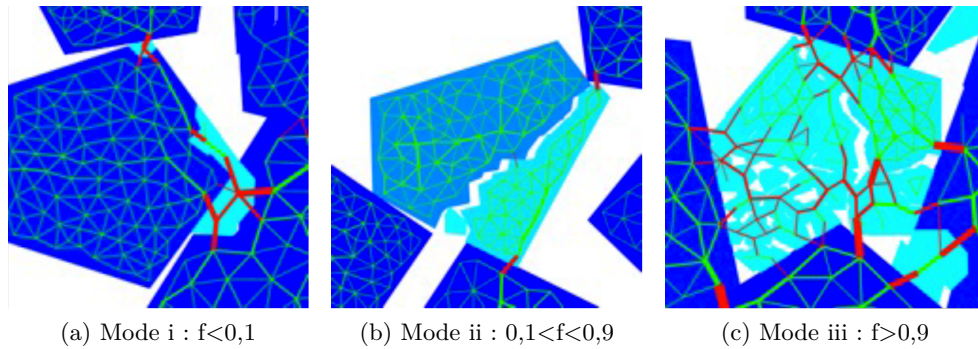


Figure 1.14 – Mise en évidence des modes de rupture d’agglomérats par simulation numérique [39] : a) fragmentation partielle, b) fragmentation en grands morceaux, c) fragmentation totale (Le niveau de teinte représente le degré de dégradation : foncé = le moins endommagé, clair = le plus endommagé) [39].

Suivre expérimentalement la fragmentation de particules lors de leur compaction est possible en réalisant des essais interrompus à différentes contraintes appliquées sur le milieu. Néanmoins, cette technique suppose un choix de la contrainte et, par conséquent, une perte d’information pour les états intermédiaires, ainsi qu’un risque de détérioration de l’empilement lors de la manipulation des compacts, surtout à faible contrainte. Les modélisations de la compaction d’agglomérats fragmentables [66] prennent ici tout leur sens.

Nguyen et al. [67] ont modélisé la compaction œdométrique de 200 agglomérats polyédriques de cohésion interne  $\sigma_c$  et de diamètre moyen de quelques centaines de micromètres, composés de 100 agrégats chacun.

Premièrement, l’évolution du taux de fragmentation  $P_b$  des agglomérats initiaux (Figure 1.15a), en fonction de la contrainte axiale  $\sigma_{yy}$  normalisée par rapport à  $\sigma_c$ , montre que les agglomérats se réarrangent au début de la compaction et que seuls quelques-uns se fragmentent selon le mode  $i$  de fragmentation (Figure 1.14a). Ils commencent à se fragmenter selon tous les modes illustrés sur la Figure 1.14, uniquement lorsque l’empilement ne leur permet plus de se réarranger. De plus, la contrainte de début de fragmentation augmente avec la taille des agglomérats [68]. Le nombre de fragments augmente alors fortement durant cette deuxième étape, et la proportion d’agglomérats complètement fragmentés (mode  $iii$ ) diminue avec l’augmentation de leur taille. Les fragments continuent à se réarranger en parallèle, mais les agglomérats ne se fragmentent plus à partir d’une contrainte donnée (environ  $5\sigma_c$  sur la Figure 1.15a), pour laquelle le taux de fragmentation (ou le ratio des espaces vides) se stabilise. A la fin de la fragmentation, il persiste des granulés intacts et partiellement fragmentés (mode  $ii$ ), et leur pourcentage est d’autant plus élevé que les agglomérats sont grands [68]. Autrement dit, le taux de fragmentation diminue avec la taille des agglomérats. Ce résultat peut s’expliquer par le fait que les plus gros agglomérats supportent de faibles contraintes de cisaillement lorsqu’ils sont entourés par une population de petits agglomérats.

Deuxièmement, l’évolution de la compacité  $\rho$  du milieu granulaire, en fonction de la contrainte normalisée (Figure 1.15b), prévoit une superposition des courbes au début de la compaction. Pour des agglomérats de contrainte de cohésion  $\sigma_c$  comprise entre 10 et 50 MPa, la compacité augmente de 0,10 entre le remplissage et le début de la séparation des courbes de densification

normalisée. Sur cet intervalle de  $5\sigma_c$ , la proportion d'agglomérats fragmentés augmente très vite (Figure 1.15a). Elle devient constante au-delà de  $5\sigma_c$ , tout comme la compacité. Nous pouvons également observer que le milieu ne densifie pas et les particules ne se fragmentent pas entre 0 et  $0,5\sigma_c$ . Cela signifie que ce modèle conduit à la densification du milieu uniquement par la rupture des agglomérats.

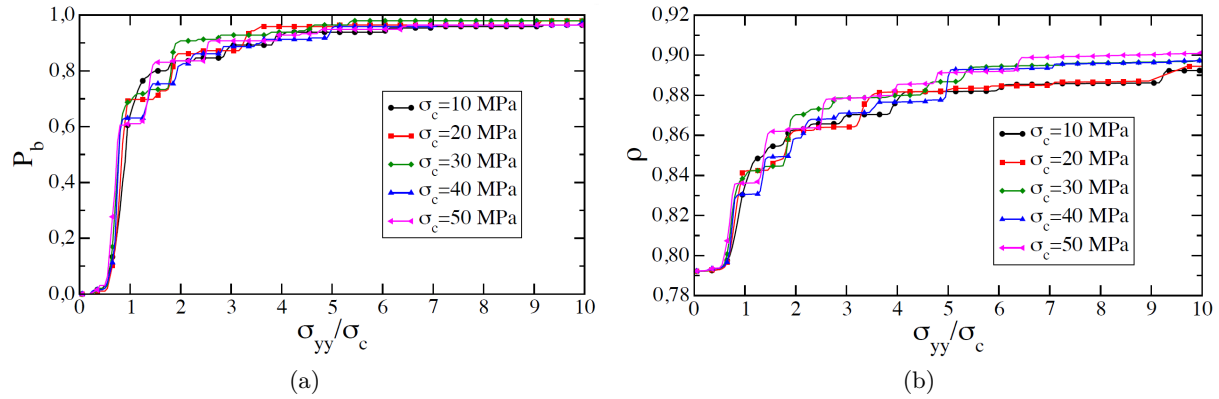


Figure 1.15 – Modélisation de la compaction de particules fragmentables de quelques centaines de micromètres : a) proportion des particules fragmentées  $P_b$  en fonction de la contrainte normalisée pour différentes contraintes de cohésion interne  $\sigma_c$ , b) compacité en fonction de la contrainte normalisée pour différentes contraintes de cohésion [39].

Ce modèle permet alors de comparer la densification du milieu granulaire avec l'état de fragmentation des particules. Il montre que lorsque la compacité devient constante, les agglomérats cessent de se fragmenter. Ce phénomène se produit vers  $5\sigma_c$ .

### 1.2.2.2 Les réarrangements

Les réarrangements se produisent dès l'écoulement des particules dans la matrice, puis sont favorisés par l'appui du poinçon supérieur sur l'empilement lâche. La réduction du volume de la chambre de compaction entraîne le déplacement des particules, conduisant à des frottements entre elles et contre les parois de la matrice. Ces mécanismes de friction se font par des glissements et ou des rotations.

Ainsi, en considérant des particules qui ne se fragmentent pas, les réarrangements peuvent être caractérisés par le nombre de contacts entre elles. Au cours de la compaction, le nombre de contacts glissants augmente puisque les particules sont contraintes à se rapprocher de plus en plus les unes des autres.

Welker et McNamara [8] ont analysé numériquement l'évolution du nombre de contacts glissants entre les particules d'un milieu granulaire sous chargement biaxial (Figure 1.16a). Ils ont montré que ce nombre augmente linéairement et sans à-coup avec la contrainte appliquée, puis l'augmentation ralentit, un palier apparaît, et une diminution du nombre de contacts glissants se produit. Cette diminution est due à des instabilités locales qui mènent à un réarrangement soudain d'un petit nombre localisé de particules transportant la majorité de l'énergie cinétique. Les auteurs ont alors suggéré que la mesure de ces événements instables et des pics d'énergie cinétique devraient être possible au moyen de la méthode de l'émission acoustique. Ils ont éga-

lement montré que l'organisation spatiale des contacts glissants évolue ; ils sont d'abord répartis uniformément dans l'empilement puis se concentrent dans certaines régions (Figure 1.16b) au fur et à mesure que la contrainte augmente.

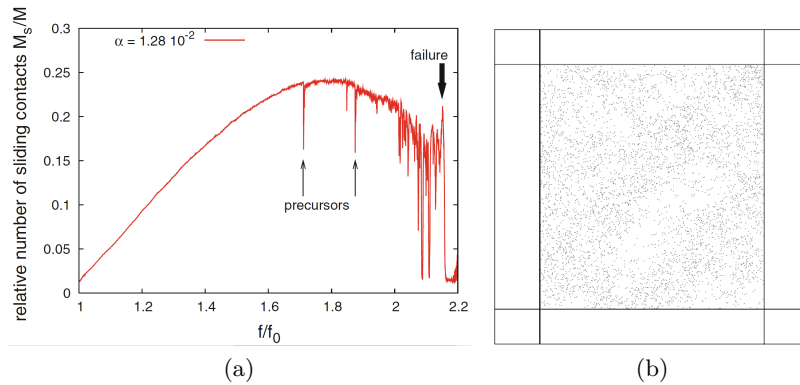


Figure 1.16 – a) Evolution du nombre de contacts avec l'application de la force  $f/f_0$ , b) distribution des contacts glissants (un contact est un point noir) à la force  $f/f_0 = 2,15$ , c'est-à-dire juste avant le début de la fragmentation des particules [8].

Les simulations numériques de la compaction de particules non fragmentables permettent également d'étudier l'influence des réarrangements sur la porosité du matériau granulaire [69,70]. Ces études sont réalisées à partir d'empilements monodisperses qui ne prennent donc pas en considération le simple comblement des espaces vides par les plus petites particules. De plus, la fragmentation des particules conduit à une polydispersité du milieu granulaire qui favorise alors les réarrangements et la densification. Le réarrangement granulaire continue à se manifester même aux fortes contraintes, alors que la fragmentation n'a plus lieu, seule l'abrasion subsiste.

### 1.2.3 Quelques caractéristiques des comprimés

Les qualités d'un comprimé dépendent des conditions de compaction (charge et vitesse de déplacement du poinçon), ainsi que des caractéristiques et propriétés du matériau granulaire, *i.e.* nature, taille et forme des particules, forces d'adhésion entre elles, aptitude à la déformation élastique ou plastique et à la fragmentation. Quelles que soient les propriétés du matériau granulaire comprimé, les fortes contraintes généralement mises en jeu et le frottement contre les parois du moule sont cependant les principales responsables des hétérogénéités de structure, observées originellement par Janssen en 1895. De nombreux auteurs se sont alors attachés à modéliser la compaction de milieux granulaires en termes d'évolution de densité en fonction des contraintes de compaction.

Par ailleurs, les propriétés mécaniques du matériau granulaire évoluent pendant la compaction puisque sa compacité diminue, entraînant une augmentation de sa cohésion par rapprochement des particules. En particulier, la vitesse de compaction influence les taux de déformation plastique et de fragmentation du milieu, et donc les propriétés mécaniques du compact. En effet, à de faibles vitesses de compaction, les particules ont le temps de se réarranger et légèrement de se déformer plastiquement, puis de se fragmenter. Cependant, pour une compaction rapide, le mécanisme prédominant est la fragmentation des particules qui n'ont pas le temps de se déformer et de se réarranger. Dans ce cas, la résistance du comprimé est plus faible.

### 1.2.3.1 Compressibilité

La *compressibilité* est l'aptitude d'un lit de poudre à se déformer sous l'effet d'une contrainte et, en l'occurrence, à diminuer de volume. Elle est donc principalement influencée par la capacité des particules à se réarranger, se déformer ou se fragmenter. Autrement dit, la compressibilité d'un lit de poudre définit dans quelle mesure sa densité augmente avec la contrainte qui lui est appliquée.

Les courbes de compressibilité reliant la densité moyenne du comprimé à la contrainte appliquée sont simples à établir de façon expérimentale puisque la densité est calculée par l'intermédiaire du déplacement du poinçon. Il s'agit donc là d'un moyen rapide de caractériser globalement le comportement des poudres lors de leur compaction.

L'exploitation quantitative de ces courbes est possible grâce aux lois plus ou moins empiriques qui abondent dans la littérature. Néanmoins, les lois proposées ne sont valables, dans la plupart des cas, que sur des domaines restreints, et il est dès lors nécessaire d'en combiner deux ou trois pour réussir à modéliser l'ensemble de la courbe. Par exemple, la relation de Kawakita est valable de 10 à 100 MPa et la loi de Heckel de 200 à 600 MPa [71] (*cf.* Annexe A, p.165) pour les poudres d'UO<sub>2</sub>.

Le modèle analytique de Thomas-MastEAU [72] propose des relations valables sur tout le domaine de pression, et repose en partie sur le fait que la densification résulte d'une part, de l'aptitude du lit de poudre à se compacter par réarrangement des particules, et d'autre part, de l'aptitude des particules à densifier par fragmentation et réarrangement. Il permet alors d'obtenir une bonne corrélation avec les courbes expérimentales. Cependant, le nombre de paramètres est important et la solution des équations n'est pas unique.

Ces modèles ne permettent cependant pas de décrire les gradients de densité constatés dans le comprimé, phénomène qui est décrit dans le paragraphe suivant (§1.2.3.2, p.24). Il s'agit de lois de comportement globales qui lient la contrainte appliquée à la densité moyenne du comprimé.

### 1.2.3.2 Transmission des forces et gradients de densité

Pendant la compaction d'un lit de poudre, une partie de la force appliquée  $F_A$  est transmise à la matrice et apparaît comme une force de réaction à la paroi  $F_P$  (Figure 1.17). Cette force n'est donc pas transmise uniformément à cause du frottement à la paroi, mais également des frottements interparticulaires [73, 74]. Elle diminue en s'éloignant du poinçon qui applique la contrainte. Le reste de la force appliquée est transmis à travers la poudre au poinçon inférieur. La force transmise est notée  $F_T$ . L'équilibre des forces correspond alors à une simple addition :  $F_A = F_T + F_P$ .

Le rapport entre la contrainte transmise et la contrainte appliquée est appelé *indice de friction*. Son évolution au cours de la compaction d'un lit de particules rend compte de la qualité du transfert de la contrainte du haut vers le bas du compact [44]. Notons que la transmission des forces dépend des propriétés de la poudre [75–77], des conditions de compaction [78], et de l'interface entre la poudre et la matrice [79, 80]. Elle n'est donc pas homogène et évolue au cours de la compaction. Les surfaces des particules sont alors en contrainte de manière hétérogène,

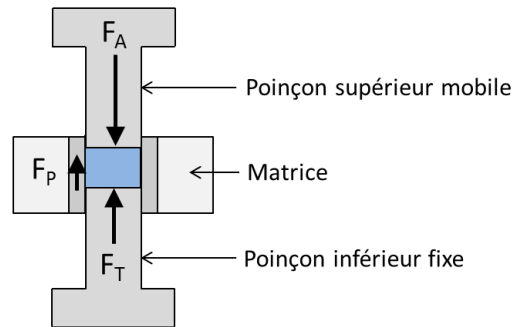


Figure 1.17 – Forces appliquées et transmises lors de la compaction d'un lit de poudre.

ce qui provoque l'apparition de *gradients de pression* entre les zones proches des poinçons et les zones les plus éloignées. Les frottements provoquant ce phénomène peuvent être néanmoins minimisés par l'ajout de lubrifiant au matériau granulaire et/ou sur les parois de la matrice.

Ainsi, l'ensemble du lit de poudre n'est pas soumis à la même contrainte sur toute sa hauteur, ce qui induit des hétérogénéités de densité au sein du compact. Yanai et al. [81] ont mis en évidence ce phénomène de gradients de densité, par imagerie MEB et analyses DRX, au sein de comprimés de poudre d' $UO_2$  et d' $Al_2O_3$ . Les poudres d' $UO_2$ , possédant des agrégats non fragmentés par une compaction jusqu'à une contrainte de 230 MPa, présentent des hétérogénéités de densité plus grande en surface du comprimé qu'en son centre.

Les modèles semi-empiriques de Janssen et Thompson (*cf.* Annexe B, p.167), reposant partiellement sur des lois physiques de la mécanique des milieux continus, permettent de décrire le champ de contraintes au sein du comprimé et permettent une première évaluation des hétérogénéités de densité.

Les approches numériques réalisées par la méthode des éléments finis sont également utilisées pour prédire les gradients apparaissant lors de la compaction de poudre [82], [7] (Figure 1.18). Elles sont utiles mais encore limitées car elles font appel à la mécanique des milieux continus. Une modélisation multi-échelle passant de la modélisation par éléments finis à la modélisation par éléments discrets devrait permettre à terme de prévoir l'apparition des défauts et leur propagation dans les compacts.

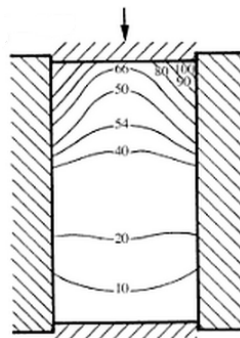


Figure 1.18 – Gradients de densité dans un comprimé numérisé [83].

Remarquons que d'autres auteurs ont étudié ces gradients de densité au moyen de calculs reposant sur des lois de comportement du matériau [84–87] ou au moyen de mesures [88, 89].

La répartition des densités dans le comprimé peut engendrer l'apparition de défauts macroscopiques, tels le décalottage (Figure 1.19a) ou la cassure des angles (Figure 1.19b), qui sont des zones de densité plus faible. Ces hétérogénéités de structure sont principalement dues aux frottements particules-particules et particules-parois. Ainsi, l'ajout de lubrifiant dans le lit de poudre contribue à diminuer ses frottements, et donc la distribution non uniforme de densité [90].

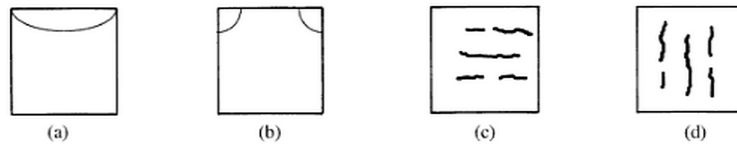


Figure 1.19 – Principaux défauts observés suite au pressage uniaxial de matériaux granulaires : (a) décalottage en forme de disque (*end capping*), (b) cassure des angles, (c) délamination, (d) fentes verticales [83].

La délamination (Figure 1.19c) et les fentes verticales (Figure 1.19d) sont des défauts qui peuvent également apparaître lorsque des contraintes excessives sont utilisées alors que l'empilement granulaire n'est pas assez résistant.

#### 1.2.4 Vers la densification par frittage des comprimés

La densification de comprimés par frittage est constitutive de la fabrication de céramiques, et en particulier pour les combustibles d' $\text{UO}_2$ . La Figure 20 présente les différentes étapes du frittage en phase solide et l'évolution de la densité relative du solide, qui augmente au cours du temps du fait de la densification des particules entre elles [91].

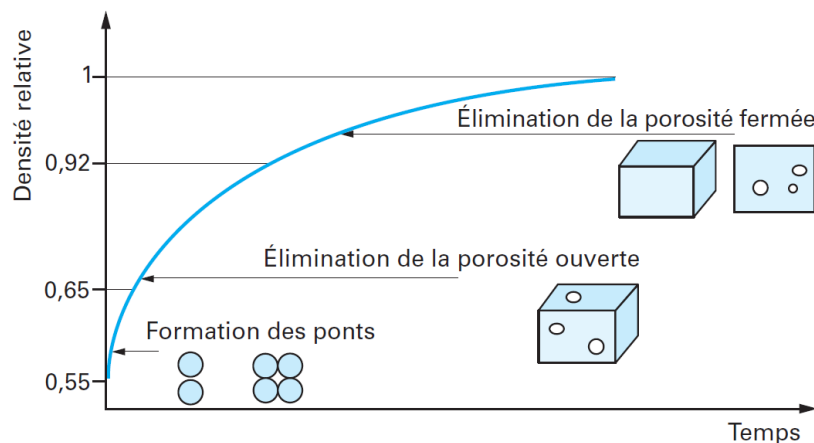


Figure 1.20 – Evolution de la densité relative au cours des étapes de densification en condition isotherme [91].

Lors du stade initial, appelé *consolidation*, les surfaces de contact entre les particules augmentent, s'accompagnant de la formation des ponts de frittage entre les particules. La consolidation commence vers  $800^\circ\text{C}$  pour les poudres d' $\text{UO}_2$  frittées sous atmosphère réductrice (hydrogène) [92]. La résistance mécanique du compact augmente sans que sa densification soit notable. Il est alors constitué d'un squelette solide traversé de pores lamellaires connectés avec l'extérieur, *i.e.* la porosité ouverte. Le stade intermédiaire correspond à la densification globale du matériau,



conduisant à l'élimination de la porosité ouverte. En fin de frittage, la majorité de la porosité ouverte est résorbée, mais des pores sont emprisonnés dans le solide. L'élimination de ces pores est souvent difficile et les gaz piégés à l'intérieur de la porosité fermée doivent être évacués par diffusion à travers le solide.

D'un point de vue thermodynamique, le système diminue son énergie superficielle en réduisant l'aire des interfaces solide-gaz (fortement énergétiques) au profit des interfaces solide-solide (moins énergétiques) par la soudure des grains. La minimisation de l'énergie libre du système met en concurrence un autre processus lors du frittage, à savoir le grossissement des grains, ou mûrissement d'Ostwald, qui correspond à une diminution de l'aire globale des interfaces solide-solide par la diminution du nombre de grains.

D'un point de vue cinétique, les poudres présentant les taux d'agrégation les plus élevés ont généralement une vitesse de retrait la plus grande devant les agglomérats [93]. Autrement dit, les agrégats d'une poudre vont fritter avant les agglomérats. Et selon Lange [94] cette densité maximale correspond à la transition entre la cinétique de densification et celle de grossissement granulaire des poudres.

Le frittage agit comme un révélateur de la microstructure du compact. Nous le mettrons en œuvre à cet effet également.

### 1.2.5 Influence des caractéristiques des particules

Les particules individuelles d'un milieu granulaire sont principalement caractérisées par leur taille, leur cohésion interne et leur morphologie, alors que l'ensemble des particules est défini par sa distribution granulométrique, sa compacité, sa surface spécifique, sa texture et sa tenue mécanique. La littérature abonde d'études cherchant à établir des liens entre les caractéristiques des particules et les propriétés de l'empilement granulaire qu'elles forment. Nous nous focalisons dans ce paragraphe uniquement sur des particules « macroscopiques », dont la taille moyenne est de quelques centaines de micromètres.

#### 1.2.5.1 Taille et distribution granulométrique

Les simulations numériques sont largement utilisées pour déterminer les effets de la distribution de la taille de particules sur la densité apparente au remplissage, sur la compacité et sur la texture. Premièrement, la compacité augmente avec la taille des particules, car la présence de fines particules modifie les critères de stabilité mécanique des particules et encourage la formation de voûtes locales dues à la création de ponts entre les particules (Figure 1.21). Ainsi, un étalement large provoque l'apparition de voûtes dès le remplissage, entraînant par la suite une densification hétérogène du milieu granulaire. Ce résultat a été validé expérimentalement par Fourcade [44] sur des particules d' $\text{UO}_2$  de centaines de micromètres et numériquement par Kong et Lanutti [51] avec des sphères rigides. Ces derniers ont également montré qu'à partir d'une certaine proportion de fines particules devant les grosses, les fines remplissent les espaces libres au lieu de créer des voûtes (Figure 1.21), ce qui induit alors une densification du milieu. Ainsi, il existe un ratio optimal fines/grosses permettant d'obtenir un comprimé dense et homogène.

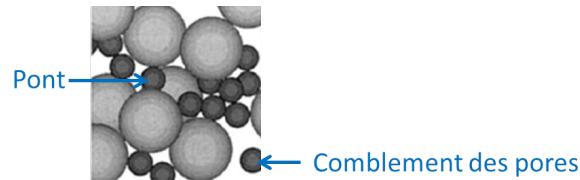


Figure 1.21 – Illustration de la formation de ponts et du comblement des espaces libres par les plus petites particules [51].

Par ailleurs, la diminution de la taille des particules d'un empilement sous gravité induit une homogénéisation des forces normales de contact, qui deviennent moins alignées dans le sens de la compression et dont la distribution devient plus étroite et symétrique [95]. Pour des particules fragmentables, plus les particules sont grosses, plus il faut appliquer une contrainte élevée pour obtenir de petits fragments [96].

Sachant que les forces d'adhésion entre les particules d'un matériau granulaire sont d'autant plus grandes que les particules sont petites, l'influence de la cohésion interne des particules sur le comprimé est en partie la même que pour la taille des particules. Néanmoins, des phénomènes supplémentaires méritent d'être abordés.

### 1.2.5.2 Cohésion interne

Au sein d'un empilement granulaire composé d'agglomérats possédant leur propre cohésion interne, l'adhésion entre eux est également assurée par des forces de cohésion, dont l'intensité augmente par l'application d'une force extérieure, et ce par simple rapprochement des agglomérats les uns avec les autres.

Tout d'abord, nous avons vu au paragraphe 1.2.2.1 (p.20) l'évolution de la compacité  $\rho$  en fonction de la contrainte normalisée  $\sigma_{yy}/\sigma_c$  sur un échantillon simulé d'agglomérats de cohésions internes  $\sigma_c$  différentes (Figure 1.15b, p.22). Les courbes normalisées se superposent jusqu'à environ  $5\sigma_c$ , ce qui traduit une relation certaine entre la cohésion interne des agglomérats et la densification du milieu jusqu'à cette contrainte. Au-delà, deux groupes de valeurs de  $\sigma_c$  se distinguent. Les empilements constitués des agglomérats de plus fortes cohésions internes (30, 40 et 50 MPa) atteignent pour un rapport  $\sigma_{yy}/\sigma_c$  valant entre 8 à 9, une densité légèrement plus élevée que ceux constitués des agglomérats les moins cohésifs.

Ensuite, la cohésion interne de chacun des agglomérats modifie les forces d'adhésion entre eux, et par conséquent la cohésion globale de l'empilement. Guessasma et al. [97] ont observé des zones de décohésion au sein d'empilements simulés de sphères soumises à une compaction œdométrique. Ces zones correspondent à des pertes de contact entre les sphères millimétriques qui sont d'autant plus nombreuses que la cohésion interne des sphères est faible.

Enfin, plus la cohésion interne d'un agglomérat est grande et plus sa rupture est difficile, comme évoqué au paragraphe 1.1.3.4 (p.14). Une résistance à la rupture élevée des agglomérats implique qu'ils se fragmentent moins pendant la compaction. Par conséquent, les réarrangements sont moins nombreux au cours de la compaction et les espaces libres ne peuvent être remplis par de petits fragments. Ce dernier effet conduit à une faible frittabilité du comprimé et de fait,

à une faible densité du matériau fritté avec présence de pores ouverts autour des sphères peu ou non fragmentées (Figure 1.22). Ferreira et al. [41] ont en effet mis en évidence la diminution de la densité des frittés avec l'augmentation de la température de calcination des sphères, *i.e.* leur cohésion.

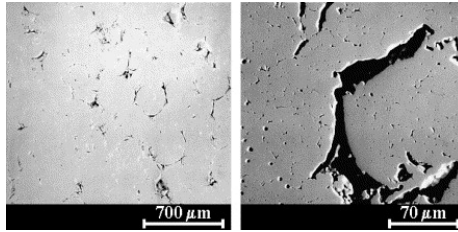


Figure 1.22 – Micrographies MEB d'une pastille frittée constituée de sphères de  $(\text{Th,U})\text{O}_2$  fabriquées par le procédé sol-gel et calcinées à  $650^\circ\text{C}$  [41].

La cohésion interne des agglomérats joue donc un rôle primordial sur l'évolution de la microstructure au cours de la compaction, dont l'empilement final régit la manière dont le matériau va densifier au cours du frittage.

### 1.2.5.3 Forme

La forme des particules d'un matériau granulaire joue beaucoup sur les propriétés d'empilement (compacité), de texture (distribution des phases vide et solide, réseau de contact), de cinématique (mobilisation du frottement intergranulaire, rotation, réarrangement) et sur les propriétés mécaniques [98], [22].

Les simulations numériques mettent en œuvre par commodité, dans la plupart des calculs, des sphères parfaites, mais la morphologie d'une particule n'est pas aussi simple dans la réalité. Elle peut être parfois assimilée à un polyèdre non régulier, rendant difficile la mesure de sa taille moyenne en particulier.

La morphologie d'agglomérats d' $\text{UO}_2$  de centaines de micromètres agit principalement sur la densité apparente de l'empilement [44], ainsi que sur l'orientation des contacts au début de la compaction. En effet, les agglomérats ont tendance à orienter leur plus grande dimension perpendiculairement à la direction de la contrainte appliquée, ce qui provoque l'apparition d'une anisotropie des contacts. Cette réorganisation est en grande partie conservée jusqu'à la fin de la compression et peut influencer les propriétés finales du compact [99], [75].

Lorsque les agglomérats d' $\text{UO}_2$  sont fragmentés, les agrégats qui les forment se réarrangent sous l'effet de la sollicitation externe. Leur morphologie dendritique modifie leur capacité à se réarranger, en raison des phénomènes de blocage par enchevêtrement, mais aussi à cause du frottement intergranulaire qui se trouve accentué.

De plus, le calcul de l'adhésion (*cf.* §1.1.2.1, p.8) est bien plus complexe pour un matériau granulaire qui possède des particules de formes irrégulières. Nous parlons dans ce cas de rugosité du milieu. A partir d'un modèle mathématique, Rumpf [100] a prouvé que pour des valeurs de rugosité de l'ordre de  $10^{-2}$   $\mu\text{m}$ , les forces de Van Der Waals entre les particules de 10  $\mu\text{m}$  sont réduites. Cette réduction des forces d'attraction résulte de la rugosité qui augmente les

distances entre les particules et réduit les surfaces de contact, mais aussi du fait que les forces de contact de ces particules microniques sont d'autant plus faibles que le rayon moyen est petit. Des différences d'adhésion entre les particules impliquent alors des compactabilités différentes entre les milieux granulaires, et par conséquent, des tenues mécaniques d'autant plus faibles que les forces d'adhésion sont réduites.

Pour conclure, il n'existe pas de relation directe entre la densité du comprimé cru et celle de la pastille frittée. En effet, deux comprimés crus de même densité mais composés de particules aux caractéristiques différentes peuvent présenter des densités différentes après frittage. Il existe néanmoins des outils mathématiques permettant de prédire les propriétés d'un matériau fritté en termes de densité et microstructure, à partir des caractéristiques des particules initiales (densité, surface spécifique apparente, résistance à la rupture), en fonction de la pression de mise en forme [41].

### 1.3 Acoustique des milieux granulaires

L'acoustique vise notamment à étudier la génération, la propagation, la réception et les effets induits des ondes mécaniques au sein de milieux fluides et solides. Selon les propriétés de ces milieux, la propagation des ondes est plus ou moins complexe. Alors qu'elle est assez bien maîtrisée dans les milieux homogènes, sa compréhension reste floue dans le cas de milieux hétérogènes complexes tels que, par exemple, les milieux granulaires.

Dans le cas des matériaux non cohésifs et homogènes, la théorie de Biot [101,102] est un des modèles les plus réalistes pour décrire la propagation des ondes, puisqu'elle prend en compte les différentes interactions entre le fluide (air, eau...) et la structure solide (particules, billes). Néanmoins, à partir des années 1980, plusieurs auteurs ont vérifié ce modèle expérimentalement pour des milieux granulaires cohésifs [103–105], et ont mis en évidence des effets non linéaires que le modèle de Biot n'avait pas pris en compte. Ainsi, la propagation des ondes dans les matériaux granulaires n'est pas triviale et fait l'objet de nombreuses études, essentiellement expérimentales en statique, utilisant des techniques acoustiques actives [106–110]. Peu d'études sont réalisées en essais dynamiques au cours desquels le milieu granulaire est soumis à une contrainte qui augmente de manière continue. Encore moins d'études s'attachent à étudier la propagation des ondes dans les matériaux granulaires fragmentables qui évoluent continûment au cours de l'essai, d'un matériau granulaire peu cohésif ou « lâche » vers un milieu fortement cohésif et poreux.

Dans ce cadre, notre étude apporte quelques éléments de réponse à la propagation d'ondes mécaniques dans un milieu granulaire fragile en évolution continue. Néanmoins, ces résultats restent principalement qualitatifs puisque nous utilisons la technique par acoustique passive, signifiant que nous ne maîtrisons pas les caractéristiques des ondes sources.

Ce paragraphe s'attache alors à rappeler les notions de base de la propagation des ondes dans les solides et plus particulièrement dans les matériaux granulaires sous contrainte statique, puis les termes spécifiques à l'émission acoustique, et enfin l'état de l'art du suivi par émission acoustique de la compaction de matériaux granulaires cohésifs et fragmentables.

### 1.3.1 Propagation des ondes dans les solides

#### 1.3.1.1 Nature et caractéristiques des ondes

Schématiquement, un matériau peut être considéré comme un ensemble de petites masses en interactions élastiques qui peuvent osciller autour de leur position d'équilibre sous l'effet d'une perturbation mécanique. Ainsi, une onde est définie comme un mouvement oscillatoire qui se transmet de proche en proche dans un milieu matériel, par voisinage, produisant sur son passage une variation réversible de propriétés physiques locales. Elle transporte alors de l'énergie, sans transporter de matière.

Une onde est caractérisée par sa fréquence, son amplitude et sa longueur d'onde. La fréquence est le nombre de vibrations par seconde (autour de la position d'équilibre) des particules du milieu. Elle s'exprime en Hertz ( $\text{Hz} = \text{s}^{-1}$ ). A titre indicatif, le domaine audible s'étend sur la bande de fréquences 15 Hz – 20 kHz. La longueur d'onde est la distance entre deux points d'une onde de même phase. Ainsi, plus la fréquence est basse, plus la longueur d'onde est grande. Dans un matériau homogène et isotrope, et dans l'hypothèse de l'élasticité linéaire et des petites déformations, ce mouvement des particules est régi par [111] :

$$\rho_0 \frac{\partial^2 \bar{u}}{\partial t^2} - (\lambda_0 + \mu_0) \text{grad}[\text{div}(\bar{u})] - \mu_0 \Delta \bar{u} = \bar{0} \quad (1.6)$$

où  $\rho_0$  est la masse volumique du matériau,  $\lambda_0$  et  $\mu_0$  ses coefficients de Lamé (ou d'élasticité),  $t$  le temps et  $\bar{u}$  le vecteur déplacement d'un point du solide élastique. En considérant successivement le rotationnel et la divergence de cette équation du mouvement (1.6), et en admettant que le déplacement global  $\bar{u}$  est la somme du déplacement de deux ondes P et S, respectivement de mouvement irrotationnel et de mouvement solénoïdal, nous obtenons alors l'équation des ondes :

$$\Delta \bar{u}_{P,S} - \frac{1}{C_{P,S}^2} \frac{\partial^2 \bar{u}_{P,S}}{\partial t^2} = \bar{0} \quad (1.7)$$

où  $C$  est la célérité ou vitesse de propagation des ondes P et S définie par :

$$C_P = \left( \frac{2\mu_0 + \lambda_0}{\rho_0} \right)^{1/2} \quad \text{et} \quad C_S = \left( \frac{\mu_0}{\rho_0} \right)^{1/2} \quad (1.8)$$

ou bien en fonction du module d'Young  $E_0$  et du coefficient de Poisson  $\nu_0$  du matériau :

$$C_P = \left( \frac{E_0(1 - \nu_0)}{\rho_0(1 + \nu_0)(1 - 2\nu_0)} \right)^{1/2} \quad \text{et} \quad C_S = \left( \frac{E_0}{2\rho_0(1 + \nu_0)} \right)^{1/2} \quad (1.9)$$

Notons que la célérité  $C$  est liée à la fréquence et à la longueur d'onde via la relation  $C = \lambda \cdot f$  [112].

Les ondes P, ou encore ondes de compression, et les ondes S, ou ondes de cisaillement, sont des ondes de volume<sup>9</sup> qui se propagent au sein des milieux. Les ondes P (respectivement S)

---

9. Les ondes de surface se propagent, quant à elle, le long des interfaces entre les milieux ou dans les milieux à

sont caractérisées par le fait que la matière vibre parallèlement (respectivement, perpendiculairement) à la direction de la propagation de l'onde. Au contraire des ondes P qui existent dans les milieux solides, fluides et gazeux, les ondes S ont besoin d'un minimum de rigidité de cisaillement pour se propager, *e.g.* dans les milieux solides ou les milieux fluides très visqueux. Les ondes P et S coexistent donc au sein d'un matériau solide et obéissent aux lois classiques de réflexion/réfraction au passage d'une interface, tout en étant couplées.

Compte tenu des valeurs courantes du module d'Young et du coefficient de Poisson des matériaux, il est remarqué via les relations (1.9) de  $C_P$  et de  $C_S$  que les ondes P se propagent à une vitesse supérieure de 50% à 100% à celle des ondes S [113]. Le Tableau 1.1 présente à titre d'exemple les vitesses de propagation des ondes de compression au sein de différents milieux. Plus le milieu est rigide<sup>10</sup>, plus la vitesse de propagation est élevée.

TABLEAU 1.1 – VITESSE DE PROPAGATION DES ONDES DE COMPRESSION DANS DES MILIEUX DE MASSES VOLUMIQUES DIFFÉRENTES [114]

Milieu	Vitesse de propagation des ondes P (m.s <sup>-1</sup> )	Masse volumique (kg.m <sup>-3</sup> )
Air	340	1
Eau	1500	1000
Plexiglass	2700	1180
Béton	4000	2400
Verre	5200 à 5800	2500
Acier	5600 à 5800	7700

La célérité d'une onde dépend alors fortement des propriétés du matériau, notamment de sa masse volumique et de ses coefficients d'élasticité, comme en attestent les relations (1.9) et le Tableau 1.1.

Dans le cas d'un milieu granulaire non cohésif, l'application d'une sollicitation extérieure  $p$  conduit à une augmentation du nombre de contacts entre les billes, favorisant ainsi la propagation des ondes et induisant une augmentation de la vitesse de propagation des ondes en  $p^{1/4}$  aux faibles pressions, et en  $p^{1/6}$  aux fortes valeurs de  $p$  (loi de Hertz-Mindlin). Ce résultat a été vérifié expérimentalement au sein d'empilements de billes de verres (non fragmentables et indéformables) de centaines de micromètres et contraints à des pressions statiques inférieures à 3 MPa [106, 108].

La vitesse de propagation des ondes au sein d'un matériau granulaire non-cohésif dépend donc également du nombre de coordination, de la compacité du milieu et de la pression de confinement [115].

géométrie particulière (*e.g.*, guide d'ondes). Nous pouvons citer par exemple, les ondes de Rayleigh et de Lamb.

10. Un matériau est dit rigide lorsqu'il résiste aux efforts de torsion et de cisaillement. Cela induit un module d'élasticité élevé.

### 1.3.1.2 Facteurs influençant la propagation des ondes

La propagation des ondes au sein d'une structure peut être influencée par les propriétés physiques des matériaux qui la composent, par les hétérogénéités en présence, mais aussi par la géométrie de cette structure. Cette influence peut se traduire de plusieurs façons (pas forcément découplées).

Premièrement, les caractéristiques initiales de l'onde peuvent être modifiées. Par exemple, dans le cas d'un milieu absorbant, il est observé une *atténuation* de l'amplitude de l'onde au cours de sa propagation, due à une *dissipation de l'énergie*, souvent associée à une *dispersion de vitesse* (*i.e.*, dépendance fréquentielle de la vitesse) et un décalage du spectre fréquentiel vers les basses fréquences, ce qui induit un étalement de la forme d'onde initiale.

Deuxièmement, des ondes additionnelles transportant une part de l'énergie de l'onde incidente peuvent être créées. Par exemple, une interface rugueuse autorise non seulement la *réflexion/réfraction* des ondes, mais peut également, selon les ratios hauteur de rugosités/longueur d'onde et longueur d'onde spatiale/longueur d'onde du réseau rugueux, favoriser l'apparition d'ondes supplémentaires propagatives (dites *diffractées* d'ordre élevé) plus ou moins énergétiques.

Troisièmement, le trajet de l'onde peut être dévié. Par exemple, la présence d'hétérogénéités de petites tailles ou de taille équivalente à la longueur d'onde, telles que des fissures, au sein d'un matériau, peut induire la *diffusion* des ondes qui sont ainsi « éparpillées » dans toutes les directions.

En conclusion, nous devons garder à l'esprit que les ondes sont susceptibles d'être fortement impactées par tous ces phénomènes physiques au cours de leur trajet entre la source qui les a générées et le capteur.

## 1.3.2 Généralités sur l'émission acoustique

### 1.3.2.1 Définitions

Lorsqu'un matériau soumis à des contraintes subit localement une déformation, une partie de l'énergie libérée apparaît sous la forme d'ondes élastiques qui se propagent dans le matériau. L'ensemble de ces ondes constitue l'*émission acoustique*, notée « EA » par la suite. D'après la norme NF EN 1330-9 [116], l'EA est un phénomène de création d'ondes élastiques transitoires résultant de micro-déplacements locaux internes à un matériau. Ces ondes élastiques transitoires sont générées au sein d'un matériau par une relaxation rapide de l'énergie due à des phénomènes physiques, tels que les déformations plastiques, la formation et la croissance de fissures. Une déformation élastique ne libérant pas d'énergie n'émet donc pas d'onde élastique. La technique par EA consiste alors à détecter ces ondes pour en extraire des informations en temps réel sur le comportement mécanique du matériau [117].

L'apparition d'un micro-déplacement engendrant ces ondes élastiques transitoires est appelée un *évènement*. Le lieu où apparaissent les évènements d'EA est nommé une *source*. Les mécanismes de déformation plastique, de rupture, de frottement, d'impacts mécaniques, de corrosion

ou de transformation de phases sont des exemples de sources d'EA. D'un point de vue énergétique, une source d'EA est un lieu de dissipation d'énergie mécanique par brusque variation du champ de contrainte. Seule une partie de cette énergie est disponible pour la création d'ondes élastiques, et l'énergie reçue par un capteur d'émission acoustique, noté « capteur EA » par la suite, est beaucoup plus faible du fait des pertes par atténuation, de la directivité des capteurs, de l'existence d'un seuil de détection, et de la largeur de la bande de fréquence limitée. Ces points seront développés dans le paragraphe 2.4.3 (p.77).

Enfin, l'*émissivité* d'un matériau granulaire correspond à sa capacité à absorber et à réémettre l'énergie, en l'occurrence l'énergie mécanique, lors de la compaction de ce matériau. Toutefois, de nombreux facteurs, pouvant être classés en deux catégories, influencent l'émissivité d'une structure :

- les caractéristiques intrinsèques du matériau : distribution de taille et de forme des particules, géométrie du réseau des contacts entre les particules, homogénéité, isotropie, ductilité, transformation structurale,
- les conditions extérieures de sollicitation : vitesse de mise en charge, état de contrainte, température, histoire antérieure et environnement.

### 1.3.2.2 Types d'émission acoustique et paramètres de salve

Il existe deux types d'EA, *continue* et *discrète*. L'émission continue (Figure 1.23a) est constituée d'un grand nombre de signaux aléatoires de faible amplitude qui se superposent les uns aux autres et qui s'ajoutent au bruit de fond. Elle est généralement associée à des phénomènes faiblement énergétiques tels que des frottements ou des déformations plastiques. L'émission discrète ou pulsée (Figure 1.23b) correspond à une suite aléatoire d'événements de faible durée et d'énergie importante, bien séparés les uns des autres. Ce type d'émission témoigne souvent de la présence de phénomènes énergétiques et rapides (fissuration, rupture). Après amplification, l'émission discrète se manifeste par une suite de sinusoïdes amorties, appelées *salves*.

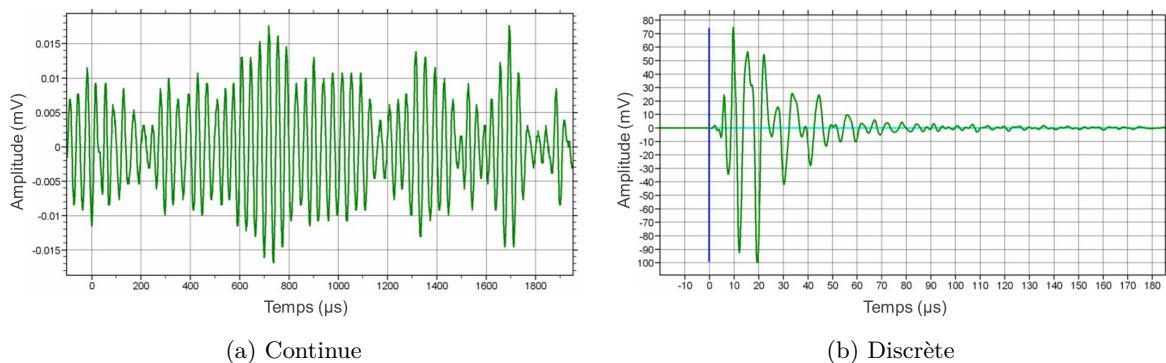


Figure 1.23 – Types d'émission acoustique [116].

Une *salve* est un signal de forme transitoire caractérisé par une montée rapide de l'amplitude des oscillations à partir d'un niveau de référence initial (seuil), puis par une décroissance, généralement plus lente et due à l'amortissement de la structure, jusqu'à une valeur proche du niveau initial (Figure 1.24). Lorsque la salve est numérisée, des paramètres caractéristiques du signal d'EA sont extraits, calculés et représentés pour affichage selon le mode choisi par l'utilisateur.



Ces paramètres permettent de caractériser un type de signal, sachant qu'il est généralement nécessaire d'en coupler un certain nombre pour identifier une signature acoustique d'un mécanisme physique.

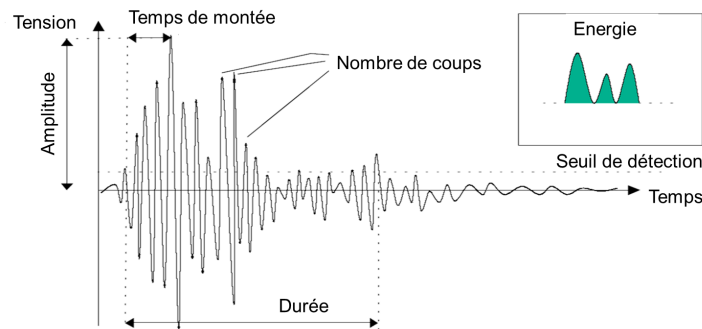


Figure 1.24 – Principaux paramètres mesurés en temps réel sur une salve d'EA.

L'Annexe C (p.169) répertorie tous les paramètres que le logiciel que nous utilisons permet d'extraire et les paramètres que nous exploitons en particulier dans cette étude sont détaillés ci-dessous :

- l'*amplitude* qui est la valeur du coup de plus forte amplitude. Elle gouverne la détectabilité d'un évènement et est exprimée en décibels (dB), avec  $V_{max}$  la tension du signal électrique et  $V_0$  la tension de référence (conventionnellement égale à 1  $\mu\text{V}$ ) :

$$dB = 20 \log_{10} \frac{V_{max}}{V_0} \quad (1.10)$$

- le *nombre de coups* qui correspond au nombre de franchissements de seuil par le signal sur toute sa durée. C'est une mesure simple de la « taille » du signal : plus le signal est large et plus le nombre de coups est important. Il caractérise l'activité acoustique d'un matériau sous sollicitation,
- la *durée* qui correspond au temps qui sépare le premier et le dernier coup. Elle est donc fortement liée au nombre de coups, mais est davantage utilisée pour de la discrimination que pour des mesures quantitatives d'EA. Par exemple, un évènement long (quelques dizaines de microsecondes) dans les composites est un indicateur de délamination [118,119],
- le *temps de montée*, exprimé en microsecondes, qui est associé au temps compris entre le déclenchement de la salve, soit le premier dépassement de seuil, et le coup de plus forte amplitude. Il peut servir à discriminer des phénomènes tels que les interférences électromagnétiques qui ont un temps de montée très court,
- la *fréquence moyenne* qui est le nombre de coups d'une salve divisé par sa durée (et non la transformée de Fourier du signal). Elle s'exprime en kHz,
- la *fréquence centroïde* qui correspond au centre de gravité fréquentiel d'une densité spectrale de puissance<sup>11</sup>. Elle s'exprime en kHz,
- l'*énergie absolue*, exprimée en atto ( $10^{-8}$ ) Joule (aJ) qui est l'intégrale de la tension  $V$  du signal au carré sur la durée de la salve. Elle caractérise l'énergie générée par un évènement dans l'échantillon.

11. DSP : carré du module de la transformée de Fourier du signal, divisé par le temps d'intégration.

Précisons que les valeurs des paramètres de salves ne peuvent être directement liées au mécanisme source car des fonctions de transfert présentes sur toute la chaîne de détection de l'EA (cf. §2.4.3, p.77) viennent modifier les caractéristiques de l'onde émise. Par ailleurs, certains paramètres se prêtent davantage à l'étude de mécanismes en particulier. Intuitivement, un phénomène de choc entre deux particules sera caractérisé de manière privilégiée par l'énergie de la salve, alors que les signaux dus au frottement entre elles seront davantage identifiés par la durée des salves.

### 1.3.3 Acoustique dans les milieux granulaires sous contrainte

Que les ondes soient de cisaillement ou de compression, le mécanisme sous-jacent à la propagation d'une onde dans un matériau granulaire reste le même que dans tout autre solide. La particule qui subit le déplacement imposé entraîne sa particule voisine grâce aux forces de liaisons, avec un certain retard. Cette dernière particule joue ensuite le même rôle pour la suivante, et ainsi de suite. Les ondes se propagent de fait le long des particules en contact qui forment le réseau de force décrit au paragraphe 1.1.2.3 (p.10).

Un certain nombre d'auteurs se sont particulièrement intéressés à la propagation d'ultrasons de faible amplitude dans un milieu constitué de billes de verre de centaines de micromètres. Il est à noter que ces milieux granulaires confinés sont non fragmentables et indéformables, ainsi que majoritairement non cohésifs. Néanmoins, au travers de ces essais simples aux caractéristiques maîtrisées, la transmission acoustique fournit une interprétation de la forme des signaux et des éléments de réponse concernant l'influence sur la propagation des ondes de la présence d'un fluide dans le milieu, de la taille des billes, de la cohésion du milieu et des conditions de compaction.

#### 1.3.3.1 Signaux acquis au sein de milieux granulaires statiques

Les signaux des ondes ultrasonores se propageant dans les milieux granulaires ont été étudiés de manière approfondie à l'aide d'expérimentations aux conditions maîtrisées. Jia et al. [106] ont émis une pulsation d'ultrasons au sein d'un empilement de billes de verre contraint à 0,75 MPa, avec une longueur d'onde très grande devant la taille des billes. Le signal reçu est composé de deux parties, nommées signal (E) et signal (S), comme illustré sur la Figure 1.25a.

Le signal (E) cohérent est très semblable à celui de l'émission. Il correspond au signal moyen effectif de la propagation de l'onde dans le milieu. Quel que soit l'arrangement des billes, ce signal est très reproductible en terme de vitesse de groupe<sup>12</sup> qui coïncide avec la mesure de la vitesse effective de temps de vol du signal.

Le signal (S) irrégulier est quant à lui attribué aux ondes multiples diffusées (*speckle* ou *coda acoustique*). Il correspond aux ondes se propageant au travers de chemins qui suivent le réseau hétérogène de contacts entre les billes. Il est alors très sensible au réseau de contacts et à la sollicitation extérieure, puisque ses paramètres de salve (amplitude, durée,..) changent entre les différents essais réalisés à la même contrainte statique de confinement.

Par ailleurs, le signal (E) possède une bande de fréquences étroite et décalée vers les basses

---

12. Vitesse de propagation d'un paquet d'onde.

fréquences, alors que le signal (S) présente un spectre fréquentiel large, irrégulier et hautes fréquences (Figure 1.25b).

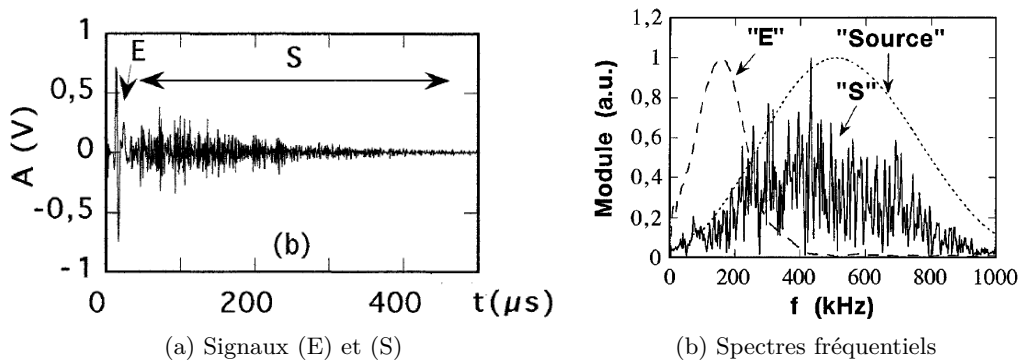


Figure 1.25 – Signal ultrasonore ayant traversé des billes de verres de taille 400-800  $\mu\text{m}$  contraintes à 0,75 MPa dans un cylindre de diamètre interne 30 mm et de hauteur 35 mm : a) amplitude (en Volts) en fonction du temps, b) spectre fréquentiel des signaux (E), (S) et du signal source [106].

De plus, Jia et al. [106] ont montré que l'amplitude du signal (S) devient plus grande que celle du signal (E) lorsque la longueur d'onde  $\lambda$  est environ égale à la taille  $d$  des billes. Cela signifie que lorsque  $\lambda \approx d$ , les effets de diffusion causés par les fluctuations de densité et de raideur de l'empilement deviennent considérables, et le signal récupéré présente la forme irrégulière de la coda acoustique. En revanche, lorsque  $\lambda \geq 10d$ , la propagation des ondes élastiques se fait essentiellement de manière cohérente, comme dans un milieu effectif continu. Il est à noter qu'il n'y a pas de propagation possible à des longueurs d'ondes plus petites que la taille des billes. Ajoutons que les amplitudes respectives de la partie cohérente et de la coda sont contrôlées par la taille des transducteurs utilisés.

Enfin, l'onde diffusée (S) s'étale sur plusieurs centaines de microsecondes, et l'onde cohérente (E) est détectée seulement après une dizaine de microsecondes. L'onde diffusée a donc le temps d'explorer l'échantillon en se propageant à travers le réseau des contacts. Elle est donc extrêmement riche en information et renferme la signature d'une configuration donnée de l'empilement des billes. Ainsi, les réarrangements des réseaux de contact ont pu être quantifiés au moyen d'un degré de ressemblance entre deux codas isolées sur des intervalles de temps réguliers (fonction d'inter-corrélation) [120, 121].

Pour conclure, les ondes se propageant dans les matériaux granulaires hétérogènes peuvent être scindées en deux parties. La première partie dite cohérente correspond à l'onde effective ayant propagé dans le milieu homogène. La deuxième partie, dite incohérente et également appelée coda, est constituée d'arrivées tardives des ondes ayant subi plusieurs événements de diffraction, *i.e.* diffusion multiple. Elle s'étend alors temporellement sur plusieurs dizaines de fois la durée de l'impulsion initiale.

Le calcul des vitesses de propagation et d'atténuation des ondes révèle que les phénomènes d'absorption sont plus importants dans les milieux hétérogènes (peu cohésifs) car une partie de l'énergie incidente des ondes est déviée par les hétérogénéités. Ainsi, l'amplitude des ondes a tendance à augmenter, et les fréquences à décaler vers les hautes fréquences, avec la cohésion d'un matériau granulaire.

Nous pouvons alors supposer que dans notre étude le mode de propagation sera fortement diffusif au début de la compaction des particules d'UO<sub>2</sub>, et qu'il évoluera vers un mode majoritairement gouverné par l'onde effective à la fin de la compaction, avec un décalage vers les hautes fréquences.

### 1.3.3.2 Interactions non linéaires

Différents effets observés au cours des expériences témoignent que la non-linéarité des ondes propageant dans les milieux granulaires est régie simultanément par les inhomogénéités et les défauts de structure (porosités, fissures) [103,122], par la présence de fluide [110] et de réseau de contacts faibles entre les billes [123]. Moussatov et al. [124] sont les premiers à avoir distingué le mode de propagation dans la structure solide de celui dans la structure fluide, chacun des modes possédant des paramètres de dispersion de vitesse et d'atténuation différents. Ils ont en effet pu calculer la vitesse de propagation des ondes dans chacune des phases, et ont observé une propagation légèrement plus rapide dans les espaces saturés en air que dans les billes de verre millimétriques.

Par la suite, Legland et al. [110] ont étudié plus précisément la transmission d'ondes acoustiques au sein d'un dispositif similaire, *i.e.* un empilement de billes de verre saturé en air. L'analyse de la fonction de transfert au sein de l'empilement statique (Figure 1.26) a révélé un comportement fréquentiel bien distinct entre la phase solide (billes) et la phase fluide (air), dont la séparation est identifiée par une fréquence de coupure  $f_c$  ( $f_c \approx 1,7 \cdot 10^4$  Hz sur la Figure 1.26). Pour des fréquences inférieures à  $f_c$ , la propagation des ondes semble contrôlée par les propriétés de la phase solide, alors qu'au-delà, la propagation est régie par les propriétés de la phase fluide. Une troisième bande de fréquence plus élevée est attribuée aux phénomènes de diffusion multiple (§1.3.3.1, p36).

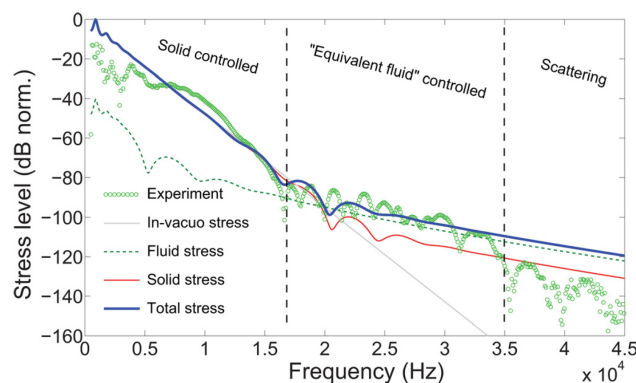


Figure 1.26 – Fonction de transfert acoustique au sein d'un empilement sous contrainte de billes de verres de 700 µm de diamètre – Mise en évidence de trois bandes de fréquences associées respectivement aux billes, au fluide et à la diffusion multiple des ondes [110].

Par ailleurs, Legland et al. [110] ont mis en évidence une forte influence de la pression de confinement et de la taille des billes sur la bande de fréquences associée à la phase solide uniquement.

### 1.3.3.3 Influence des caractéristiques du milieu granulaire

Le réseau de contact, la taille et la cohésion des billes, la présence d'un fluide dans le milieu, et les conditions de chargement sont des facteurs qui influencent considérablement la propagation des ondes dans le milieu granulaire en termes de célérité et de paramètres des signaux (amplitude, durée, fréquence).

#### Influence de la taille

La taille des billes peut modifier le signal acoustique car si elle est proche de la longueur d'onde, des phénomènes diffusifs peuvent se produire (*cf.* §1.3.3.1, p.36). De plus, Chen et al. [125] ont suivi par EA la rupture d'échantillons de ciment cisailé par flexion trois points. Ils ont révélé que l'énergie de rupture est d'autant plus élevée que la taille des agrégats constituant le barreau est grande.

#### Influence de la cohésion

Un moyen d'augmenter la cohésion d'un matériau céramique est de le fritter à une température suffisante pour amorcer la densification des particules entre elles.

Tout d'abord, Papargyri-Mpeni et al. [126] ont mis en évidence le rôle de la cohésion dans la propagation des ondes émises par la rupture d'éprouvettes céramiques par flexion 3 points. Avant frittage, les éprouvettes de kaolin et de verre sodocalcique se fragmentent à faible charge, sans émission d'EA. Lorsque les mêmes essais sont réalisés sur les éprouvettes frittées, les EA sont beaucoup plus nombreuses, même à faible charge. De plus, l'activité acoustique augmente avec l'élévation de la température de frittage, induisant une consolidation de la structure. L'amélioration de la cohésion des éprouvettes conduit d'une part, à créer des liaisons solides entre les particules élémentaires servant alors de guides d'onde, et d'autre part à générer davantage de micro-fissures sous-critiques émettant des EA puisque la rupture se produit à une charge plus élevée.

Ensuite, lors du frittage d'un matériau granulaire, les surfaces de contact entre les particules et les liaisons entre elles augmentent, conduisant à une évolution des propriétés élastiques du solide entre l'état non cohésif (compact cru, réseau de contact hétérogène) et l'état fritté (solide plus homogène), et par conséquent à une modification de la propagation des ondes. Langlois et Jia [121] ont clairement montré que la célérité de l'onde de compression augmente progressivement pendant le frittage d'un empilement de billes de PMMA<sup>13</sup> placé sous contrainte statique (Figure 1.27a), et plus précisément dès le début de la densification du milieu (stade II). De plus, cette évolution est similaire quelles que soient les conditions de chargement (entre 250 et 750 kPa) et la température de frittage du palier (entre 90 et 120°C).

Les signaux des ondes transmises sont analysés à différentes étapes du cycle thermique. Premièrement, le signal ayant propagé dans le matériau fritté (cohésif) possède une onde cohérente (E) dominante devant l'onde de diffusion multiple (S), comparé au signal ayant traversé l'empilement cru (non-cohésif) pour lequel l'onde (S) est prépondérante (Figure 1.27b). Deuxièmement, l'amplitude de l'onde (E) augmente progressivement au cours du frittage. Ce résultat est attri-

---

13. Polyméthacrylate de méthyle : polymère thermoplastique transparent plus connu sous nom commercial de Plexiglass®

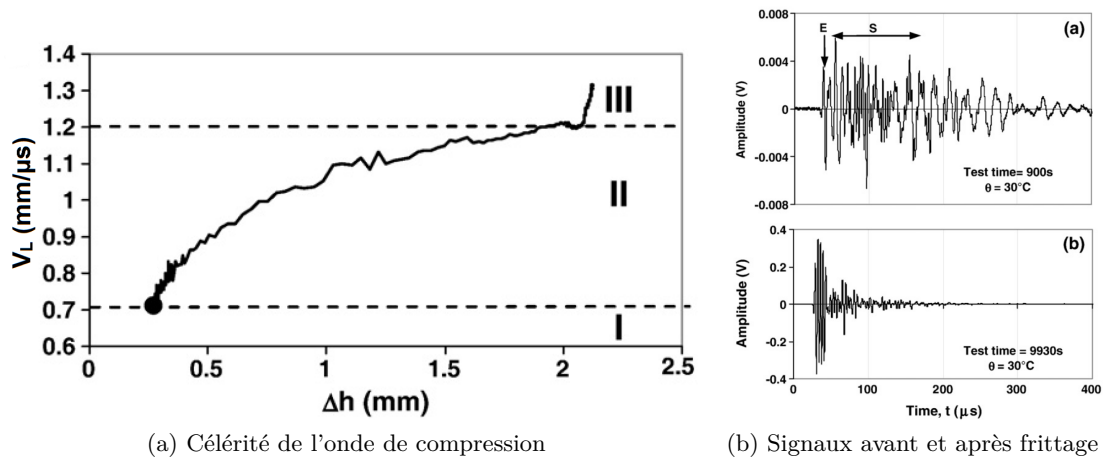


Figure 1.27 – Frittage d’un empilement de billes de PMMA sous contrainte statique  $P \approx 500$  kPa : a) évolution de la célérité de l’onde de compression  $C_P$  en fonction du retrait  $\delta h$  au cours des stades I, II et III (cf. §1.2.4, p.26), b) signaux des ondes propageant dans l’empilement (a) avant frittage, (b) après frittage [121].

bué à la diminution de l’atténuation de l’onde (E) pendant le frittage. En effet, le coefficient  $\alpha$  dépend du ratio  $d^*/\lambda_E$  [127, 128], avec  $\lambda_E$  la longueur d’onde de l’onde (E) et  $d^*$  la taille caractéristique des hétérogénéités (pores, fissures, . . .), soit du ratio  $f \cdot d^*/C_P$  car  $C_P = \lambda_E \cdot f$ . Ainsi,  $C_P$  augmentant et les hétérogénéités se résorbant au cours du frittage, l’atténuation diminue par conséquent. Troisièmement, la transmission de l’onde (E) est décalée vers les hautes fréquences au cours du frittage.

#### Influence du fluide

L’influence de la présence d’un fluide au niveau des surfaces de contact des billes a été étudiée par Griffiths et al. [108]. Ils ont plongé des billes de verre de taille 400-600  $\mu\text{m}$  dans des fluides de viscosités variables, et ont soumis l’empilement à une contrainte statique comprise entre 0,8 et 3 MPa. La présence d’eau entre les billes provoque une diminution de la vitesse des ondes de compression, mais une augmentation de la vitesse des ondes de cisaillement, par rapport au cas sec, sans perte d’énergie dans les deux cas. En revanche, l’ajout d’huile induit une augmentation de la vitesse de propagation des ondes, supérieure à celles des essais secs et humides, et elle l’est d’autant plus que l’huile est visqueuse. Ces résultats s’expliquent par le fait que le fluide visqueux remplit les aspérités de surface des billes, et de fait augmente les surfaces de contact [107].

#### 1.3.3.4 Rupture fragile

Le suivi par EA de l’endommagement de structures est aujourd’hui largement utilisé dans l’industrie pour localiser des fissures/défauts et contrôler leur croissance. De nombreuses études se sont focalisées sur la détection de défauts dans les métaux [129, 130], les composites [131–133], et en particulier les bétons [134–137]. Ces matériaux présentent toutefois une microstructure particulière, composée de plusieurs phases solides aux comportements mécaniques bien dissociés (rupture matrice/fibre et matrice/agrégats), et dont la rupture se produit suite à une déformation plastique en tête de fissure [138]. Comme l’ont justement fait remarquer Hakanen et Laine [139], la structure métallique d’une presse peut donc émettre des EA lors de la compression de poudre,

lorsque les contraintes sont suffisantes pour impliquer des déformations de cette structure.

Dans les céramiques, la déformation plastique est très faible, et la rupture fragile est initiée par l'amorçage d'une microfissure puis de sa propagation. Un moyen simple de suivre l'EA de l'endommagement d'une céramique consiste à solliciter un échantillon par un essai mécanique en traction [131], en compression [125, 126, 140–142], ou par indentation [143].

La Figure 1.28a met en parallèle les courbes de charge et d'EA lors d'un essai de flexion 3 points sur un barreau de verre poreux fritté [140]. L'EA associée à la fissuration est acquise sous forme d'évènements discrets qui sont comptabilisés toutes les secondes. L'apparition des premiers signaux coïncide avec la première déviation à la linéarité de la courbe de charge, *i.e* vers 5 N. Puis le taux d'évènements augmente brusquement lorsque la rupture se produit, visible par la diminution nette de la courbe de charge, lorsque le déplacement vaut environ 60  $\mu\text{m}$ . Il est à noter que l'EA est ici un indicateur de l'imminence de la rupture, mais que cette technique étant fortement matériau dépendante [144, 145], toutes les céramiques ne présentent pas une EA notable bien avant la rupture.

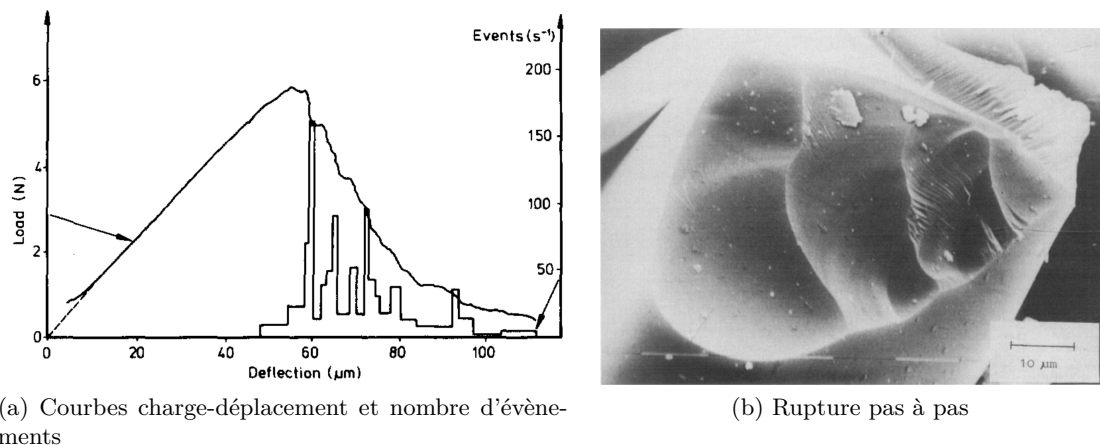


Figure 1.28 – Essai de flexion 3 points sur un barreau de verre poreux fritté dont la taille moyenne des grains est de 45  $\mu\text{m}$  : a) courbe charge-déplacement (load-deflection) corrélée au nombre d'évènements d'EA par seconde, b) micrographie MEB de la surface de rupture de l'éprouvette mettant en évidence les stades d'avancement de la fissuration [140].

Des essais similaires sur des éprouvettes de tailles de grain différentes ont permis à Knehan et al. [140] d'en déduire plusieurs informations sur la relation entre l'EA et la fissuration :

- le nombre total d'évènements est proportionnel à la surface de rupture de l'échantillon,
- le taux d'évènements ( $\text{s}^{-1}$ ) est proportionnel à la vitesse d'avancement de la fissure,
- la géométrie de la fissure n'a pas d'influence sur le taux d'évènements,
- le taux d'évènements par grain augmente avec la taille des grains, ce qui suggère que la fissure se propage pas à pas (ou par « à coups »), et chaque évènement d'EA acquis correspond à un saut. Cette hypothèse est appuyée par des observations MEB des surfaces de rupture (Figure 1.28b).

La propagation sous-critique d'une fissure pas à pas, dite instable, est due à la présence de grains rigides, de pores ou d'inclusions dans la microstructure. Lorsque cette source libère de l'énergie, le signal d'EA correspondant est de type discret (Figure 1.29) [143]. Chaque salve est

alors associée à un saut si la propagation sous-critique de la fissure est suffisamment lente pour que ce phénomène se produise.

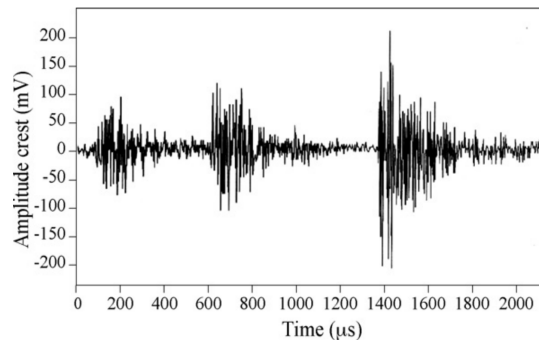


Figure 1.29 – Signal discret émis par une rupture [143].

Ajoutons qu'il existe une relation entre l'avancement d'une fissure et l'EA émise par cette propagation [146].

### 1.3.3.5 Réarrangements granulaires

Les réarrangements granulaires induisent des glissements entre les particules ainsi que des collisions par création de contacts intergranulaires. La formation ou la suppression des contacts et les frottements intergranulaires conduisent à une libération d'énergie sous forme d'ondes élastiques. Les deux phénomènes sont étudiés de manière dissociée dans la littérature.

Tout d'abord, les phénomènes de frottement conduisent à des vibrations et des ondes élastiques qui sont générées par des processus d'abrasion et déformation d'aspérités en surface [147–149], ainsi qu'à l'usure et le broyage de débris/fragments présents entre deux surfaces en contact [150]. Afin d'isoler expérimentalement ces mécanismes, les phénomènes de frottement sont généralement créés par un glissement contrôlé entre deux surfaces de rugosité connue [151].

Johnson et al. [152] ont cisailé deux couches de billes de verres (Figure 1.30a) et enregistré l'EA générée par leurs réarrangements, à savoir les frottements entre les billes ainsi qu'entre les billes et la plaque centrale imposant le cisaillement. Les EA acquises correspondent alors aux phénomènes de collé-glissé et à des phénomènes précurseurs qui induisent en particulier des micro-glissements à l'échelle des aspérités, ainsi que des micro-ruptures de ces aspérités. Le taux de micro-glissements a été mis en parallèle des EA et de la contrainte de cisaillement imposée par la plaque (Figure 1.30b). Les résultats ont clairement mis en évidence que les EA des événements précurseurs sont majoritairement dues aux micro-glissements. Notons que des EA générées par le phénomène de collé-glissé sont de plus fortes amplitudes que celles des micro-glissements.

Ensuite, les phénomènes de collision sont simplement étudiés par l'impact de particules sur une surface rigide [153, 154], ou d'un seul grain sur une chaîne de particules [155], ou encore par la collision d'un percuteur avec un lit granulaire [156].

Enfin, nous pouvons également envisager que la suppression brutale de contacts existants libère rapidement de l'énergie. Pour comprendre cette libération d'énergie et la génération d'EA associée, il est indispensable d'étudier la distribution des forces de contact dans un empilement



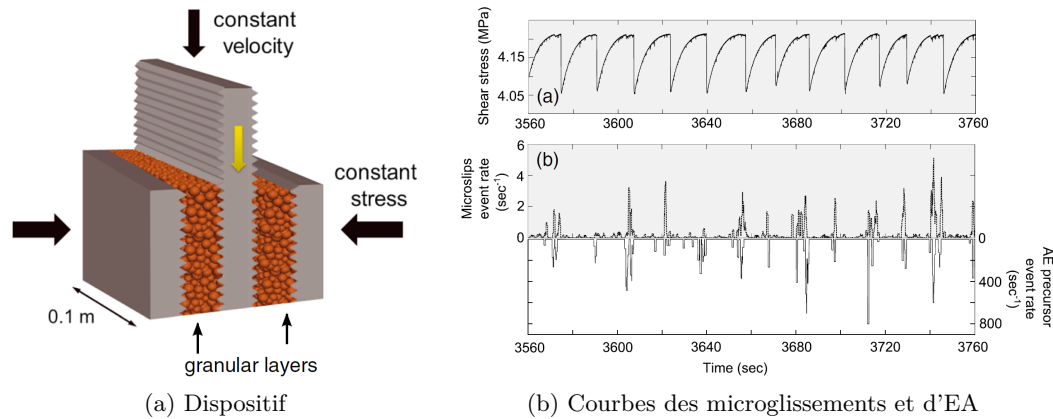


Figure 1.30 – Réarrangements de deux couches de billes de verre par cisaillement d'une plaque à vitesse constante et acquisition d'EA : a) dispositif expérimental, b) corrélation des microglissements avec l'EA : (haut) contrainte de cisaillement imposée par la plaque en fonction du temps, (bas) taux de micro-glissements (*microslips event rate*) et taux d'EA due aux événements précurseurs (*AE precursor event rate*) [152].

granulaire (*cf.* §1.1.2, p.7). En effet, les EA générées par les contacts entre les grains dus au réarrangement peuvent être fortement favorisées par une distribution de force hétérogène dans les matériaux granulaires désordonnés, en particulier à travers les concentrations de forces élevées, dites chaînes de force.

Hidalgo et al. [157] ont mis en évidence un lien entre les chaînes de force créées par les réarrangements et les EA générées dans un empilement de billes de verre soumis à un chargement uniaxial. Ils ont introduit un modèle statistique basé sur l'hypothèse que les chaînes de forces apparaissent avec l'augmentation de la charge jusqu'à une force de saturation. L'augmentation de la charge provoque simultanément la rupture de chaînes individuelles. Cela induit une fluctuation des contacts moyens par particule, et donc des zones d'émission d'ondes élastiques au niveau des zones de cisaillement.

La signature acoustique des phénomènes de collision et glissements entre les granules n'est pas clairement définie dans la littérature, quel que soit le matériau granulaire. Dans notre cas, nous nous attendons éventuellement à des signaux de quelques kHz et plus continus que pour la fragmentation.

### 1.3.4 Etat de l'art de l'émission acoustique pendant la compaction

La propagation d'ondes acoustiques dans les milieux granulaires, avec toute sa complexité induite par les modes effectifs, la diffusion multiple des ondes, les effets non linéaires, représente en soi un sujet d'études fondamentales. Elle fournit aussi une méthode intéressante d'investigation non intrusive de la structure et des propriétés mécaniques de ces matériaux [21, 26, 106, 158, 159].

L'EA est aujourd'hui un outil de contrôle non destructif de l'endommagement des matériaux puisque la création de défauts émet des EA (*cf.* §1.3.3.4, p.40). Cette technique est utilisée dans le domaine du génie civil (détection de fuites et corrosion au sein de réservoirs de stockage, cuves de réacteurs nucléaires, câbles, ponts, ...), de l'électrochimie (détection de gaz, de

TABLEAU 1.2 – ETUDES RELATIVES AU SUIVI PAR EA DE LA COMPACTION DE MATÉRIAUX GRANULAIRES COHÉSIFS ET FRAGMENTABLES

Auteurs	Etude de l'EA	Matériau	Conditions Expérimentales	Descripteurs et techniques
WARING 1987	Classification des mécanismes de compaction par EA	Poudre pharmaceutique (32-250 $\mu\text{m}$ )	Compression uniaxiale (270 MPa, 10 mm/min)	Nombre de coups et d'évènements, ASL
KERBOUL 1992	Détection de défauts lors de la compression	UO <sub>2</sub> (22 $\mu\text{m}$ )	Compression uniaxiale (400-500 MPa)	Amplitude, $V_{rms}^*$
KATHRINA 1997	Corrélation des EA avec le réarrangement des particules	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (100-300 $\mu\text{m}$ ) + renfort SiC	Compression uniaxiale (5-120 MPa), 2 cycles de compression	Nombre de coups, amplitude, durée, forme d'onde
SERRIS 2002	Corrélation des EA avec les mécanismes de compaction	Poudre pharmaceutique (360-500 $\mu\text{m}$ )	Compression uniaxiale (300 MPa)	Nombre cumulé de coups
ROUECHE 2003	Etude du taux de fragmentation pour une contrainte donnée	Sable (250-800 $\mu\text{m}$ )	Compression uniaxiale (0,5-50 MPa)	Nombre de coups
EISSA 2003	Corrélation des EA avec les mécanismes de compaction	Poudre pharmaceutique (20-150 $\mu\text{m}$ )	Compression uniaxiale (10 kN – 10 mm/min)	Amplitude au pic, temps de montée
FERNANDES 2010	Pilotage des mécanismes de compaction par EA	Sable (600-2000 $\mu\text{m}$ ), 3 cohésions différentes	Compression oedométrique (10-50 MPa – 0,05 mm/sec)	Amplitude, nombre de coups, densité spectrale (dB/Hz)

\*rms : root mean square (intensité moyenne)

phases chimiques), ou encore dans le domaine de la métallurgie des poudres métalliques [160], céramiques [96, 161–163], ou pharmaceutiques [139, 164–166]. En effet, les comprimés de poudre peuvent présenter des défauts qui se forment majoritairement au moment de l'éjection. Ainsi, des études expérimentales se sont portées sur le suivi par EA de l'étape d'éjection de compacts d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> [167] et de lactose [168]. Les défauts sont décelés en comparant respectivement le nombre d'évènements et les niveaux énergétiques de l'EA entre les compacts sains et défectueux.

L'étape de compaction est également étudiée par EA dans un objectif de compréhension des mécanismes de compaction de matériaux granulaires, liés à toutes les manifestations de frottement, déformations et fragmentations. Les matériaux céramiques que nous étudions se déformant très peu, nous ne traiterons que les mécanismes de frottement générés par les réarrangements granulaires et les fragmentations initiées par l'amorçage, puis la croissance de fissures.

Le Tableau 1.2 résume les différentes études, extraites de la littérature, consacrées à l'interprétation des EA acquises lors de la compaction de particules de natures, tailles et cohésions variables.

Au travers de ces études, les auteurs ont identifié des étapes spécifiques au cours de la compaction, établi des relations entre les caractéristiques des particules et l'EA, et mis en évidence l'influence des conditions expérimentales sur l'EA.

### 1.3.4.1 Identification des étapes de compaction

En 1987, Waring et al. [169] ont divisé la compaction de particules de centaines de micromètres en trois étapes, identifiées par EA en terme d'amplitude moyenne du signal (ASL). La première étape correspond à une augmentation rapide de l'ASL jusqu'à un pic maximal, puis une diminution de l'EA jusqu'à environ 60 MPa pour des particules de NaCl. En s'appuyant sur les travaux de Down [170], les auteurs ont attribué cette étape aux réarrangements des particules accompagnés de ruptures fragiles. La deuxième étape est pauvre en acquisition d'EA, alors que la contrainte continue à augmenter jusqu'au palier de compression. Il s'agit du stade de consolidation du compact pendant lequel les particules de NaCl subissent des déformations plastiques. La troisième étape correspond au déchargement durant lequel un pic de forte amplitude est enregistré. Ce pic est attribué aux frottements entre le compact et les parois de la matrice, car il est plus élevé lorsque les parois ne sont pas lubrifiées quelle que soit la poudre.

Eissa [144] a également différencié ces trois grandes étapes (réarrangement/fragmentation de particules fragiles, consolidation et éjection) lors de la compaction de poudres pharmaceutiques en suivant l'amplitude et le temps de montée des signaux. De plus, les temps de montée longs ont été attribués aux phénomènes frictionnels. Notons que dans notre étude la dernière étape nous intéresse peu et seules les deux premières étapes nécessitent d'être davantage investiguées.

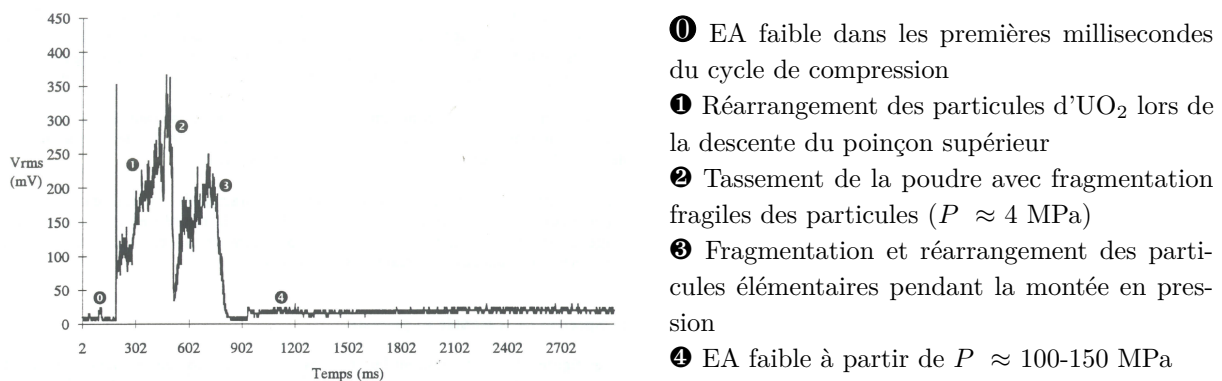


Figure 1.31 – EA représentée en tension efficace  $V_{rms}$  lors de la compression jusqu'à 400 MPa d'une poudre d' $UO_2$  (voie humide) [161].

Ces résultats ont été validés et complétés par Kerboul [161] en 1992 sur des poudres céramiques. La Figure 1.31 représente l'EA enregistrée en terme de tension efficace pendant la compaction jusqu'à 400 MPa ( $t \approx 2700$  ms) d'une poudre d' $UO_2$  obtenue par voie humide. Pour ces particules de taille moyenne 22  $\mu m$  (agrégats), deux sous-étapes se dissocient au niveau du début de la montée de la pression ( $t \approx 500$  ms). La première ① est attribuée au réarrangement des agrégats jusqu'à atteindre un empilement tassé ② qui provoque l'augmentation de la

contrainte et la fragmentation des agrégats. La deuxième sous-étape ❸ est affectée à la fragmentation totale des agrégats et au réarrangement des particules élémentaires les constituant. La diminution nette de l'EA vers 100-150 MPa suggère que tous les agrégats sont fragmentés à partir de cette contrainte. Remarquons que la vitesse de compression est très rapide pour cet essai et que les valeurs de contraintes évoquées sont propres à cette dynamique de pressage.

Plus récemment, Fernandes et al. [171] ont également retrouvé une évolution similaire de l'EA au cours de la compaction de grains de sables très cohésifs de tailles 600-850  $\mu\text{m}$ . Ils ont mis en parallèle l'amplitude et le nombre de coups cumulés avec l'évolution de la contrainte de compaction en fonction du temps (Figure 1.32).

En s'appuyant sur la courbe de contrainte et les travaux de Lambe et Whitman [172], ils ont défini trois régimes, délimités par des traits verticaux en pointillés sur la Figure 1.32 :

#### ❶ Régime de pré-cisaillement

L'augmentation de la contrainte est quasi-linéaire avec un taux de fragmentation faible ( $B_r \approx 0,02$ ). L'EA augmente progressivement en terme d'amplitude et de nombre de coups jusqu'à la contrainte  $\sigma_y$ . Ainsi, les réarrangements par glissements régissent la densification durant cette étape, pendant laquelle quelques grains seulement (certainement les plus fragiles) se fragmentent.

#### ❷ Régime élastique

Le début de ce régime est identifié par un point d'inflexion sur la courbe de contrainte et une augmentation du taux de fragmentation. Cela signifie que les grains se fragmentent beaucoup, conduisant à une perte de rigidité de l'empilement, d'où la rupture de la courbe de contrainte. Durant cette étape, la fragmentation des grains induit une augmentation des points de contact qui sont des chemins de propagation pour les ondes. Ainsi le nombre de coups continue à augmenter, alors que l'amplitude du signal diminue, certainement à cause de la diminution de la taille des grains de plus en plus fragmentés.

#### ❸ Régime de consolidation

Le début de ce régime correspond à un nouveau point d'inflexion de la courbe de contrainte qui devient à nouveau linéaire, pendant que le taux de fragmentation continue à augmenter. Ceci traduit un nouveau comportement de l'empilement granulaire, attribué à la consolidation du milieu. Le nombre de coups continue à augmenter, alors que l'amplitude demeure relativement constante. Les auteurs n'ont pas précisé les mécanismes de densification opérant pendant ce régime. Il est probable qu'il s'agisse de réarrangements et fragmentations de petits fragments.

En conclusion, nous constatons que quelles que soient les caractéristiques du matériau granulaire compacté, l'évolution des EA est similaire pour toutes les études et seules les contraintes délimitant les régimes définis évoluent avec la nature, la cohésion, la forme et la taille des particules.

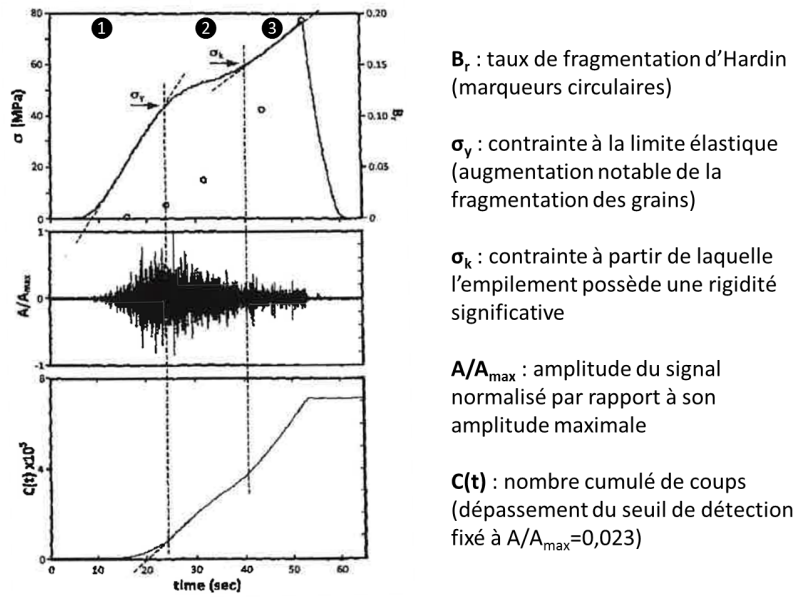


Figure 1.32 – Compaction de grains de sable cohésifs de taille 600-850  $\mu\text{m}$  : évolution de la contrainte et du facteur de fragmentation d'Hardin [173] (haut), de l'amplitude normalisée du signal EA (milieu), et du nombre de coups cumulés (bas), en fonction du temps (figure modifiée) [171].

### 1.3.4.2 Influence du matériau granulaire

L'influence de la cohésion des particules sur l'EA acquise lors d'un essai de compression oedométrique a été mise en évidence par Fernandes et al. [171] à partir de la densité spectrale de puissance (PSD) en fonction de la fréquence (Figure 1.33). Plus précisément, le spectre de l'EA lors de la descente libre du poinçon (*noise*) et celui lors de la compaction (*during loading*) ont été séparés pour chaque essai. Lors de la compaction de grains très cohésifs (Figure 1.33a), les deux spectres sont bien dissociés alors qu'ils sont confondus pour les grains les moins cohésifs (Figure 1.33b). Ce résultat montre que le matériau granulaire doit être suffisamment cohésif pour pouvoir détecter des EA propres aux mécanismes de compaction ; les auteurs n'ont pas précisé le degré de cohésion de chacun des lots de grains.

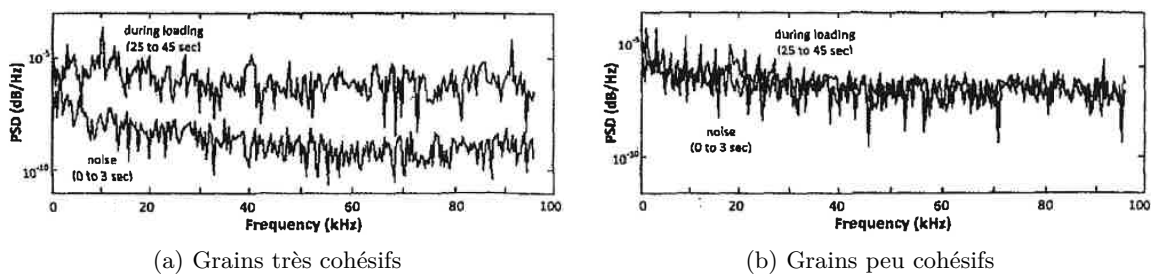


Figure 1.33 – Densité spectrale de puissance d'un signal d'EA enregistré lors de la compaction de grains de sable : a) les plus cohésifs, b) les moins cohésifs [171].

De manière générale, le suivi par EA de la compaction de matériaux granulaires montre que l'amplitude et le nombre de coups par salve des signaux augmentent avec la cohésion [162] et la taille [169] des particules.

### 1.3.4.3 Identification des fragmentations et réarrangements

Un moyen de vérifier que l'EA enregistrée au cours de la compaction d'une poudre est due à la fragmentation de ses grains est de mesurer la surface spécifique apparente  $s.s.a.$  de la poudre à différentes contraintes de compaction. En effet, une augmentation de la  $s.s.a.$  signifie que les grains, *i.e.* les agrégats, se fragmentent. Serris et al. [165] ont mis en évidence une augmentation de la  $s.s.a.$  d'une poudre d'aspirine ( $360 \mu\text{m} \pm 100 \mu\text{m}$ ) jusqu'à une contrainte de 60 MPa et ont observé une augmentation en parallèle du nombre cumulé de coups (Figure 1.34).

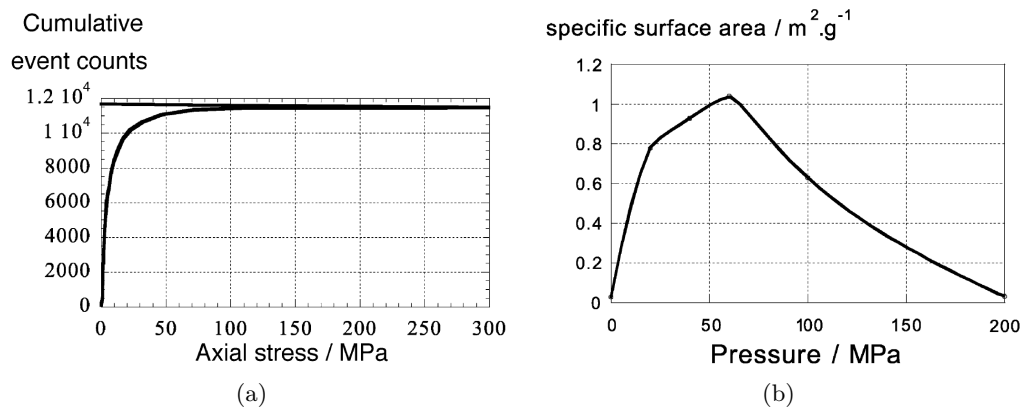


Figure 1.34 – Compaction de poudre d'aspirine jusqu'à 300 MPa : a) évolution du nombre cumulé de coups, b) évolution de la surface spécifique apparente.

La diminution de la  $s.s.a.$  au-delà de 60 MPa est due à la déformation plastique ou viscoplastique des grains qui provoque des recollements d'interfaces entre grains. Pour l'aspirine étudiée, cette déformation, bien réelle, n'est pas détectée par EA car elle est nulle entre 80 et 300 MPa, ainsi que durant le palier à contrainte constante et au cours de la décompression. La fragmentation semble être à l'origine d'une EA spécifique. Celle-ci est représentée par des salves et par la courbe croissante du nombre de coups en fonction du temps.

Rouèche et al. [96] ont démontré qu'il existe une relation étroite entre les signaux acoustiques émis au cours de la compression de sables de silice pure et l'aptitude des grains à se fragmenter. Cette étude a été réalisée sur cinq sables de composition identique, mais de granulométries et de morphologies différentes. Ils ont montré que l'EA cesse à un certain niveau de compression, *e.g.* environ 3 MPa sur la Figure 1.35. Ce niveau augmente avec la taille des grains de sable de départ, qu'ils soient arrondis ou anguleux.

Toutefois, les courbes granulométriques des grains récupérés à 10 puis 50 MPa montrent que les grains continuent à se fragmenter au-delà de cette contrainte de fin d'EA. Les auteurs ont alors proposé deux interprétations à l'absence d'EA alors que les grains se fragmentent toujours :

- les petits fragments de grains qui augmentent au cours de la compaction viennent atténuer les EA émises par les grains qui se fragmentent toujours,
- les capteurs piézoélectriques ne sont pas assez sensibles aux fréquences des fragmentations des derniers grains.

Compte tenu des sources variées et diverses de l'EA, le suivi de la compaction par le seul paramètre nombre de coups est très insuffisant bien que ce soit le plus simple à mettre en œuvre et donc à ce titre le plus utilisé. Les conclusions des travaux n'exploitant que ce critère sont

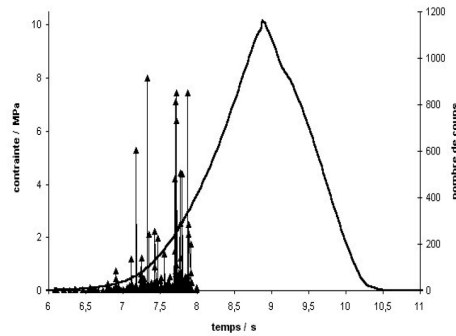


Figure 1.35 – Compression de grains de sable arrondis de taille 500-560  $\mu\text{m}$  jusqu'à environ 10 MPa et nombre de coups en fonction du temps [96].

donc à considérer avec des réserves. Notons que des modèles mathématiques ont été développés en parallèle dans le but de déterminer l'EA produite par la formation et la propagation de fissures [174, 175]. Ajoutons également que de nombreux auteurs étudiant les mécanismes de compaction de matériaux granulaires évoquent un « silence » des réarrangements granulaires [96, 176].

## 1.4 Conclusion

La propagation d'ondes élastiques dans les matériaux granulaires est rendue plus complexe que dans un milieu continu, de par ses caractéristiques biphasiques, désordonnées et hétérogènes. En effet, les ondes peuvent être absorbées et/ou multiples diffusées lorsqu'elles rencontrent un réseau de particules solides et de zones remplies d'air, ou bien des hétérogénéités de structures telles que des fissures. L'onde est dispersée, ce qui implique une déformation du signal émis par la source, une atténuation de l'amplitude, un décalage du spectre fréquentiel, etc. . .

Lors de la compaction de matériaux granulaires fragiles, les sources d'EA sont la fragmentation des particules et le réarrangement granulaire induisant des phénomènes de friction, à la fois entre les particules et entre les particules et les parois de confinement. De plus, les fortes contraintes mises en jeu lors de tels essais provoquent des sources indésirables d'EA telles que des déformations de structure.

L'identification par EA des réarrangements/fragmentations se produisant au cours de la compaction de matériaux granulaires fragiles est aujourd'hui mal définie. La raison principale vient de l'évolution continue de ce milieu qui conduit à une modification simultanée de la propagation des ondes.





## Chapitre 2

# Méthodologie, Matériaux et Techniques

<b>2.1</b>	<b>Méthodologie de l'étude</b>	<b>52</b>
2.1.1	Fabrication des céramiques poreuses	52
2.1.2	Suivi par émission acoustique de l'évolution de l'empilement granulaire	54
2.1.3	Démarche expérimentale	55
<b>2.2</b>	<b>Caractéristiques des particules d'UO<sub>2</sub></b>	<b>56</b>
2.2.1	Propriétés de l'UO <sub>2</sub>	56
2.2.2	Morphologie des poudres d'UO <sub>2</sub>	58
2.2.3	Fabrication des granulés d'UO <sub>2</sub>	59
2.2.4	Caractéristiques des granulés étudiés	60
<b>2.3</b>	<b>Essais mécaniques</b>	<b>64</b>
2.3.1	Le pressage uniaxial : dispositif et conditions expérimentales	64
2.3.2	Mesure de résistance mécanique par essai brésilien	67
<b>2.4</b>	<b>Moyens de mesure de l'émission acoustique</b>	<b>69</b>
2.4.1	Chaîne d'acquisition	69
2.4.2	Paramètres d'acquisition	72
2.4.3	Effet du milieu environnant sur l'émission acoustique	77
<b>2.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>79</b>

## 2.1 Méthodologie de l'étude

### 2.1.1 Fabrication des céramiques poreuses

#### 2.1.1.1 Procédés industriels

L'industrie métallurgique développe des techniques de fabrication de céramiques poreuses utilisées comme filtres à liquide ou à gaz, supports catalytiques ou isolants thermiques à hautes températures. Les caractéristiques microstructurales de ces matériaux, en termes de volume poreux et de taille des pores, dépendent de leur domaine d'application. Par exemple, pour les mousses céramiques dont les pores ouverts sont interconnectés, la filtration apparaît la plus adéquate. Lorsque la porosité est fermée avec des tailles de pores micrométriques, ces mousses céramiques sont plus adaptées à l'isolation thermique. Dans le cas de ces applications industrielles, un volume poreux supérieur à 40% est préconisé pour conférer au matériau ses propriétés filtrantes ou isolantes : faible conductivité thermique, perméabilité contrôlée, résistance aux chocs thermiques, surface spécifique élevée. . . L'obtention de tels taux de porosité est possible par de nombreuses techniques qui ont en commun, pour la plupart, d'utiliser des poudres microniques (diamètre  $< 10 \mu\text{m}$ ) comme matériaux précurseurs.

La technique la plus classiquement utilisée pour la fabrication de céramiques à forte porosité ouverte interconnectée consiste tout d'abord à imprégner une mousse polymère, généralement en polyuréthane, par une suspension céramique. Ensuite, la mousse imprégnée est séchée pour éliminer le solvant, puis traitée thermiquement pour éliminer le polymère et les divers additifs organiques. Enfin, le répliqua céramique est consolidé par traitement thermique (frittage) à haute température [177–181]. Il résulte ainsi un squelette poreux avec des tailles de pores généralement supérieures à  $100 \mu\text{m}$ .

La porosité ouverte peut également être obtenue par l'ajout, à la poudre de céramique, de particules de tailles et formes choisies selon la porosité souhaitée. Il s'agit généralement de mousses d'alumine obtenues par métallurgie des poudres. La poudre d'alumine (taille  $< 1 \mu\text{m}$ ) est mélangée soit à des particules solubles de quelques centaines de micromètres, telles que le chlorure de sodium [182] ou les carbamides [183], soit à des agents combustibles comme des billes de polystyrène, de la sciure de bois, des granules d'amidon [184], des poudres de graphite [185], des particules de coke de pétrole ou de charbon actif [186, 187]. Le mélange est comprimé à une pression de quelques centaines de MPa. Les particules solubles sont éliminées par dissolution et les agents combustibles par calcination. Le compact est enfin fritté pour figer la microstructure qui est alors constituée d'une porosité élevée (40-80%). Les études réalisées pour fabriquer des céramiques sans ajout d'additif, et donc sans étapes supplémentaires, ce qui est le cas de cette étude, concernent principalement l'alumine. La porosité est obtenue par la réduction de volume des nanoparticules, suite à la décomposition de l'alumine de sa phase  $\theta$  en sa phase  $\alpha$ , à des températures comprises dans la gamme de températures de frittage [188].

Une autre méthode appelée « frittage partiel » permet de maîtriser la porosité au sein du matériau par le choix et l'ajustement de la composition en matières premières, la température de frittage et les conditions de cuisson. Le procédé généralement utilisé est le frittage partiel sous charge (pressage à chaud « HIP », frittage flash « SPS ») [189], [190]. La poudre versée

dans le moule est chauffée à haute température pendant un temps de palier suffisamment long pour permettre le grossissement des grains et la formation d'espaces vides. Une pression de quelques centaines de MPa est ensuite appliquée alors que le frittage s'opère en simultanée jusqu'à un certain taux de densification contrôlé par la température et le temps de frittage. Cette méthode conduit généralement à des tailles de pores inférieures au micromètre. Ce procédé suggère un contrôle de la porosité au travers des conditions de frittage et de mise en forme, ainsi qu'une maîtrise des poudres de départ et des éventuels additifs si le matériau possède une faible frittabilité [189], [191]. L'ajustement de ces différents facteurs provoque une modification simultanée de la taille des grains qui est un facteur important affectant les propriétés mécaniques du matériau [192]. Il est donc nécessaire de figer la microstructure du compact dans un premier temps tout en contrôlant sa solidité, puis de procéder au frittage dans un second temps.

### 2.1.1.2 Pores ouverts interconnectés au sein de l' $\text{UO}_2$

Song et al. [193] ont proposé une explication à la formation de pores lamellaires (allongés) au sein de pastilles de poudre d' $\text{UO}_2$  issue du procédé de fabrication par voie humide AUC en particulier (Carbonate d'Ammonium-Uranyle) (*cf.* §2.2.2, p.58). La Figure 2.1 illustre les phénomènes se produisant au cours du frittage de particules consolidées peu déformables, qui conduisent à former la porosité ouverte interconnectée. Lors de l'étape de compaction, certaines particules étant trop résistantes pour se fragmenter ou se déformer [194], des espaces vides subsistent au sein du comprimé.

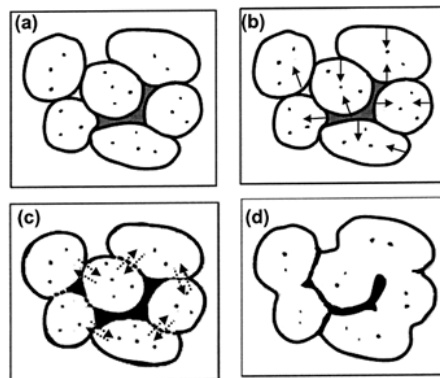


Figure 2.1 – Illustration de la formation des pores au sein de pastilles d' $\text{UO}_2$  : (a) présence d'espaces vides entre les particules, (b) légère expansion des pores due à la densification initiale des particules sur elles-mêmes, (c) densification des particules entre elles, (d) présence des pores lamellaires (interconnectés) [193].

Au début du frittage, les particules commencent à densifier sur elles-mêmes plutôt qu'entre elles, car chacune des particules possède des micropores interconnectés qui se résorbent en premier [195]. En effet, la présence de ces micropores interconnectés conduit à une surface spécifique élevée, qui favorise de fait la réactivité au frittage. Ce faible retrait des particules sur elles-mêmes crée alors une légère expansion des pores présents entre les particules.

Pendant la seconde phase du frittage, les particules en contact frittent en partie entre elles, ce qui ferme certaines connections entre les pores, et conduit à une densification de la pastille. Néanmoins, certains pores étant très grands, leur rétrécissement est lent, et ils ne sont donc pas

résorbés, même à très hautes températures.

A la fin du frittage subsistent alors des pores allongés interconnectés situés autour des particules initiales. Une certaine mémoire des particules est conservée, et ce d'autant plus que leur cohésion est élevée. En effet, des particules très résistantes au compactage ne seront pas fragmentées et permettront la formation de pores ouverts comme expliqué précédemment.

La formation de la porosité intergranulaire allongée dépend donc fortement de la résistance des particules à la rupture et de la contrainte de compaction qui leur est appliquée. Cette contrainte doit être suffisante à la fois pour consolider le milieu granulaire et conserver l'intégrité d'un certain nombre de particules, induisant une macroporosité résiduelle qui ne se résorbe pas après frittage. **Notre étude porte alors sur l'impact de la fragmentation des particules d' $\text{UO}_2$  sur la microstructure du comprimé, en fonction de la cohésion et la granulométrie initiales des particules, afin d'obtenir une porosité ouverte et stable après frittage.**

### 2.1.2 Suivi par émission acoustique de l'évolution de l'empilement granulaire

A la fin de la compaction, certaines particules initiales restent quasiment intègres si leur cohésion est suffisante pour éviter leur rupture et si, en parallèle, la contrainte appliquée sur le milieu granulaire ne dépasse pas la limite de résistance des particules. **Ainsi, le taux de fragmentation des particules compactées est le facteur principal qui permet d'évaluer la conservation d'une partie des particules et, par conséquent, le taux de porosité ouverte obtenu après frittage.** Néanmoins, l'état de fragmentation des particules de quelques centaines de micromètres est difficilement quantifiable expérimentalement. Il peut être évalué par observation microstructurale de comprimés mis en forme à différentes contraintes de compaction. Cette technique destructive est cependant lourde et contraignante pour une application en cellule blindée, et ne permet pas de suivre in situ l'évolution de l'empilement granulaire.

En revanche, les mécanismes de rupture s'accompagnent d'une libération d'énergie sous forme d'ondes acoustiques. De plus, les réarrangements granulaires induisent des collisions par création et suppression de contacts intergranulaires ainsi que des phénomènes de friction entre les particules, conduisant à une libération d'énergie sous forme d'ondes acoustiques. Ainsi, l'émission acoustique est la technique envisagée pour suivre l'évolution de l'empilement granulaire au cours de la compaction. Cette méthode non destructive semble intéressante à investiguer car elle est également simple à nucléariser.

**L'objectif est alors d'identifier une signature acoustique des mécanismes de compaction que sont les réarrangements intergranulaires et la fragmentation des particules d' $\text{UO}_2$ .**

Alors que le comportement à la rupture des matériaux composites en particulier est largement étudié par EA [119, 131–133, 196–198], et utilisé dans l'industrie pour détecter et suivre leur dégradation, les études par émission acoustique appliquées aux ruptures de matériaux granulaires sont encore peu nombreuses. De même, la signature acoustique des phénomènes de collision et de glissements entre particules n'est pas encore reportée dans la littérature pour les matériaux granulaires. Même si l'EA dépend fortement du matériau étudié [144, 145], les signaux enregistrés

sont aussi largement fonction des capteurs acoustiques et de la chaîne de traitement du signal. Ceci rend difficile l'exploitation des travaux reportés dans la littérature car l'origine et la forme du signal sont très peu discutées en ce qui concerne la compaction des milieux granulaires. Toutefois, nous attendons des signaux discrets pour les fragmentations et continus pour les réarrangements qui mettent en jeu des frottements. De plus, les mécanismes de friction semblent émettre à basses fréquences [199, 200].

### 2.1.3 Démarche expérimentale

La première étape consiste à mettre au point le système de compaction et la chaîne d'émission acoustique associée. En effet, du fait du manque d'information sur le suivi par EA de la compaction de matériaux granulaires céramiques, et plus particulièrement d'actinides, les réglages et le choix des paramètres pertinents pour les analyses doivent recevoir une attention toute particulière dans cette étude.

Ensuite, il s'agit de valider l'émissibilité de particules d' $\text{UO}_2$  sous chargement uniaxial, autrement dit, s'assurer que la source des signaux acquis lors de leur compaction provient bien des particules elles-mêmes, et non de bruits parasites. En effet, les sources potentielles d'ondes acoustiques sont nombreuses. Les vibrations mécaniques, les déformations des structures de la machine de compaction aux fortes contraintes, ou les rayonnements électromagnétiques des installations environnantes peuvent venir « polluer » les acquisitions.

Lorsque l'EA des particules est identifiée, le travail consiste à attribuer une signature acoustique à chaque mécanisme caractéristique de la compaction. Il est alors nécessaire de dissocier la rupture des particules et leur glissement les unes sur les autres afin de les analyser séparément. Pour ce faire, nous avons fragmenté une seule particule et acquis l'émission acoustique produite, tout en enregistrant la contrainte à rupture. Toutefois, comme nous allons le voir, les frottements entre particules sont plus difficilement identifiables et donc quantifiables.

La troisième étape consiste à établir une relation entre les caractéristiques des particules initiales (cohésion et taille) et la macrostructure du comprimé. Pour cela, les comprimés sont frittés afin de révéler cette macrostructure, le frittage correspondant aussi à une étape de la fabrication des combustibles. Précisons que le taux et la répartition de la porosité ouverte sont quantifiés à l'aide de méthodes conventionnelles. Ainsi, des observations microstructurales et des mesures porosimétriques sont réalisées sur des coupes de comprimés crus et de pastilles frittées à différentes contraintes de mise en forme. Ces essais interrompus permettent alors de caractériser l'empilement granulaire au cours de la compaction, d'interpréter en parallèle les résultats d'émission acoustique, et enfin d'identifier les caractéristiques des particules qui contrôlent la morphologie et la répartition de la porosité après frittage.

Par ailleurs, la tenue mécanique des comprimés est mesurée et leur manipulabilité évaluée. Cette donnée est très importante en industrie car les comprimés doivent être transférés pour le moins, sans endommagement, de la presse de mise en forme vers les nacelles de frittage.

## 2.2 Caractéristiques des particules d'UO<sub>2</sub>

### 2.2.1 Propriétés de l'UO<sub>2</sub>

L'oxyde d'uranium sous forme solide présente des degrés d'oxydation compris entre +IV et +VI donnant lieu à haute température à de nombreux composés de type UO<sub>2</sub>, U<sub>4</sub>O<sub>9</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> et UO<sub>3</sub>. Le degré d'oxydation stable dans les conditions standard est le degré +VI sachant que le degré +IV peut également être stabilisé sous conditions réductrices. Ainsi, le diagramme de phase uranium/oxygène pour des valeurs O/U comprises entre 1,9 et 2,4 (Figure 2.2) présente de nombreux domaines.

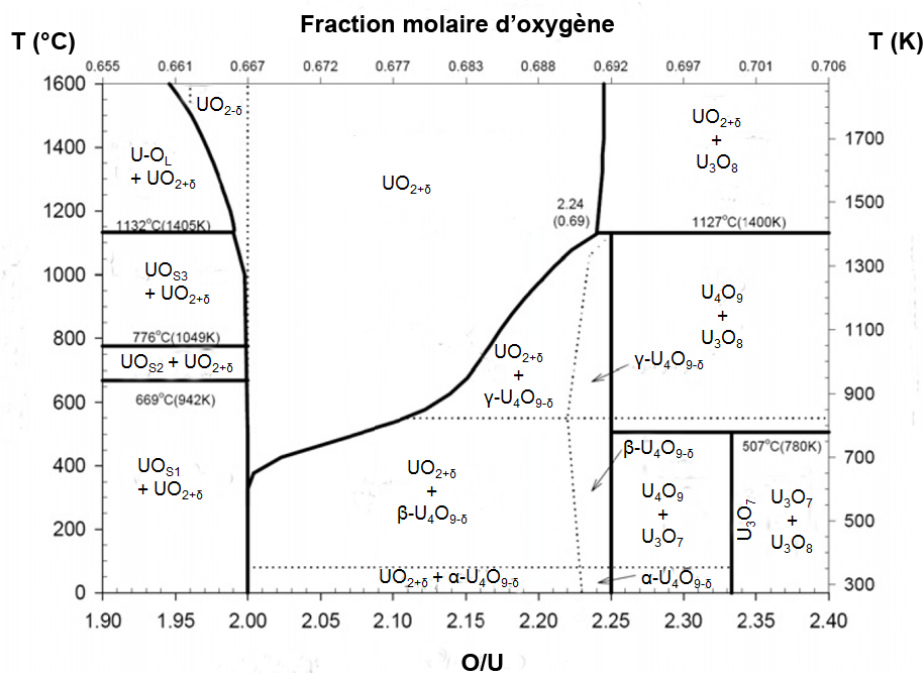


Figure 2.2 – Diagramme de phase binaire O-U ( $1,9 < O/U < 2,4$ ) proposé par Higgs et al. [201].

Le dioxyde d'uranium stœchiométrique UO<sub>2</sub> possède une structure de type fluorine (CaF<sub>2</sub>), correspondant à un empilement cubique à face centrée de cations U<sup>4+</sup> dans lequel tous les sites interstitiels tétraédriques sont occupés par des anions O<sup>2-</sup> (Figure 2.3). Pour la structure des oxydes sur-stœchiométriques UO<sub>2+x</sub>, la position des ions uranium reste inchangée.

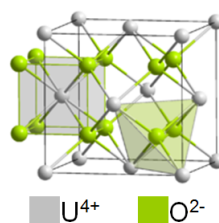


Figure 2.3 – Structure type fluorine du dioxyde d'uranium UO<sub>2</sub>.

Lors du vieillissement des poudres d'UO<sub>2</sub> en présence d'air humide et dans un domaine de température compris entre 20 et 80°C, leur surface se recouvre d'une pellicule adhérente de [UO<sub>2</sub>(OH)<sub>2</sub>], H<sub>2</sub>O, parallèlement à une légère oxydation du substrat en UO<sub>2</sub> sur-stœchiométrique [33] :



La structure de l'hydrate  $[UO_2(OH)_2]_n \cdot H_2O$  est composée de couches pseudo-hexagonales de  $[UO_2(OH)_2]^n$  entre lesquelles s'insèrent des molécules d'eau accrochées par des liaisons hydrogènes. L'étape de transformation du dihydrate en monohydrate correspond au départ de cette eau « intercouche ». La structure de  $UO_3 \cdot H_2O$  reste uniquement composée de feuillets  $[UO_2(OH)_2]$  [202]. Danroc [33] montre que cette présence de dihydrates améliore le comportement à la compaction des poudres :

- moins de frottements entre particules de poudre et avec la paroi de la matrice,
- moins de porosité dans l'échantillon,
- moins de variation de volume lors de la décompression et du démoulage.

Ainsi, lors de la compaction de poudres d' $UO_2$ , la molécule d'eau « intercouche » favorise le glissement des feuillets  $[UO_2(OH)_2]$  conférant au matériau des propriétés lubrifiantes et plastiques. Les comprimés obtenus sont plus homogènes, plus résistants, et présentent une surface moins rugueuse. Toutefois, les poudres naturelles d' $UO_2$  utilisées dans l'industrie comportent très peu de ces feuillets et pour des raisons de criticité, leur humidification est à proscrire.

Par ailleurs, lorsqu'il est soumis à l'action d'une charge rapidement croissante, l' $UO_2$  se comporte comme un matériau fragile. D'une part, sa rupture n'est pas précédée d'une déformation et, d'autre part, sa résistance à la traction est beaucoup plus faible que sa résistance à la compression. Avant la rupture, l'énergie mécanique fournie par la sollicitation mécanique n'est pas dissipée, mais stockée dans le matériau sous forme d'un allongement des liaisons atomiques. Cela se traduit macroscopiquement par une relation linéaire entre la déformation et la contrainte, dont la pente correspond au module d'Young (module d'élasticité), ainsi que par un retour à l'état initial sans endommagement lorsque la sollicitation disparaît. Les déformations restant très faibles, le module d'Young de l' $UO_2$  est très élevé, mais diminue linéairement avec la fraction volumique de la porosité résiduelle [98, 203]. Par exemple, le module d'Young de l' $UO_2$  fritté possédant une porosité de 9%, vaut environ 180 GPa, contre 220 GPa pour l' $UO_2$  sans porosité [204].

Les méthodes basées sur les mesures de vitesse des ultrasons [204–206] et de fréquences de résonance permettent de déterminer le module d'Young de l' $UO_2$  poreux de manière plus précise. Nous avons investigué en particulier la méthode de résonance qui consiste à solliciter le mode fondamental de vibration du matériau à l'aide d'un choc mécanique, d'enregistrer sa fréquence de résonance et de calculer la constante élastique grâce aux équations de la mécanique vibratoire (*cf.* normes ASTM 1259-08e1 [207], ASTM 1875-08 [208], ASTM 1876-09 [209]). Il est possible de solliciter des matériaux de géométrie simple telles que des plaques ou des disques, de telle sorte qu'un seul mode de vibration prédomine.

Pour des disques d' $UO_2$  crus, les fréquences de résonance  $f_F$  et  $f_T$ , associées respectivement aux modes en flexion et en torsion, permettent de calculer le module d'Young  $E$  à température ambiante (Tableau 2.1). Martin [206] souligne toutefois que les techniques de résonance, pour lesquelles la longueur d'onde de vibration est généralement de l'ordre des dimensions de l'échan-

tillon, devraient donner des modules élastiques inférieurs aux valeurs vraies, par la présence de porosités dans l'échantillon.

Nous avons alors fabriqué des disques d'UO<sub>2</sub> de hauteur  $h$  et de masse volumique géométrique  $MV$  composés d'agglomérats de taille comprise entre 160 et 500  $\mu\text{m}$  (lots 1 et 2) et de poudre d'UO<sub>2</sub> (lot 3), mis en forme à la contrainte appliquée  $\sigma_{appl}$ . Pour chacun des lots, nous avons mesuré les fréquences de résonance sur cinq disques, avec une répétabilité et une précision de l'ordre de 1%.

La tenue mécanique des disques augmentant avec la contrainte de compaction, il est logique que le module d'Young du disque mis en forme à 150 MPa soit plus grand que celui mis en forme à 90 MPa. Notons que les valeurs de module d'Young  $E$  de ces disques crus sont bien inférieures aux valeurs citées dans la littérature concernant des matériaux frittés [204], [206].

TABLEAU 2.1 – MODULE D'YOUNG ET VITESSE DE PROPAGATION, CALCULÉS À PARTIR DES FRÉQUENCES DE RÉSONANCE MESURÉES DANS DES DISQUES D'UO<sub>2</sub>

Lot	$\sigma_{appl}$ (MPa)	$h$ (mm)	$MV$ (g/cm <sup>3</sup> )	$f_T - f_F$ (kHz)	$E$ (GPa)	$C$ (m/s)
1	90	6	5,84	4,3 - 1,0	1,94	577
2	150	6	6,00	4,7 - 1,2	2,44	638
3	150	4	5,44	2,9 - 1,2	3,30	779

Par ailleurs, à partir du module d'Young  $E$  et de la masse volumique  $MV$  des disques, la célérité  $C$  de propagation des ondes de compression dans le matériau peut être estimée via la relation [112, 210] :

$$C = \sqrt{\frac{E}{MV}} \quad (2.2)$$

La vitesse de propagation des ondes de compression dans les disques crus mis en forme à 90 et 150 MPa est respectivement de 577 et 638 m/s (Tableau 2.1). Les ondes se propagent donc d'autant plus vite que le milieu est dense. Ainsi, la célérité dans un disque de poudre mis en forme à 150 MPa étant de 779 m/s, nous estimons que la vitesse des ondes dans les agglomérats de distribution granulométrique 160-500  $\mu\text{m}$ , obtenus après compaction à 600 MPa, doit être de l'ordre de 1000 m/s. Précisons que ces agglomérats correspondent aux granulés G160-500 $\mu$  qui seront présentés dans le paragraphe 2.2.4 (p.60). Ainsi, pour une fréquence de 200 kHz, la longueur d'onde dans l'UO<sub>2</sub> peut être estimée à environ 3 mm.

### 2.2.2 Morphologie des poudres d'UO<sub>2</sub>

Les caractéristiques des poudres dépendent de leur procédé d'élaboration [92]. La poudre utilisée pour notre étude est obtenue par le procédé en voie humide ADU (Ammonium DiUranate) par lequel est fabriqué un précipité de diuranate d'uranium qui est ensuite atomisé. Les particules obtenues sont calcinées puis réduites en UO<sub>2</sub>.

Quel que soit le procédé de synthèse, la poudre d'UO<sub>2</sub> est composée de trois entités [211] :



cristallites, agrégats et agglomérats (Figure 2.4). Les cristallites submicroniques sont en très grande majorité enchevêtrées les unes aux autres sous forme d'agrégats. La forme des agrégats est fortement non convexe (dendritique) et les liaisons solides entre les cristallites qui les composent sont pratiquement insécables. L'agglomérat est un regroupement d'agrégats dont les liaisons entre eux sont beaucoup plus faibles (forces de Van Der Waals et liaisons électrostatiques). Pour la poudre mise en œuvre, ils sont quasi-sphériques et ont une distribution granulométrique centrée sur 30  $\mu\text{m}$ .

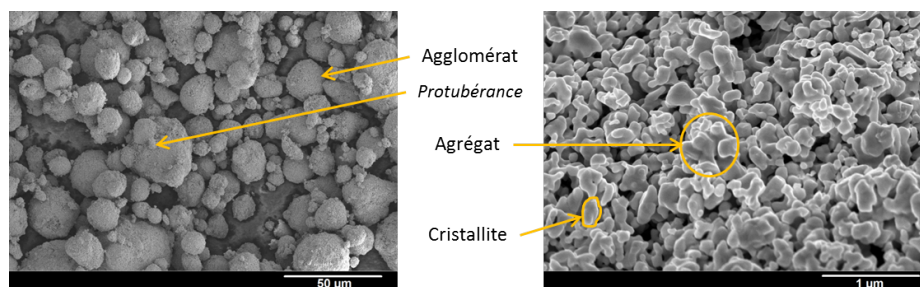


Figure 2.4 – Morphologie des poudres d' $\text{UO}_2$ .

Les agglomérats possèdent en leur surface de petites protubérances (Figure 2.4) qui peuvent se rompre facilement lors des glissements entre agglomérats ou des frottements contre une surface.

### 2.2.3 Fabrication des granulés d' $\text{UO}_2$

#### 2.2.3.1 Granulation

L'opération de granulation consiste à accroître et fixer le diamètre des agglomérats d'une poudre dans le but d'en améliorer certaines propriétés, notamment son aptitude à l'écoulement. En effet, les agglomérats fabriqués par granulation ont un poids supérieur aux forces d'attraction par le collage des particules élémentaires entre elles [212], ce qui facilite leur écoulement et donc le remplissage des moules de presse.

Plusieurs procédés de granulation sont utilisés dans l'industrie céramique [213], [214]. Celui que nous utilisons consiste à concasser des comprimés de poudre compactés à une contrainte de granulation  $\sigma_g$ . Les fragments obtenus sont appelés « granulés mécaniques » et sont ensuite sélectionnés par tamisage. Les granulés d' $\text{UO}_2$  de la Figure 2.5a présentent une distribution granulométrique comprise entre 160 et 500  $\mu\text{m}$  et une morphologie anguleuse (polyédrique). La Figure 2.5b montre les agrégats en surface des granulés et la Figure 2.5c permet de distinguer les cristallites liées par des liaisons solides.

Nous avons volontairement fabriqué des comprimés de faible hauteur afin de minimiser les gradients de densité (*cf.* §1.2.3.2, p.24) et ainsi obtenir des lots de granulés homogènes. En considérant que les étapes de concassage et de tamisage ne modifient pas la densité initiale des comprimés de poudre, la densité des granulés est alors égale à celle des comprimés de poudre. Par exemple, pour une contrainte de granulation de 600 MPa, la masse volumique des granulés vaut 6,49  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Cela correspond à une compacité de 59,2% par rapport à la masse volumique théorique de l' $\text{UO}_2$  (10,96  $\text{g}/\text{cm}^3$ ).

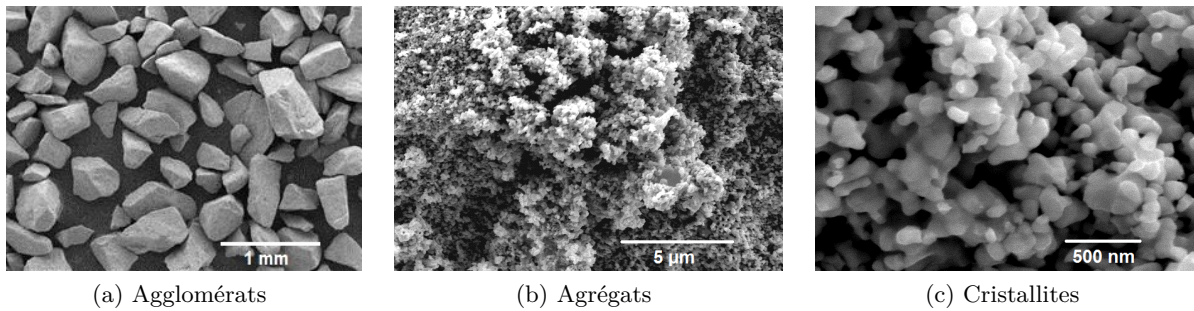


Figure 2.5 – Figure 41 - Granulés d'UO<sub>2</sub> (160-500 μm,  $\sigma_g = 600$  MPa).

### 2.2.3.2 Consolidation thermique

La tenue mécanique des granulés fabriqués par granulation est fonction de la contrainte  $\sigma_g$ . Les granulés présentent alors une cohésion similaire à un agglomérat. Autrement dit, les agrégats ne sont liés entre eux que par des forces de Van Der Waals et des liaisons électrostatiques, quelle que soit la contrainte de granulation. Ces liaisons peuvent donc être aisément cassées. Pour augmenter la cohésion des granulés, il est possible de créer des ponts solides entre les agrégats. Un traitement thermique des granulés sous atmosphère réductrice permet de les consolider individuellement dès lors que la température est suffisamment élevée, *i.e.* environ 800°C (*cf.* §1.2.4, p.26). Ainsi, la cohésion des granulés est fonction de la température de consolidation ou « pré-frittage ». Le temps de palier du cycle thermique est fixé à 30 minutes afin de garantir un rapport tenue mécanique/porosité optimum [189].

## 2.2.4 Caractéristiques des granulés étudiés

Deux familles de granulés sont considérées dans notre étude : les granulés non consolidés thermiquement et ceux consolidés thermiquement. Tous sont fabriqués à partir de comprimés de poudre compactés à 600 MPa.

### 2.2.4.1 Granulés non consolidés thermiquement

Par convention, les granulés non consolidés thermiquement sont notés « G » suivi de leur distribution granulométrique obtenue par tamisage. Ainsi, les granulés de tailles comprises entre 160 et 500 μm sont nommés « G160-500μ ». Notons que les particules étant polyédriques, elles peuvent passer à travers le tamis même si une de leur dimension est supérieure à la maille du tamis. La distribution peut donc être légèrement plus large que les ouvertures de tamis choisies.

La Figure 2.6 représente la distribution granulométrique moyenne cumulée, mesurée sur deux lots de granulés obtenus par passage au travers un tamis de 1 mm. Le diamètre médian, noté  $d_{50}$ , correspond à la taille pour laquelle 50% de la population de granulés possède une taille inférieure à  $d_{50}$ . L'évolution semi-logarithmique de la distribution granulométrique cumulée montre que les lots G0-1000μ sont constitués en majorité de granulés de grande taille. De plus, le diamètre médian  $d_{50}$  égal à 600 μm signifie que 50% des granulés G0-1000μ ont une taille comprise entre 600 et 1000 μm. Cependant, il s'agit d'une représentation en fraction massique (ou volumique), ce qui implique que la fréquence des gros granulés, plus lourds (ou plus volumiques), est plus

élevée que les plus petits, plus légers (ou moins volumineux). Une distribution granulométrique en nombre montrerait que les granules les plus petits sont majoritaires par rapport aux plus gros.

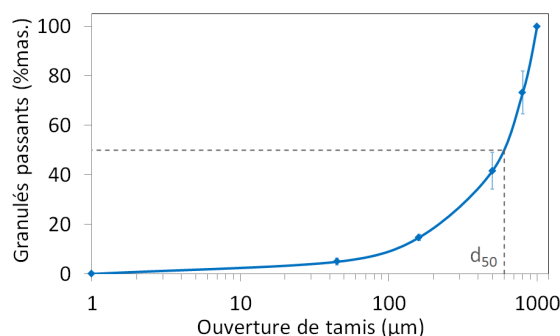


Figure 2.6 – Distribution granulométrique d'un lot de granules G0-1000 $\mu$  déterminée par tamisage ( $d_{50} = 600 \mu\text{m}$ ).

La distribution de la taille des particules peut être déterminée par d'autres méthodes telles que la diffusion de la lumière dans un granulomètre laser, l'analyse d'image au microscope, la sédimentation par mesure de vitesse de chute dans un fluide, ou les méthodes acoustiques par mesures d'atténuation. Cependant, pour ces méthodes, comme pour la nôtre, la forme de la particule pose également des problèmes d'incertitudes de mesure.

A partir du lot de granules G0-1000 $\mu$ , des lots de granules de tailles intermédiaires sont fabriqués, à savoir : G45-160 $\mu$ , G160-500 $\mu$  et G800-1000 $\mu$ . Ils possèdent tous la même masse volumique que les comprimés de poudre compactés à 600 MPa dont ils sont issus, *i.e.* 6,49 g/cm<sup>3</sup>.

Les granules G160-500 $\mu$  étant majoritairement étudiés, nous présentons leur distribution granulométrique mesurée par granulométrie laser en voie humide (Figure 2.7). Il est à noter que cette technique peut mesurer la longueur d'un granule polyédrique de 700  $\mu\text{m}$  qui a pu traverser la maille d'un tamis de 500  $\mu\text{m}$  au niveau de sa largeur. Le diamètre médian  $d_{50}$  valant 340  $\mu\text{m}$ , il correspond quasiment à la moyenne de la taille de la distribution 160-500  $\mu\text{m}$  qui est de 330  $\mu\text{m}$ . La taille des granules est donc équitablement répartie en volume. De plus, la distribution non cumulée de la taille des granules révèle deux modes qui suggèrent la présence de deux populations autour du diamètre médian  $d_{50}$ . Ce résultat a été validé sur deux échantillons.

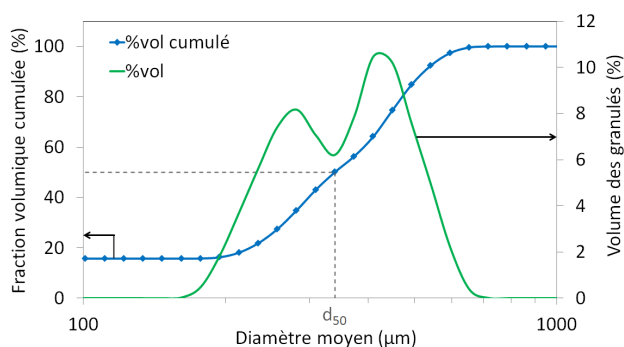


Figure 2.7 – Distribution granulométrique des granules G160-500 $\mu$  mesurée par granulométrie laser ( $d_{50} = 340 \mu\text{m}$ ).

Sachant que les granulés de taille supérieure à 500  $\mu\text{m}$  sont difficilement mesurables par granulométrie laser, du fait de la faible quantité de granulés introduits et de la difficulté à les entraîner devant la cellule de mesure, la distribution granulométrique des granulés de taille supérieure est déterminée par tamisage uniquement.

L'*étalement* granulométrique  $s$  est un des paramètres sans dimension qui caractérise une distribution granulométrique à partir des diamètres minimal  $d_{min}$  et maximal  $d_{max}$  d'une distribution granulométrique :

$$s = \frac{d_{max} - d_{min}}{d_{max} + d_{min}} \quad (2.3)$$

Ainsi, une distribution monodisperse correspond à  $s = 0$  et la limite  $s \approx 1$  correspond à une distribution « infiniment » polydisperse [215]. Le Tableau 2.2 répertorie les valeurs de diamètre moyen et celles d'étalement des quatre lots de granulés.

TABLEAU 2.2 – DIAMÈTRE MOYEN ET ÉTALEMENT DES LOTS DE GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES

Lots de granulés	Diamètre moyen ( $\mu\text{m}$ )	Etalement (-)
G45-160 $\mu$	103	0,56
G160-500 $\mu$	330	0,52
G800-1000 $\mu$	900	0,11
G0-1000 $\mu$	500	1,00

#### 2.2.4.2 Granulés consolidés thermiquement

Les granulés G160-500 $\mu$  sont utilisés pour fabriquer des lots de granulés dont la cohésion est pilotée par un traitement thermique de « pré-frittage ». Par convention, les granulés consolidés thermiquement sont annotés « GC » suivi de leur température de traitement. Par exemple, les granulés consolidés à 800°C pendant 30 minutes sont notés « GC800 ». Les températures choisies sont comprises entre 600 et 1200°C. La Figure 2.8a montre l'aspect des granulés traités à 1200°C/30min (GC1200). Ils présentent le même aspect que des granulés non traités (Figure 2.8b) car les agrégats qui les composent semblent pontés entre eux.

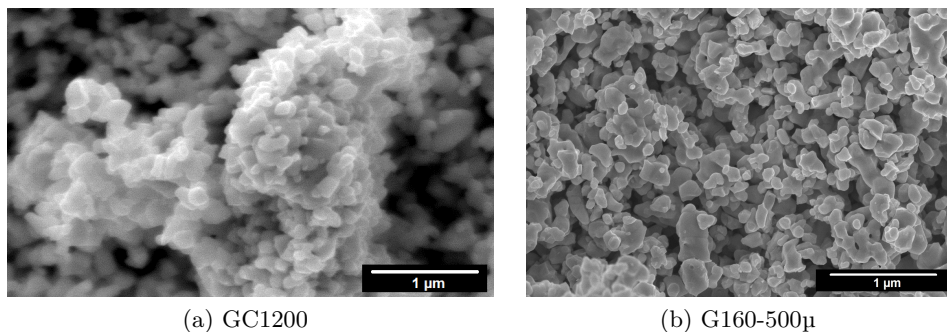


Figure 2.8 – Micrographie de la surface de granulés : a) consolidés à 1200°C, b) non consolidés thermiquement.

La masse volumique des granulés (Tableau 2.3) est déterminée par mesure de la masse volumique géométrique de comprimés de faible hauteur mis en forme à 600 MPa et traités thermiquement. Par exemple, la masse volumique des granulés GC800 correspond à celle d'un comprimé mis en forme à 600 MPa et traité à 800°C sous hydrogène pendant 30 minutes.

TABLEAU 2.3 – MASSE VOLUMIQUE DES GRANULÉS CONSOLIDÉS THERMIQUEMENT

Lots de granulés	Température de consolidation réelle (°C)	Masse volumique des granulés (g/cm <sup>3</sup> )
G160-500 $\mu$	0	6,49
GC600	580	6,43
GC700	695	6,45
GC800	825	6,49
GC1000	995	7,44
GC1100	1095	7,68
GC1200	1213	non mesuré

L'évolution de la masse volumique de chaque lot de granulés GC est tracée en fonction de leur température de consolidation (Figure 2.9a).

Vers 400°C, la masse volumique diminue légèrement en raison d'une faible dilatation des particules. A partir de 800°C, la surface spécifique apparente des granulés (Figure 2.9a) diminue significativement, ce qui signifie que le frittage s'amorce par la formation de quelques ponts solides entre les agrégats. L'augmentation très faible de la masse volumique jusqu'à environ 870°C indique que ces mécanismes de transport de matière par diffusion superficielle [216] ne sont pas densifiants. A partir de 870°C, la masse volumique augmente rapidement avec la température (Figure 2.9a). Cela signifie que des mécanismes densifiants tels que la diffusion aux joints de grain contribuent au frittage. Ainsi, la porosité ouverte se ferme et la porosité fermée se résorbe.

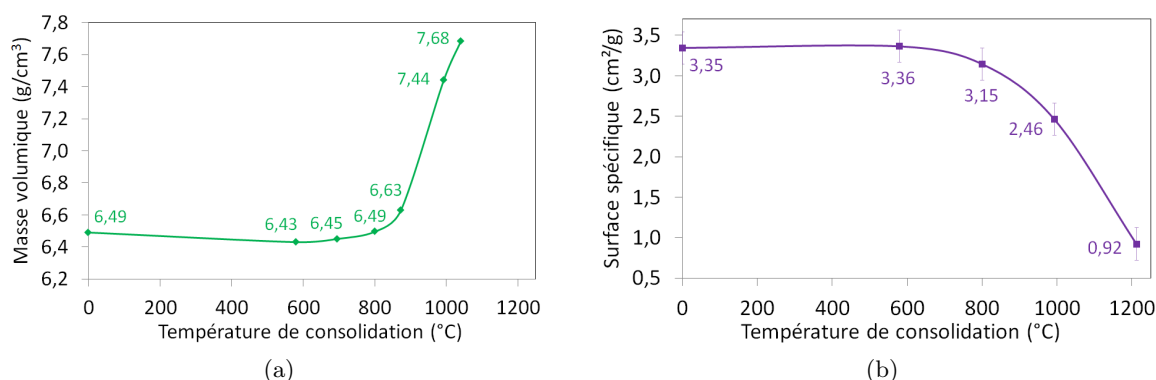


Figure 2.9 – a) Evolution de la masse volumique des granulés consolidés thermiquement en fonction de la température réelle de traitement, b) évolution de la surface spécifique apparente des granulés consolidés thermiquement.

Les valeurs de masse volumique reportées sur la Figure 2.9 seront utilisées pour calculer la densité  $\rho$  relative à la densité théorique de l'UO<sub>2</sub> (*i.e.* 10,96 g/cm<sup>3</sup>) d'empilements constitués de ces granulés plus ou moins cohésifs.

## 2.3 Essais mécaniques

### 2.3.1 Le pressage uniaxial : dispositif et conditions expérimentales

#### 2.3.1.1 Presse et capteurs

Le système de compression uniaxiale est monté sur une machine d'essais mécaniques de marque Instron®. La compression est effectuée entre deux poinçons de diamètre  $\phi$  ; le poinçon supérieur est mobile et le poinçon inférieur est fixe (Figure 2.10). Nous disposons de deux jeux de poinçons/matrice de dimension  $\phi = 10$  mm et  $\phi = 25$  mm, nommés respectivement  $\phi 10$  et  $\phi 25$ . L'éjection du comprimé se fait par le déplacement de la matrice.

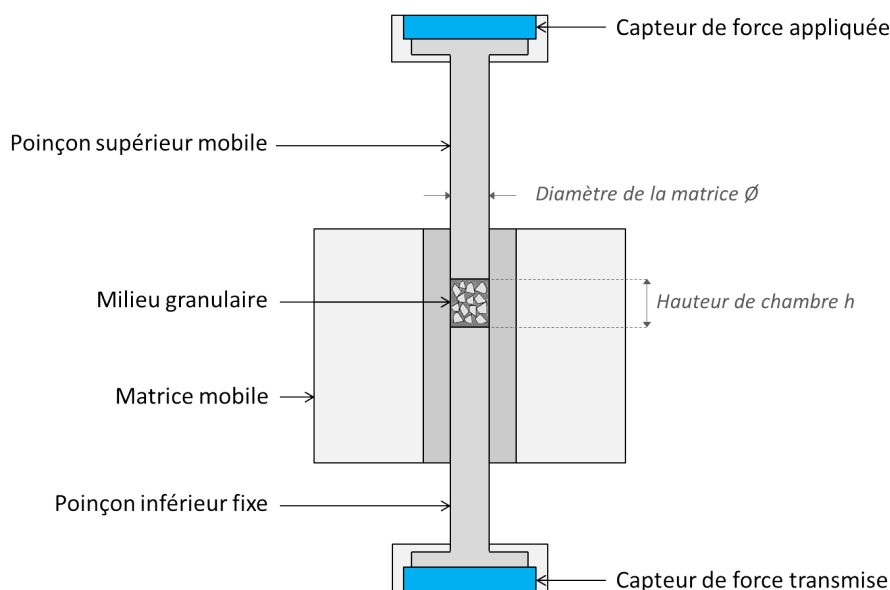


Figure 2.10 – Schéma de la presse uniaxiale instrumentée.

Le système est équipé d'un jeu de capteurs et d'outils permettant à l'expérimentateur de contrôler et d'analyser le comportement de la poudre et les phénomènes relatifs à la compression. La mesure de la hauteur de chambre et de la distance entre les poinçons, et donc de la hauteur du comprimé dès lors que le poinçon entre en contact avec les granulés, est effectuée à l'aide de règles numériques. Le mouvement du poinçon supérieur est piloté par le logiciel Bluehill®. Les contraintes axiales sont mesurées par deux capteurs de force Kistler® placés sous la base des poinçons (en bleu sur la Figure 2.10). Ainsi, le capteur placé au niveau du poinçon supérieur mesure la charge appliquée sur le lit de poudre et celui au niveau du poinçon inférieur la charge transmise axialement.

Nous disposons de deux capteurs permettant d'améliorer la précision des mesures selon les gammes de forces étudiées (Tableau 2.4).

La matrice est pilotée par une console indépendante du système de commande Instron®. La console permet un réglage très précis des paramètres de la matrice, à savoir sa position et sa vitesse de déplacement. La chambre de compaction est en carbure de tungstène.

Nous pouvons dès lors noter que de fortes contraintes peuvent être appliquées sur le lit de

TABLEAU 2.4 – CARACTÉRISTIQUES DES CAPTEURS DE FORCE KISTLER®

Capteur	Plage de mesure (kN)	Sensibilité (pC/N)	Précision (N)
7,5 kN	0 - 0,75	-3,704	0,05
	0 - 7,5	-3,948	0,5
60 kN	0 - 60	-4,3	15

poudre (jusqu'à 600 MPa), mais aussi à l'ensemble de la chaîne de traction. Des essais à vide (essais de compliance) permettent de déterminer les effets de ces contraintes sur la déformation de la machine.

### 2.3.1.2 Compliance

Mesurer la compliance du dispositif expérimental de compression consiste à déterminer sa déformation en fonction de la force appliquée. Nous plaçons le poinçon supérieur contre le poinçon inférieur, c'est-à-dire sans matière. Cette mesure permet de corriger les réponses obtenues dans le cas de la compression d'une poudre ou d'un autre produit. En effet, une déformation de la chaîne de traction de l'ordre de 0,9 mm est observée lorsqu'une contrainte de 600 MPa est appliquée (Figure 2.11).

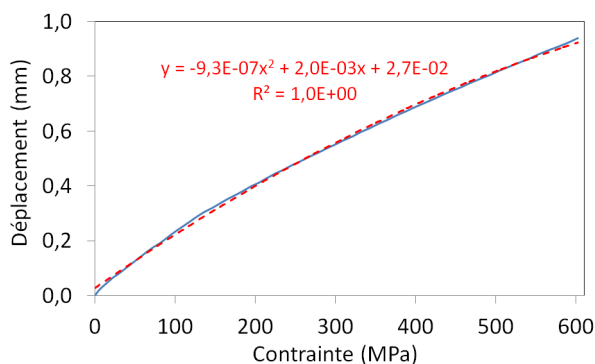


Figure 2.11 – Compliance de la presse uniaxiale – Evolution de la déformation en fonction de la contrainte appliquée à la chaîne de mesure (bleu) et courbe de tendance (rouge pointillé).

Le déplacement lu par la règle est dû à une déformation globale de l'ensemble de la chaîne de traction de la presse. Etant donné une précision de cette règle de 3  $\mu\text{m}$ , un écart de près d'un millimètre n'est pas à négliger. Ainsi, les valeurs de déplacement du poinçon sont corrigées en fonction de la contrainte appliquée à l'aide d'une fonction polynomiale d'ordre 2 lors des essais de compaction, afin de suivre la hauteur du lit de poudre de manière précise. Un essai de compliance est réalisé après chaque modification du montage, même si nous observons qu'ils sont reproductibles avec une précision d'environ 95%.

### 2.3.1.3 Cycle de pressage et conditions expérimentales

Le cycle de compression que nous appliquons aux granulés d' $\text{UO}_2$  est composé de cinq phases (Figure 2.12) :

- vitesse de déplacement imposée  $v_1$  du poinçon supérieur jusqu'à la contrainte  $\sigma_{max}$ ,
- palier de maintien en position  $p_i$  pendant un temps  $t$ ,
- vitesse de déplacement imposée  $v_2$  du poinçon supérieur jusqu'à ce que la contrainte appliquée sur le comprimé atteigne la contrainte de maintien  $\sigma_m$ ,
- éjection du comprimé par la descente de la matrice pendant que le poinçon supérieur applique une contrainte de maintien faible sur le comprimé,
- déplacement du poinçon jusqu'à sa position initiale lorsque le comprimé est complètement éjecté.

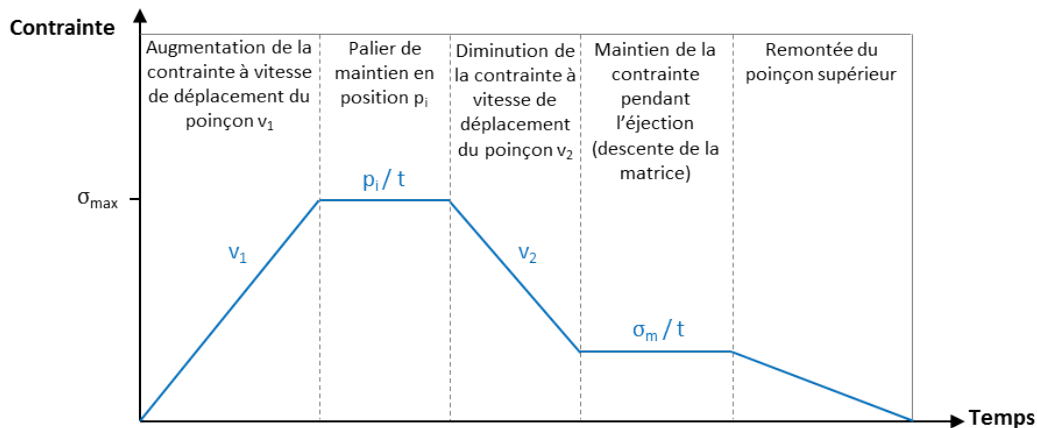


Figure 2.12 – Cycle de compression uniaxiale des granulés.

Le cycle standard appliqué pour la compression des granulés est :

- $v_1 = 0,1$  mm/s,
- $t = 20$  s,
- $v_2 = 0,1$  mm/s,
- $\sigma_m = 5$  MPa,  $t = 15$  s.

Le stéarate de zinc est utilisé pour lubrifier les parois de la matrice, et ainsi faciliter le compactage des matériaux granulaires que nous étudions. La poudre de stéarate est composée de particules submicroniques diluées dans de l'alcool qui permettent également de diminuer les phénomènes de friction contre les parois de la matrice.

#### 2.3.1.4 Suivi des contraintes de compaction et de la densification des granulés

Lors de la compaction des granulés, la contrainte appliquée par le poinçon supérieur est transmise axialement au poinçon inférieur, mais également radialement par le lit de granulés vers les parois de la matrice [76]. En effet, une partie des efforts axiaux est transformée en efforts radiaux appliqués sur les outils par l'intermédiaire du massif de poudre. Toutefois, nous enregistrons uniquement la contrainte transmise axialement ; c'est pourquoi, à partir d'une certaine contrainte, la courbe de la contrainte transmise de la Figure 2.13 est très nettement en-dessous de celle de la contrainte appliquée. En revanche, lorsque les deux poinçons sont en contact (essai de compliance), la totalité de la contrainte appliquée par le poinçon supérieur est transmise au poinçon inférieur. Dans ce cas, les courbes de contraintes appliquées et contraintes transmises se superposent.



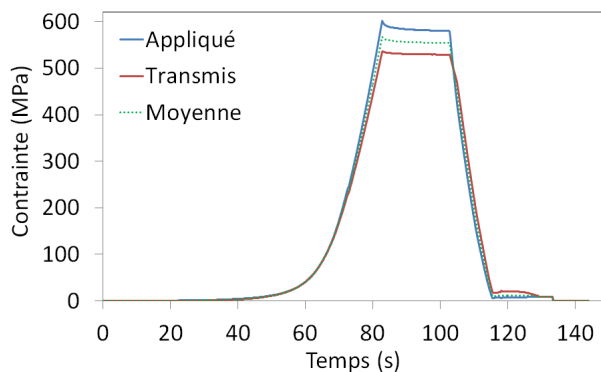


Figure 2.13 – Evolution des contraintes appliquée, transmise et moyenne lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$  avec une hauteur de chambre de 12 mm.

La contrainte moyenne que voit le lit de granulés correspond à la moyenne géométrique des contraintes appliquées et transmises (Figure 2.13). Les contraintes tangentielles de frottement sont alors particulièrement élevées car les pressions moyennes mises en jeu sont de l'ordre de plusieurs centaines de MPa [217]. Le frottement a des effets d'autant plus accentués que les géométries de pièces sont à élancement<sup>1</sup> prononcé.

Connaissant la masse de granulés déversés dans la chambre de compression, il est possible de suivre la masse volumique en continu. En effet, le diamètre du compact est fixe et connu puisqu'il correspond au diamètre de la matrice, et la hauteur du lit de granulés est donnée par la règle numérique mesurant la distance entre les deux poinçons.

### 2.3.2 Mesure de résistance mécanique par essai brésilien

L'essai brésilien décrit au paragraphe 1.1.3.3 (p.13) est généralement utilisé pour quantifier la résistance à la rupture d'objets cylindriques. Nous l'appliquons dans notre étude aux granulés polyédriques également, en considérant un cylindre de longueur égale au diamètre moyen du granulé. En effet, comme préconisé par Tourenq et al. [35], l'élancement de l'éprouvette doit être compris entre 1 et 2. Nous présentons dans ce paragraphe les deux dispositifs, pour les granulés et pour les comprimés.

#### 2.3.2.1 Dispositif de cisaillement d'un granulé

Le dispositif de cisaillement individuel de granulé est appelé « Dispositif de micro-compression ». Il comporte une cellule de force de 10 N de précision 0,01 N, reliée à un poinçon plat de 3 mm de diamètre (Figure 2.14a). Un poinçon de petite taille, mais grand devant un granulé, est choisi pour éliminer les jeux d'ombre lors de l'observation du cisaillement d'un granulé à l'aide d'une caméra rapide. L'objectif microscopique de la caméra permet de visualiser les faibles déformations du granulé, ainsi que la formation des fissures (Figure 2.14b), puis sa fragmentation en plusieurs morceaux. Le déplacement du poinçon supérieur est imposé à une vitesse de 500  $\mu\text{m}/\text{min}$  et les données de déplacement sont acquises par le logiciel Bluehill®, avec une précision de l'ordre du

1. Rapport entre le diamètre et la hauteur.

micromètre. De plus, la forte raideur du système et les faibles charges atteintes permettent de considérer que la machine ne se déforme pas lors des essais.

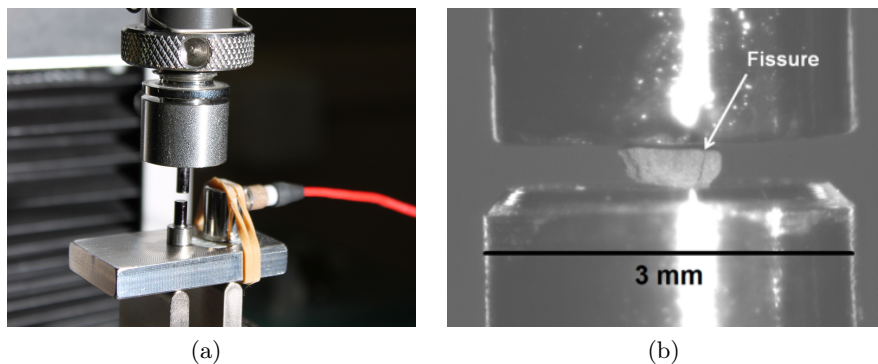


Figure 2.14 – a) Dispositif de micro-compression de granulé d'UO<sub>2</sub> et fixation du capteur d'émission acoustique, b) fragmentation d'un granulé G160-500µ.

Un capteur piézoélectrique est également fixé sur le support du système à l'aide d'un élastique, afin d'enregistrer les ondes acoustiques émises lors de la rupture du granulé. Les caractéristiques de ce capteur et son couplage seront détaillés au paragraphe 2.4.1.1 (p.69).

### 2.3.2.2 Dispositif de cisaillement d'un comprimé

Les comprimés sont cisailés lors d'essai brésilien avec la machine d'essais mécaniques décrite au paragraphe 2.3.1.1 (p.64). Le poinçon supérieur  $\phi 25$  permet d'appuyer de manière homogène sur toute la longueur du comprimé, et le support inférieur fixe est contenu dans une boîte de confinement transparente (Figure 2.15). La force nécessaire pour casser les comprimés étudiés ne dépassant pas 2 kN, le capteur de force 7,5 kN (Tableau 2.4, p.65) est choisi pour ces essais. Le déplacement du poinçon est piloté par le logiciel Bluehill®, et une vitesse de déplacement de 600 µm/min est imposée au poinçon.

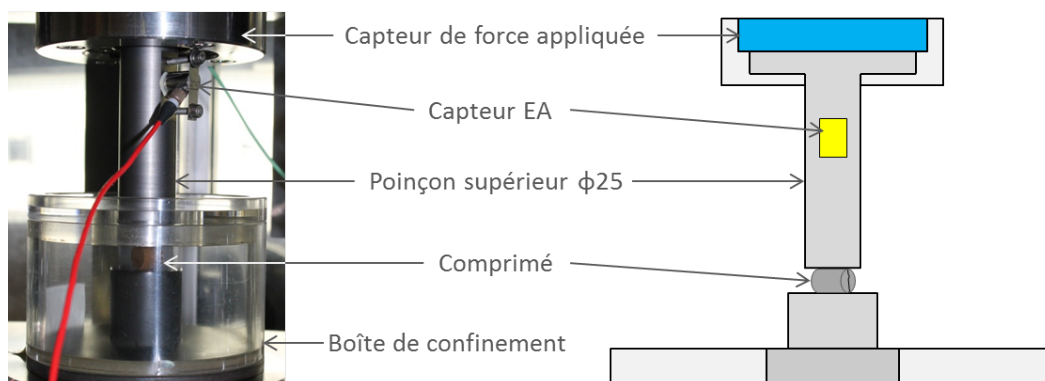


Figure 2.15 – Photo et schéma du dispositif de cisaillement d'un comprimé lors d'un essai brésilien.

Afin d'enregistrer les ondes émises par la rupture du comprimé, un capteur piézoélectrique (*capteur EA*) est également fixé sur le poinçon supérieur.

## 2.4 Moyens de mesure de l'émission acoustique

### 2.4.1 Chaîne d'acquisition

Le choix de l'instrumentation est important du fait de la diversité des sources émissives d'ondes acoustiques et des éventuelles émissions indésirables (bruit de fond, rayonnements électromagnétiques, vibrations mécaniques liées à la presse). L'enregistrement des EA au sein du moule de la presse nécessite un système d'acquisition spécifique, à savoir un capteur des ondes élastiques (capteur EA), un préamplificateur, un système de numérisation (carte d'acquisition PCI-2) et un logiciel de traitement des données (AEwin®) (Figure 2.16).

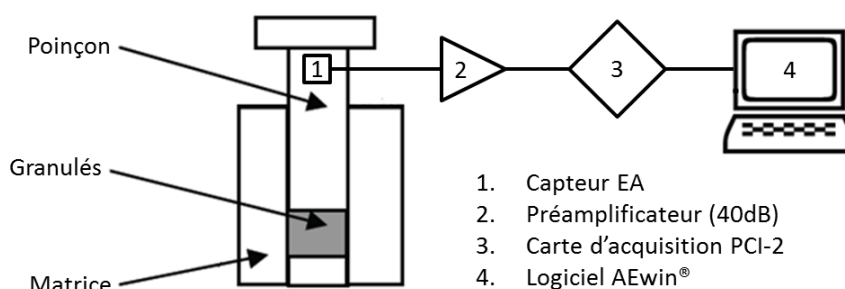


Figure 2.16 – Schéma de la chaîne d'émission acoustique.

#### 2.4.1.1 Capteur EA : caractéristiques, localisation et couplage

##### – Caractéristiques

Les capteurs d'ondes acoustiques sont constitués de matériaux céramiques piézoélectriques conférant au capteur la propriété de convertir l'énergie mécanique  $\delta$  transportée par les ondes élastiques en un signal électrique  $V$  de même fréquence (Figure 2.17). Sensibles à des déplacements inférieurs à quelques  $10^{-10}$  m [114], ils permettent de détecter tous les types d'ondes.

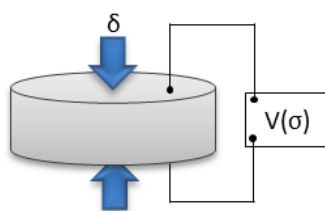


Figure 2.17 – Principe du capteur piézoélectrique  $\mu 30$  (Mistras®) de diamètre 10 mm.

Les capteurs généralement utilisés pour des études par émission acoustique répondent dans la gamme 100 kHz - 1 MHz. En dessous, les bruits parasites émis par l'environnement sont importants, et au-delà l'atténuation des signaux ultrasonores est importante.

Les travaux de G. Kerboul [161] ont montré que l'utilisation d'un capteur résonant à 250 kHz était approprié pour l'acquisition d'EA lors de la compaction de poudres d' $\text{UO}_2$ . Notre choix de capteur s'est donc porté vers des modèles sensibles sur une large bande de fréquences, centrée sur

250 kHz. Ainsi, notre capteur EA couvre la gamme 100-600 kHz avec une sensibilité maximale centrée en 266 kHz. Ces valeurs sont issues du certificat de calibration du capteur basé à la fois sur la méthode du NIST [218] et sur la méthode du bruit blanc, plus connue sous le nom de réciprocité [219]. La première méthode de calibration est basée sur les transitoires et concerne donc la réponse du capteur à une stimulation discrète (ex : rupture), alors que la deuxième répond au caractère continu des signaux (ex : fuite, frottement). Pour notre capteur EA, la fréquence de résonance d'une simulation discrète vaut 125 kHz et celle d'une simulation continue est de 225 kHz.

– Position

Les ondes émises par les mécanismes de fragmentation et de réarrangement correspondent à des micro-déplacements et leur faible énergie ainsi que le faible rapport signal/bruit nécessitent de placer le capteur EA au plus près du milieu granulaire.

Un premier emplacement est prévu dans la matrice au niveau de la périphérie du moule de presse (Figure 2.18, position 1). Ainsi, le capteur EA se trouve à proximité des granulés et le chemin de propagation des ondes est réduit à quelques millimètres. Néanmoins, suivant la hauteur de chambre choisie, le capteur peut se trouver au milieu ou au niveau de la partie inférieure du lit de granulés.

Le capteur EA peut être également positionné sur la surface de la matrice à environ 30 mm de la chambre de compaction (Figure 2.18, position 2). Notons que les emplacements des capteurs de la matrice sont séparés d'un angle de  $120^\circ$ . Par conséquent, les ondes se propageant des granulés vers le capteur positionné sur la surface de la matrice ne traversent pas la zone d'implantation du capteur placé dans la matrice.

Enfin, le capteur EA peut être fixé directement sur le poinçon supérieur (Figure 2.18, position 3), à environ 70 mm de la première couche de granulés.

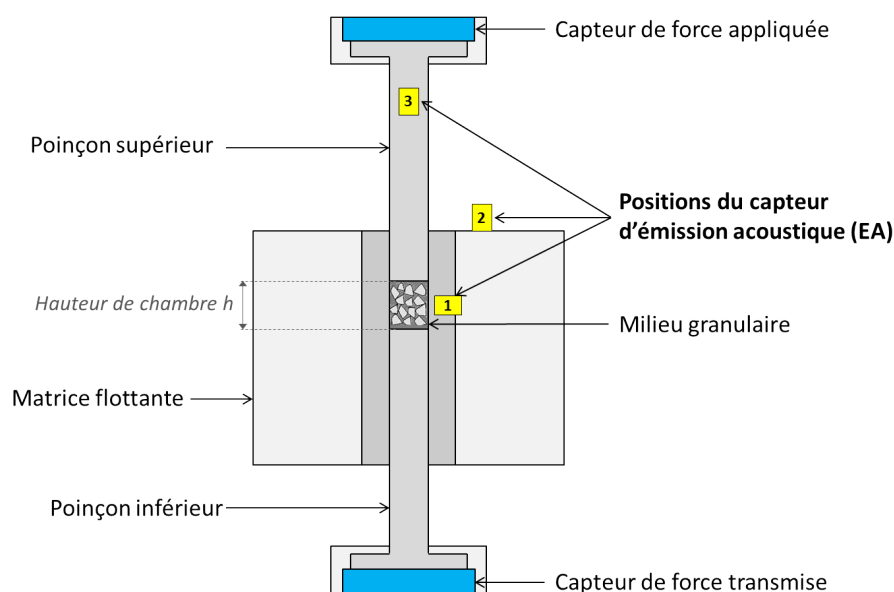


Figure 2.18 – Localisations possibles du capteur EA sur la presse uniaxiale.

### – Couplage

La norme « NF A 09-355 » décrit les méthodes applicables, le mode opératoire et les précautions particulières à prendre pour le couplage des capteurs piézoélectriques. Ce dernier est primordial car les surfaces de contact du capteur et du matériau propageant les ondes élastiques sont certes lisses à l'échelle macroscopique, mais présentent une rugosité non négligeable à l'échelle microscopique. Ainsi, seuls quelques points de contacts permettent la propagation des ondes. Une partie des ondes élastiques se comportant comme des ondes de pression, grandeur physique égale à une force divisée par une surface, leur propagation sera réduite par la surface de contact capteur/matériau. En comblant les aspérités microscopiques de la céramique du capteur et de celle du matériau, la pression sera transmise uniformément entre les surfaces.

Dans notre étude, nous choisissons une graisse siliconée dont la viscosité est suffisante pour permettre également la transmission des ondes de cisaillement. Par ailleurs, le capteur est maintenu fermement à l'aide d'une lame de ressort pour que la contrainte appliquée soit la plus reproductible possible pour chacune des positions du capteur et chacun des essais.

Une vérification du couplage est absolument nécessaire pour assurer l'authenticité et la reproductibilité des signaux enregistrés [116]. Elle repose sur la simulation d'un évènement d'EA utilisant la rupture d'une mine de graphite maintenue par un embout approprié (Figure 2.19).

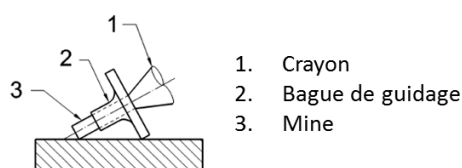


Figure 2.19 – Méthode de vérification du couplage.

Il convient que la mine de graphite ait un diamètre de 0,5 mm et une dureté 2H. L'opération consiste à réaliser cinq cassés de mine à la même distance du capteur, et à s'assurer que l'écart entre les trois valeurs d'amplitude centrales soient inférieures à 3 dB. Le couplage du capteur EA est vérifié avant chaque série d'essais en s'assurant qu'il n'a subi aucun mouvement. Ainsi, le cassé d'une mine de graphite aux caractéristiques contrôlées est un essai simple contrairement au choc ou au frottement d'un marteau.

#### 2.4.1.2 Préamplificateur

Le niveau très faible des signaux délivrés par le capteur nécessite de les amplifier pour faciliter leur acquisition puis leur analyse. Un préamplificateur, relié directement au capteur piézoélectrique, est associé à un filtre passe-haut de façon à atténuer les bruits basses fréquences d'origine mécanique. Il effectue simultanément l'amplification (de l'ordre de 40 dB) et l'adaptation en basse impédance des signaux. Autrement dit, le préamplificateur permet d'augmenter le rapport signal/bruit. A la sortie du préamplificateur, le signal est alors acheminé par câble coaxial.

### 2.4.1.3 Système d'acquisition

Les ondes mécaniques reçues par le capteur sont converties en signaux électriques, amplifiées par le préamplificateur puis transmises au système d'acquisition. Ce dernier permet la gestion de la configuration du système (paramètres d'acquisition, graphiques), mais aussi l'analyse par extraction des caractéristiques EA lorsque la salve est numérisée. Le système d'émission acoustique PCI2 d'Euro Physical Acoustics (Mistras®) permet de traiter le signal par salves ou en émission continue. Cette dernière sera nommée « signal brut » car elle ne tient pas compte du seuil de détection et peut être déclenchée manuellement au cours d'un essai. L'émission par salves est obtenue par un système analyseur de transitoires dans les domaines temporels et fréquentiels. L'émission continue est traitée par l'intermédiaire de deux systèmes, à savoir un intégrateur et un numériseur. Le système intégrateur calcule la tension efficace du signal haute fréquence (RMS) et la tension efficace du logarithme du signal haute fréquence (ASL), alors que le système numériseur permet d'obtenir des spectres fréquentiels tels que la Transformée de Fourier Rapide (FFT). De plus, la carte d'acquisition PCI2 possède une grande largeur de bande et un très faible niveau de bruit de fond. Une très large gamme de fréquences de l'EA est donc couverte.

## 2.4.2 Paramètres d'acquisition

Le signal peut être discrétisé par un système spécifique. Les signaux discrets ainsi obtenus sont appelés « salves » (*cf.* §1.3.2.2, p.34) mais restent disponibles en tant que signal brut continu. Le traitement consiste à convertir le signal en salves d'émission acoustique tout en procédant à l'extraction de leurs caractéristiques. Cette discrétisation est régie par des paramètres d'échantillonnage (vitesse de numérisation, longueur de salve, pré-déclenchement) et des paramètres temporels (durée maximale, Peak Definition Time, Hit Definition Time, Hit Lockout Time). Elle permet de réduire considérablement la taille des fichiers mais en contrepartie dépend fortement des paramètres choisis.

### 2.4.2.1 Paramètres d'échantillonnage

#### Vitesse de numérisation $v_n$

La vitesse de numérisation d'une salve correspond à la fréquence à laquelle les points d'une salve sont enregistrés. Une vitesse de numérisation de 2 MSPS (Mega Samples Per Second) signifie que le système numérise deux millions de points par seconde. Plus la vitesse de numérisation est importante et plus nous conservons d'information sur une salve. Cela permet d'augmenter la précision des paramètres de salve en termes de fréquences notamment.

#### Longueur de salve $l_s$

La longueur de salve détermine la taille de la fenêtre d'échantillonnage sur laquelle les paramètres sont extraits (amplitude, fréquence, énergie, etc...). La durée de la fenêtre d'échantillonnage  $d_f$  en microsecondes est calculée à partir de cette longueur de salve  $l_s$  et de la vitesse de numérisation  $v_n$  :

$$d_f = \frac{l_s}{v_n} \quad (2.4)$$

Par exemple, pour une vitesse de numérisation de 1 MSPS et une longueur de salve fixée à 7 kilos points, la fenêtre d'échantillonnage dure environ 7000  $\mu\text{s}$ . Néanmoins, si la salve est plus courte en réalité que la longueur définie dans le logiciel, des valeurs 0 sont enregistrées jusqu'à la fin de la fenêtre (Figure 2.20a). Au contraire, si la salve est plus longue que la fenêtre d'échantillonnage (Figure 2.20b), ses caractéristiques seront définies et calculées sur cette fenêtre uniquement.

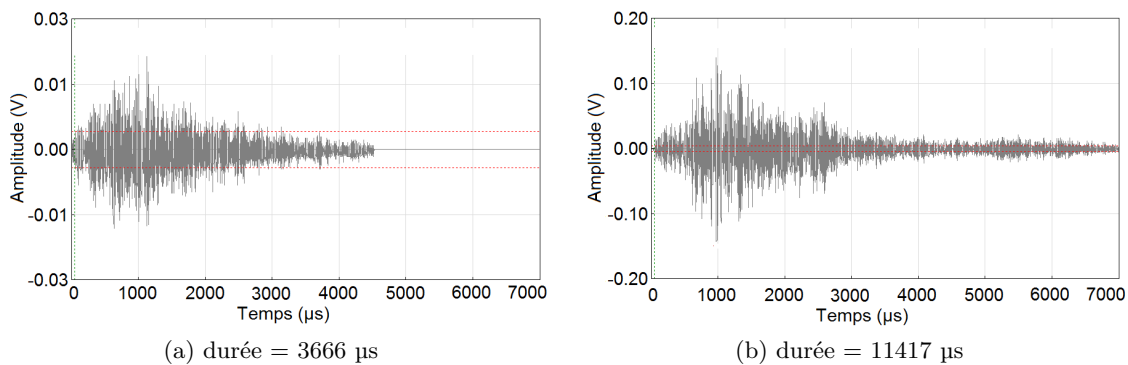


Figure 2.20 – Exemple de deux fenêtres d'échantillonnage a) salve plus courte que la fenêtre d'échantillonnage, b) salve plus longue que la fenêtre d'échantillonnage.

Sachant que la longueur maximale de la fenêtre d'échantillonnage possible dans AErwin® PCI-2 est de 15 kilos points et que la vitesse de numérisation minimale est de 1 MSPS, la durée maximale de la fenêtre d'échantillonnage est donc de 15 ms. Néanmoins, une vitesse de numérisation faible signifiant une perte d'information, il est alors délicat de trouver un bon compromis entre une longueur de fenêtre assez grande pour numériser la salve entièrement et une vitesse de numérisation suffisante pour garantir une bonne précision.

La durée réelle des salves que nous enregistrons se situe entre 3500 et 5500  $\mu\text{s}$ . En fixant une vitesse de numérisation à 1 MSPS et une longueur de signal à 7 kilos points, nous obtenons une fenêtre d'environ 7000  $\mu\text{s}$ .

#### Pré-déclenchement

Le pré-déclenchement permet d'imposer au système d'acquisition d'enregistrer des points avant le début de salve, c'est-à-dire des points du signal qui ne dépassent pas le seuil de détection choisi. Ce paramètre est défini par une durée, égale à 50  $\mu\text{s}$  pour la salve de la Figure 2.21. Il permet ainsi de garder en mémoire le début du signal dans le cas où le seuil fixé est élevé.

La partie du signal comprise dans la fenêtre du pré-déclenchement n'intervient pas dans le calcul des paramètres tels que l'énergie, la durée ou les spectres fréquentiels.

#### **2.4.2.2 Paramètres temporels**

Quatre paramètres temporels permettent de discriminer les salves une par une : PDT (Peak Definition Time), HDT (Hit Definition Time) HLT (Hit Lockout Time) et la durée maximale.

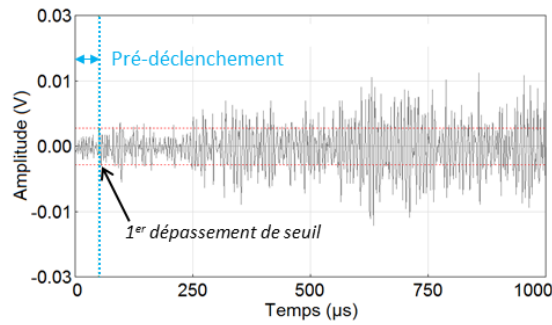


Figure 2.21 – Pré-déclenchement de 50  $\mu\text{s}$  de la salve de la Figure 2.20a.

Ce dernier paramètre impose une coupure du signal s'il ne repasse pas en-dessous du seuil. Les trois premiers paramètres sont appelés « fenêtres temporelles glissantes » et leurs durées doivent être inférieures à celle de la fenêtre d'échantillonnage (*cf.* §2.4.2.1, p.72).

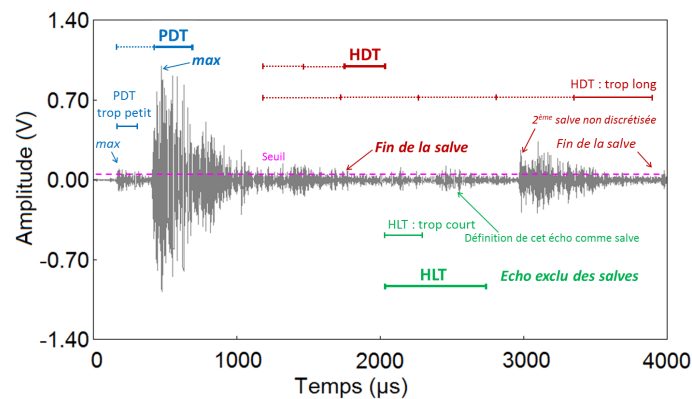


Figure 2.22 – Fenêtres temporelles glissantes : PDT, HDT, HLT.

Le PDT permet de déterminer le pic de plus forte amplitude, et par conséquent le temps de montée de la salve. Cette fenêtre débute au premier dépassement de seuil et est reconduite si un nouveau maximum est mesuré dans le PDT (Figure 2.22).

Le HDT définit la fin de la salve, donc sa durée. Cette fenêtre est reconduite à chaque dépassement de seuil. Si aucun dépassement de seuil n'est présent dans le HDT, alors la fin de la salve est définie par le dernier dépassement de seuil (Figure 2.22). Il doit être aussi court que possible pour éviter d'obtenir deux salves assimilées à une seule.

Le HLT permet d'exclure les phénomènes d'échos des signaux d'EA et débute à la fin du dernier HDT. Il s'agit d'un temps d'aveuglement qui évite de réenclencher l'acquisition sur des échos. S'il est trop long, la salve numérisée comprend la salve et son écho (Figure 2.22).

Ces paramètres temporels vont influencer la manière dont seront calculés les paramètres des salves d'EA. Par exemple, la durée d'une salve comprenant plusieurs salves sera plus grande que sa durée réelle. Le Tableau 2.5 répertorie quelques valeurs typiques de ces trois paramètres temporels pour différents types de matériaux.

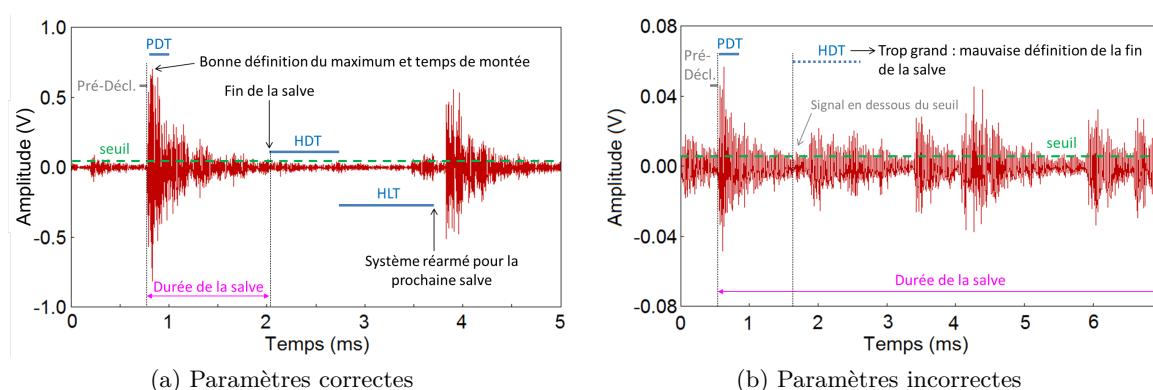
La littérature ne donnant pas de valeurs typiques de fenêtres temporelles glissantes appliquées à des particules d' $\text{UO}_2$  sous contrainte, seule l'analyse des signaux acquis au cours de leur



TABLEAU 2.5 – VALEURS TYPES DES PARAMÈTRES TEMPORELS POUR DES TESTS GÉNÉRAUX [220]

Matériaux	PDT ( $\mu\text{s}$ )	HDT ( $\mu\text{s}$ )	HLT ( $\mu\text{s}$ )
Composites, Non-métalliques	20-50	100-200	300
Petites structures métalliques	300	600	1000
Structures métalliques (forte atténuation)	300	600	1000
Structures métalliques (faible atténuation)	1000	2000	20000

compaction permet de les définir empiriquement. Les exemples de signaux de la Figure 2.23 sont enregistrés pendant la compaction de granulés G160-500 $\mu$  et montrent que le choix des paramètres temporels n'est pas trivial. En effet, la forme du signal n'est pas régulière et les valeurs des paramètres temporels choisies peuvent entraîner une mauvaise discrétisation du signal (Figure 2.23b). Lorsque le signal passe en-dessous du seuil de détection, le HDT se déclenche mais le signal repasse au-dessus du seuil pendant sa durée. La fin de la salve n'est donc pas définie correctement et la salve automatisée contiendra plusieurs signaux discrets. Pour l'exemple de la Figure 2.23b, une valeur de HDT convenable serait 0,1 ms.

Figure 2.23 – Choix des paramètres temporels appliqués aux signaux émis au cours de la compaction de granulés d'UO<sub>2</sub>.

Suite à une observation approfondie des signaux enregistrés lors de la compaction de granulés d'UO<sub>2</sub>, les valeurs choisies sont : PDT = 200  $\mu\text{s}$ , HDT = 800  $\mu\text{s}$  et HLT = 1000  $\mu\text{s}$ . Elles permettent une définition des salves de durée comprise entre 1 et 5 ms. La fenêtre d'échantillonnage est alors fixée à 7 ms, avec une vitesse de numérisation de 1 MSPS.

### 2.4.2.3 Influence des paramètres d'acquisition sur les caractéristiques des salves

Comme nous l'avons vu précédemment, les paramètres d'acquisition pilotent la définition des salves d'EA. S'ils sont mal choisis, ils peuvent soit entraîner la coupure d'une salve avant sa fin, soit assimiler une succession de salves à une seule. Cette mauvaise discrétisation implique que les caractéristiques de la salve en seront biaisées. Ainsi, nous avons étudié l'impact des paramètres d'acquisition sur l'amplitude, la durée, l'énergie et la fréquence de la salve lors d'un cassé de mine de graphite (*cf.* §2.4.1.1, p.69). Notons que lorsque le cassé de mine est réalisé sur la surface du capteur, le signal obtenu sature à 10 V (Figure 2.24a) avec un seuil de détection

fixé à 90 dB. Les 40 coups enregistrés correspondent certainement à la résonance de l'onde émise par la rupture.

La Transformée de Fourier Rapide (FFT) du signal présente un pic centré sur 225 kHz (Figure 2.24b), valeur correspondant à la fréquence de résonance du capteur EA en réponse à une simulation continue (*cf.* §2.4.1.1, p.69). Ainsi, cette fréquence correspond bien à la réponse du capteur et non à une signature acoustique potentielle du mécanisme de fragmentation.

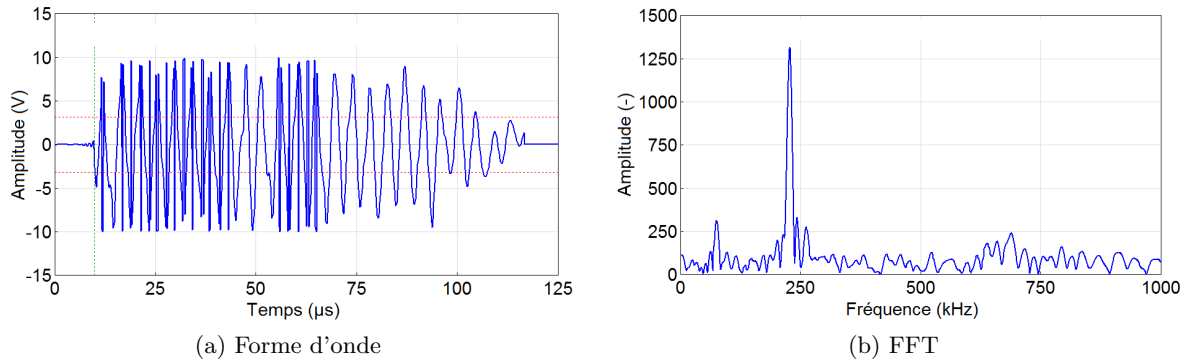


Figure 2.24 – Cassé de mine sur la surface du capteur EA.

Le cassé de mine est alors réalisé sur la surface de la matrice à 1 cm de la position 2 du capteur EA (*cf.* Figure 2.18, p.70). Nous fixons le seuil de détection à 30 dB et la pré-amplification du signal à 40 dB. La rupture étant un mécanisme ponctuel et rapide, les paramètres temporels (PDT, HDT, HLT) choisis valent 10 µs et la durée maximale de la salve est fixée à 1000 µs.

L'objectif étant d'analyser l'influence de la durée de la fenêtre d'échantillonnage sur les caractéristiques des salves de rupture de la mine, nous fixons les paramètres d'échantillonnage de manière à obtenir une fenêtre de 1000 µs (Figure 2.25a), puis de 100 µs (Figure 2.25b). Les caractéristiques des salves ( $A$  : amplitude,  $d$  : durée,  $tm$  : temps de montée,  $E_{abs}$  : énergie absolue) sont reportées sur les formes d'onde et les spectres fréquentiels obtenus par FFT de la Figure 2.25. Notons que ces résultats sont représentatifs d'un échantillonnage de 5 cassés de mine par condition d'acquisition. De plus, nous avons vérifié que les salves obtenues ne sont pas dues au simple dépôt de l'embout du crayon sur la face du poinçon supérieur ou au rebond du morceau de mine cassé contre un obstacle.

Tout d'abord, le pic de plus forte amplitude est acquis dans les 10 premières microsecondes après le début de la salve et correspond donc à la rupture de la mine. Une décroissance rapide du signal suit le pic de plus forte amplitude, sans que le signal ne repasse en-dessous du seuil de détection. L'enregistrement du signal se poursuit donc, pour chaque essai, sur toute la durée de la fenêtre d'échantillonnage fixée, *i.e.* 1000 µs et 100 µs.

Ensuite, la fenêtre d'échantillonnage de 100 µs (Figure 2.25c) conduit à une réduction de la gamme des fréquences comme l'illustre le spectre fréquentiel de la Figure 2.25d. Toutefois l'enveloppe des fréquences est similaire au spectre de la Figure 2.25b. De plus, les caractéristiques des salves sont très similaires entre les deux essais.

La durée de la fenêtre d'échantillonnage modifie donc la forme d'onde des salves et la précision de la FFT associée, mais influence peu les caractéristiques des salves. En effet, le logiciel garde

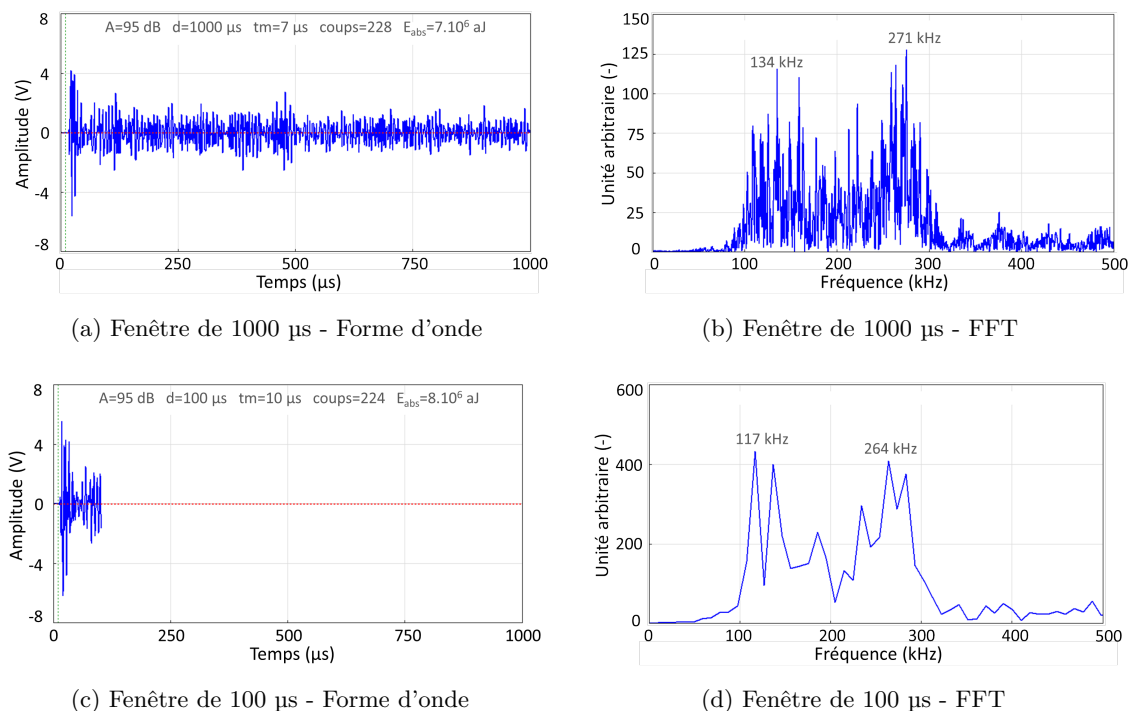


Figure 2.25 – Influence de la durée de la fenêtre d'échantillonnage  $d_f$  sur les caractéristiques du signal d'un cassé de mine : a,b)  $d_f = 1000 \mu\text{s}$ , c,d)  $d_f = 100 \mu\text{s}$ .

en mémoire le signal jusqu'à sa durée maximale, *i.e.* 1000  $\mu\text{s}$  dans cet exemple, et effectue les calculs sur cet intervalle de temps si le signal ne repasse pas en-dessous du seuil de détection.

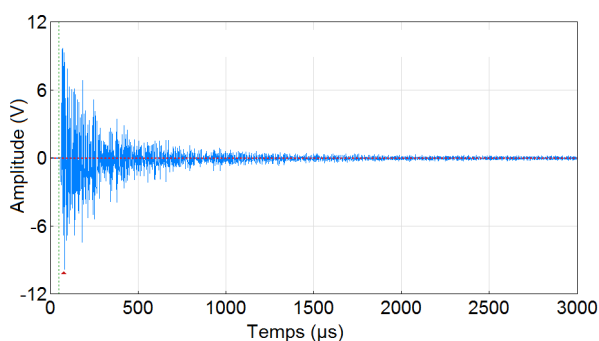


Figure 2.26 – Salve caractéristique d'un cassé de mine sur le poinçon supérieur, le capteur EA étant fixé sur le poinçon supérieur  $\phi 10$ .

Le signal d'un cassé de mine obtenu avec les paramètres d'acquisition choisis pour la compaction des granulés d' $\text{UO}_2$  (*cf.* §2.4.2, p.72) possède une forme d'onde typique d'un mécanisme de rupture, à savoir une montée rapide suivie d'une décroissance lente du signal due à l'atténuation de l'onde dans la structure [221] (Figure 2.26).

### 2.4.3 Effet du milieu environnant sur l'émission acoustique

Tout d'abord, des bruits venant des rayonnements électromagnétiques et des vibrations des machines environnantes peuvent être enregistrés lors d'un essai de compaction. Ainsi, avant chaque cycle de compression, une acquisition d'EA à seuil de détection très faible (15 dB) est

réalisée, l'électronique de la presse étant allumée. Une portion du signal acquis (Figure 2.27) montre le caractère continu du signal. L'amplitude maximale du bruit de fond est comprise entre 23 et 26 dB selon les essais. Elle varie en fonction du fonctionnement ou non des appareils alentours. Par exemple, le dilatomètre, qui est l'appareil le plus proche de la presse, peut faire augmenter le bruit de fond jusqu'à 32 dB.

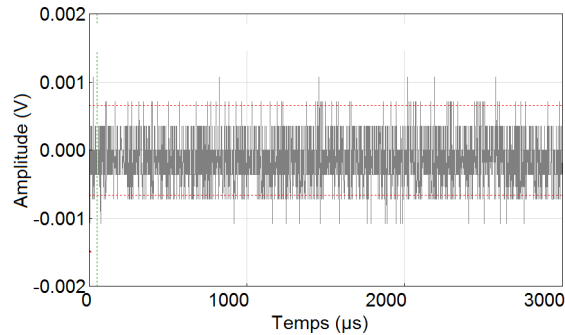


Figure 2.27 – Bruit de fond enregistré avec un seuil de détection de 15 dB.

Ainsi, l'amplitude maximale du bruit de fond permet de déterminer le seuil de détection que nous fixons à 30 dB lors de la compaction des granulés. Notons que ce seuil est utile pour la discrétisation des salves mais n'intervient pas dans l'enregistrement du signal brut.

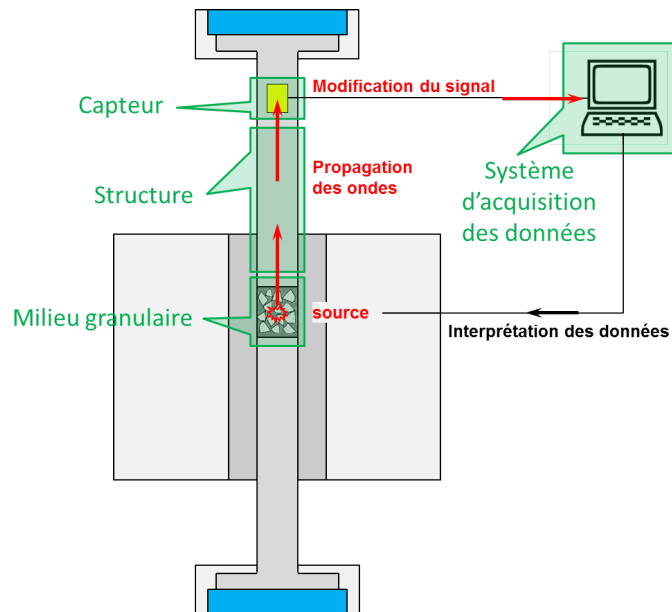


Figure 2.28 – Schéma des éléments influençant la propagation des ondes depuis la source (fragmentation/réarrangement) jusqu'au système d'acquisition des données.

Ensuite, lors de la compaction des granulés, l'onde émise par la source au sein du milieu granulaire (fragmentation et/ou réarrangement) est modifiée par au moins deux éléments supplémentaires au capteur et au système d'acquisition avant d'être enregistrée, comme schématisé sur la Figure 2.28 [222], [223].

Premièrement, le milieu granulaire est constitué de granulés d' $\text{UO}_2$  poreux à environ 40%, qui sont eux-mêmes entourés d'espaces remplis d'air. Ce milieu évolue continûment au cours

de la compaction, passant d'un état aéré à un état dense. Ainsi, les points de contact et les contraintes supportées par les granulés vont grandement impacter les caractéristiques de l'onde provenant de la source.

Deuxièmement, la structure métallique du poinçon supérieur est un guide pour les ondes qui vont se propager du milieu granulaire jusqu'au capteur. La fonction de transfert associée dépend de la géométrie (agencement des surfaces libres) et des dimensions de la structure, ainsi que des éventuelles inhomogénéités en son sein. Notons que les effets de cette fonction peuvent être minimisés par un positionnement du capteur au plus près de la source.

Les fonctions de transfert décrites précédemment, ainsi que le traitement des signaux enregistrés, dénaturent le signal source issu de phénomènes physiques tels que la fragmentation et/ou le réarrangement. Il est alors particulièrement délicat d'interpréter les signaux enregistrés.

## 2.5 Conclusion

La fragmentation et les réarrangements de granulés d' $\text{UO}_2$  n'ont jamais été analysés par émission acoustique. Il n'existe pas de bibliothèques de données pour ces mécanismes de compaction. De plus, l'émission acoustique est fortement « installation et matériau dépendante » [144], [145]. Par ailleurs, nous avons exposé les quatre fonctions de transferts inhérentes au système de compression et à la chaîne d'émission acoustique, à savoir :

- le milieu granulaire et son évolution au cours de la compaction,
- la structure entourant les granulés : matrice et poinçons,
- le capteur acoustique,
- le système d'acquisition du signal.

Ces contraintes instrumentales et d'environnement sont propres à nos expérimentations et nécessitent d'étudier les salves obtenues lors de la compaction des granulés avec un regard nouveau. La démarche adoptée consiste à isoler chacun des mécanismes, afin de lui associer une signature acoustique propre en gardant à l'esprit les fonctions de transfert listées précédemment. Le traitement des signaux comporte une analyse monoparamètre des salves, couplée à une observation de leur forme d'onde, ainsi que des analyses fréquentielles. Il est à noter que la forme d'onde des salves est un critère visuel qu'il faut considérer sur des échelles de temps similaires. Par ailleurs, les paramètres des salves permettent de quantifier la forme du signal en s'étant assuré que la discrétisation est optimale, *i.e.* une salve contient un seul signal discret ou bien un signal continu dont la durée correspond au paramètre d'acquisition « durée maximale ».

Une fois les signatures acoustiques des réarrangements et fragmentation définies, il s'agira de les identifier parmi les signaux enregistrés pendant la compaction des granulés d' $\text{UO}_2$ , en nous appuyant sur nos connaissances des phénomènes physiques se produisant pendant cette étape, et en tenant compte des éléments d'instrumentation et de traitement décrits précédemment.



## Chapitre 3

# Emission acoustique produite lors de la compaction de particules fragiles : identification des signatures acoustiques

<b>3.1</b>	<b>Compaction œdométrique d'un lit de granulés . . . . .</b>	<b>82</b>
<b>3.2</b>	<b>EA lors de la fragmentation d'un granulé . . . . .</b>	<b>84</b>
3.2.1	Mode de rupture . . . . .	84
3.2.2	Tenue mécanique . . . . .	85
3.2.3	Signature acoustique de la rupture d'un granulé . . . . .	88
3.2.4	Corrélation entre contrainte à la rupture et amplitude de salves . . . . .	94
<b>3.3</b>	<b>EA lors de la compaction d'un lit de granulés . . . . .</b>	<b>96</b>
3.3.1	Signal brut . . . . .	97
3.3.2	Signal discrétisé en salves . . . . .	106
3.3.3	Influence des paramètres de l'essai sur le nombre de salves détectées . . . . .	111
3.3.4	Analyses multiparamètres . . . . .	115
<b>3.4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>117</b>

## Introduction

Le simple suivi de l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation appliquée ou inversement, s'il permet de connaître la compressibilité des granulés, ne renseigne cependant aucunement sur l'évolution de la microstructure du compact, en particulier sur la fin de la fragmentation des granulés. Classiquement, l'évolution de la microstructure au cours de la compaction est suivie par des observations en surface ou sur coupe, et des mesures de porosité des comprimés compactés à des contraintes inférieures à la contrainte nominale de mise en forme. Nous parlons alors d'*essais interrompus*. Ces caractérisations destructives et post-essai permettent de révéler un grand nombre d'informations sur les mécanismes de réarrangement et de fragmentation des particules, et donc sur l'empilement granulaire.

Toutefois, comme évoqué dans le chapitre 1, le réarrangement, qui se produit par déplacement avec frottement d'une particule sur l'autre, et la fragmentation sont deux phénomènes qui s'accompagnent d'une émission acoustique. Par exemple, le crissement d'un pneu sur la route, correspondant à un frottement, ou le bruit émis lors de la rupture d'une éprouvette en traction témoignent de la possible faisabilité de connaître les domaines de prédominance de ces deux mécanismes à partir du suivi de cette émission d'énergie. Toutefois, le comportement des ondes acoustiques dans un milieu poreux en évolution, le nombre de sources potentielles, la faible énergie de fragmentation de granulés peu cohésifs, les interfaces entre la source et le récepteur, ainsi que les chemins parcourus par les ondes, font que cette faisabilité est loin d'être acquise.

Nous étudions tout d'abord la **rupture d'un seul granulé** dont le lot est fabriqué à partir de la poudre d'UO<sub>2</sub> compactée à une contrainte de 600 MPa. Les compacts sont ensuite concassés et tamisés de manière à ne sélectionner que la tranche 160-500  $\mu\text{m}$  (*cf.* §2.2.3, p.59). Ces granulés ne sont pas consolidés thermiquement. Ils correspondent donc à un assemblage d'agrégats enchevêtrés et liés entre eux essentiellement par des forces de Van der Waals et des liaisons électrostatiques. Ils sont fragiles et se rompent sous une contrainte très faible, mais la rupture d'un seul granulé émet une onde élastique suffisamment énergétique pour être acquise par notre système de mesure. Ceci a permis d'identifier la signature acoustique du phénomène de fragmentation.

Nous analysons ensuite **l'émission acoustique acquise pendant l'étape de compaction d'un lit de granulés**, qui est le cœur de l'étude. Premièrement, nous dissocions les signaux issus des granulés de ceux engendrés par des bruits indésirables liés à la presse et à son environnement. Deuxièmement, nous montrons que les paramètres d'essais tels que la géométrie de la matrice, la position du capteur acoustique, ou encore la vitesse de compression, ont un effet sur l'EA acquise. Les limites du logiciel d'acquisition sont également mises en exergue.

### 3.1 Description phénoménologique de la compaction œdométrique d'un lit de granulés

Les granulés G160-500 $\mu$  sont déversés manuellement dans un moule de diamètre 10 mm ( $\phi 10$ ) et de hauteur de chambre de 20 mm. La Figure 3.1 représente l'évolution des contraintes et du déplacement du poinçon supérieur durant un essai de mise en forme complet, c'est-à-dire de



l'entrée du poinçon supérieur dans la matrice jusqu'à l'éjection du comprimé. Pour notre étude, nous nous intéressons seulement à la compaction des granulés. L'éjection du comprimé n'est pas abordée.

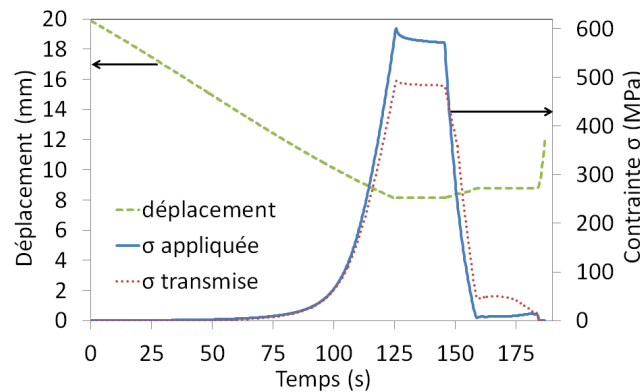


Figure 3.1 – Evolution des contraintes appliquées et transmises et du déplacement du poinçon supérieur lors d'un essai complet de mise en forme (granulés G160-500 $\mu$ ).

Initialement, la contrainte appliquée oscille entre 0 et 1 MPa (intervalle correspondant à la précision de mesure de la force) pendant que la hauteur du lit de granulé diminue d'environ 5 mm, soit 25% de sa hauteur initiale. La contrainte augmente très rapidement au-delà d'environ 80 MPa et la différence entre les contraintes appliquée et transmise devient notable.

L'observation des coupes céramographiques de compacts réalisés à 5 et 300 MPa permet de visualiser l'état du milieu granulaire après application de ces contraintes (Figure 3.2). Les masses volumiques sont calculées par pesée et mesures géométriques du comprimé après éjection.

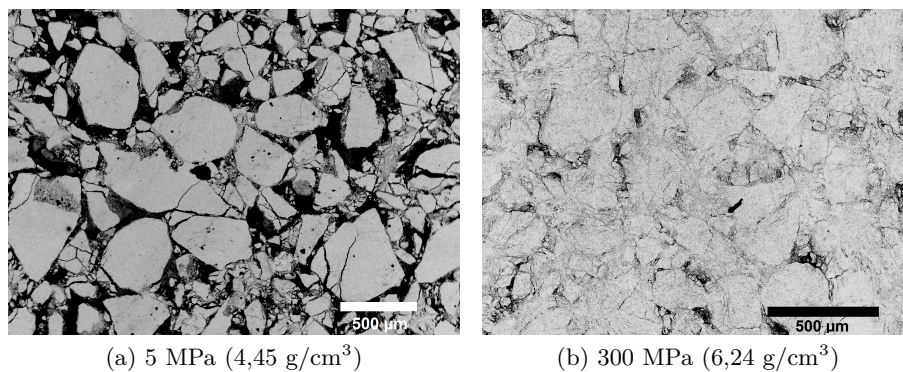


Figure 3.2 – Micrographie de comprimés de granulés G160-500 $\mu$  compactés à : a) 5 MPa, b) 300 MPa.

Après l'application d'une contrainte de 5 MPa, des granulés sont fissurés et une large porosité entre les granulés est visible en noir (Figure 3.2a). Cette fragmentation va faciliter le réarrangement des granulés. Il semble que certains granulés se fragmentent beaucoup alors que d'autres ne sont pratiquement pas fragmentés. De plus, les trois modes de fragmentation (*cf.* Figure 1.14, p.21) sont présents et visibles sur les micrographies. Certains granulés sont fragmentés en deux ou trois (grands) morceaux, d'autres granulés voient leurs coins se détacher (épaufrage) ou encore sont totalement fragmentés (amas de poudre < 1-2  $\mu$ m). La cohésion du comprimé est très faible et sa manipulation est délicate.

Lorsque la contrainte atteint 300 MPa, la microstructure est composée de granulés peu fissurés voire intacts, de fragments de tailles comprises entre 1  $\mu\text{m}$  et quelques dizaines de micromètres (Figure 3.2b). Ces nombreux petits fragments remplissent alors les pores de grandes tailles qui étaient observés à 5 MPa (Figure 3.2a). La cohésion de cet empilement granulaire permet la manipulation du comprimé et sa compacité est de 96%, ce qui atteste de l'évolution de la distribution granulométrique des granulés.

Le signal brut enregistré au cours de la compaction révèle une activité acoustique dont l'amplitude (en Volts) est élevée sur un intervalle de temps et de contrainte défini (Figure 3.3). Le signal est faible au début de la compaction, augmente dès que la contrainte commence à croître, puis diminue fortement entre 150 et 200 MPa pour atteindre une amplitude très faible vers 300 MPa. Ainsi, la fragmentation des granulés, mise en évidence par observations microstructurales du comprimé mis en forme à 5 MPa (Figure 3.2a), pourrait conduire à une EA.

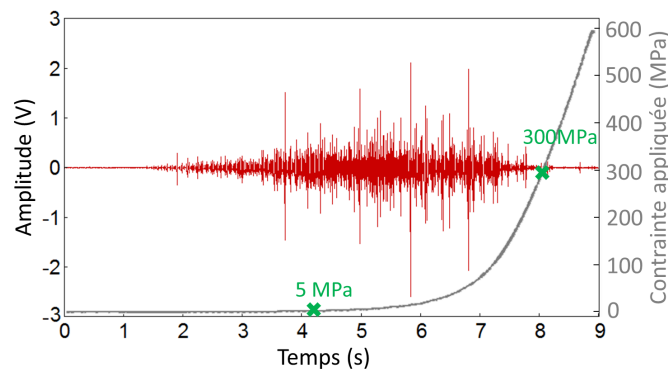


Figure 3.3 – Emission acoustique acquise lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés G160-500 $\mu$ .

La compaction des granulés, régie par leur fragmentation et leur réarrangement, émet donc de nombreuses ondes acoustiques qui peuvent être détectées et peuvent présenter de fortes amplitudes. Les sources potentielles de ces ondes sont néanmoins nombreuses et nous devons dissocier celles émises par les mécanismes de compaction de celles indésirables, correspondant aux bruits environnants et à la déformation/vibration des structures sous contrainte. Ainsi, avant d'étudier un milieu aussi complexe que celui formé par un lit de granulés, nous nous intéressons tout d'abord à la fragmentation d'un seul granulé.

## 3.2 Emission acoustique lors de la fragmentation d'un granulé

Avant de décrire l'EA produite lors de la fragmentation d'un granulé, nous allons présenter brièvement le faciès de rupture et les caractéristiques mécaniques de cette rupture.

### 3.2.1 Mode de rupture

L'essai de cisaillement réalisé est en fait un essai brésilien (*cf.* §1.1.3.3, p.13). Le granulé est déformé par compression entre deux plateaux, ce qui conduit généralement à sa rupture en deux,

comme observé lors d'un essai brésilien d'un comprimé. Il existe donc à l'intérieur du granulé des zones en compression et d'autres en traction. Nous observons en général une seule fissure à l'échelle macroscopique (Figure 3.4a), mais plusieurs fissures peuvent également se former à différents endroits du granulé (Figure 3.4b).

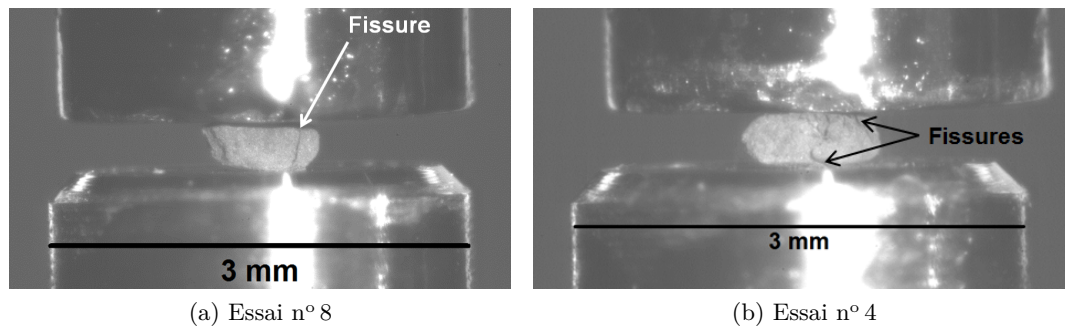


Figure 3.4 – Cisaillement par essai brésilien d'un granulé G160-500 $\mu$  : a) formation d'une seule fissure, b) formation de plusieurs fissures en simultané.

Le chargement d'un granulé polyédrique peut aussi provoquer des arrachements de matière au niveau des angles (*i.e.*, des épaufréments) ou des affaissements du granulé avec détachement de petits morceaux. Ceci peut être dû à la présence préalable de fissures internes dans le granulé ou plus probablement à un chargement local qui atteint la limite à rupture. Ainsi, dans des conditions maîtrisées de cisaillement, le granulé se rompt en deux, voire trois morceaux. Quelques essais conduisent à une fragmentation partielle s'accompagnant d'une forte diminution de la contrainte, mais la fragmentation du granulé en un très grand nombre de morceaux n'a jamais été observée. Ce dernier mode de fragmentation (mode iii) nécessite des conditions de chargement spécifiques que nous rencontrerons lors de la compaction d'un lit de granules.

## 3.2.2 Tenue mécanique

### 3.2.2.1 Cisaillement d'un granulé

La tenue mécanique des granules G160-500 $\mu$  est mesurée en les cisillant individuellement avec le dispositif de compression décrit au paragraphe 2.3.2.1 (p.67). Une courbe typique de cisaillement en fonction du déplacement du poinçon supérieur est représentée sur la Figure 3.5a. La légère inflexion de la courbe au début de l'augmentation de la charge peut s'expliquer par un aplatissement des faces du granulé en contact avec les poinçons. A partir d'un certain déplacement (environ 20  $\mu\text{m}$  sur la Figure 3.5a), la contrainte augmente quasi-linéairement avec le déplacement. La déformation du granulé peut alors être estimée en ne considérant que la partie linéaire de la courbe.

Pour le granulé de 500  $\mu\text{m}$  cisillé suite à un déplacement d'environ 60  $\mu\text{m}$  (Figure 3.5a), la déformation avant rupture serait d'environ 10%. Le module d'Young serait alors voisin de 85 MPa ( $\pm 34$  MPa), ce qui est très faible. Ce taux de déformation avant rupture est sur-évalué pour un tel matériau rigide et fragile. Cela signifie que le granulé se « déforme » localement au niveau des contacts avec les surfaces d'appui, ou encore plus probablement qu'il se fragmente localement.

Sur la Figure 3.5a, la diminution instantanée de la charge indique une rupture fragile du granulé à l'échelle macroscopique, ce qui n'exclut pas l'existence d'une certaine ductilité à plus petite échelle au voisinage de la fissure. L'observation de l'essai à l'aide d'une caméra rapide permet d'associer la fissuration du granulé avec l'évolution de la courbe de charge.

Pour ce type de granulés, vingt essais brésiliens ont été réalisés. La Figure 3.5b témoigne de la dispersion des valeurs de charge et de déplacement obtenues. Cette dispersion provient à la fois du caractère fragile des granulés et de la dispersion de leurs formes qui entraîne une dispersion de la taille de la zone en traction conduisant à la rupture. De plus, il n'est pas exclu que le mode de préparation des granulés conduise à la formation de microfissures pour certains d'entre eux. La charge à rupture représentative de ces granulés est alors déterminée par statistique de Weibull [224], [58] (*cf.* Annexe D, p.171). Pour les granulés G160-500 $\mu$ , la charge à rupture ainsi calculée est de 1,6 N et le module de Weibull est de 3, valeur traduisant la grande dispersion des mesures. La moyenne arithmétique est égale quant à elle à 1,4 (Figure 3.5b).

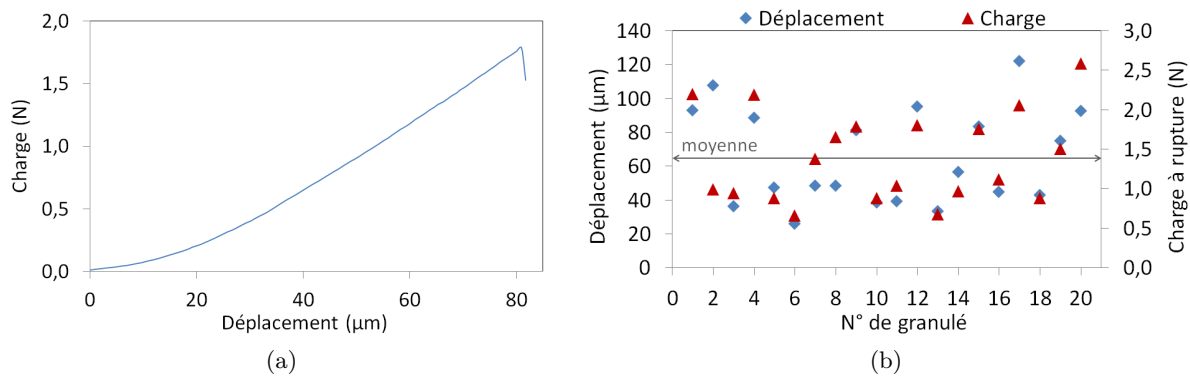


Figure 3.5 – Cisaillement de granulés G160-500 $\mu$  : a) évolution de la charge en fonction du déplacement du poinçon supérieur, b) valeurs des charges et déplacements pour les 20 écrasements.

### 3.2.2.2 Cisaillement de comprimés

Afin de déterminer la contrainte à rupture d'objets de forme maîtrisée, nous avons réalisé des essais brésiliens sur des comprimés cylindriques (dispositif décrit au paragraphe 2.3.2.2, p.68) mis en forme à la même contrainte que les granulés (600 MPa). Nous considérons alors qu'un comprimé est un granulé macroscopique cylindrique. Dix comprimés sont ainsi testés par application d'une force sur une génératrice du cylindre.

L'évolution de la charge appliquée sur le comprimé en fonction du déplacement du poinçon est similaire à celle enregistrée lors du cisaillement d'un seul granulé (Figure 3.6a), à savoir une évolution quasi-linéaire de la force après une phase d'établissement du contact, puis à la fin, une rupture brutale. Compte tenu des dimensions du comprimé ( $\phi = 10,11$  mm,  $h = 9,98$  mm), la charge à la rupture moyenne est plus élevée que pour un granulé :  $660 \text{ N} \pm 53 \text{ N}$  (Figure 3.6b). La dispersion des valeurs de charge à rupture et de déplacement est beaucoup plus faible que pour les granulés (module de Weibull égal à 15). La valeur moyenne du déplacement du poinçon supérieur est de  $114 \mu\text{m} \pm 10 \mu\text{m}$  (Figure 3.6b) et le module d'Young  $E$  des comprimés calculé à partir de cette valeur de déplacement est de  $579 \text{ MPa} \pm 24 \text{ MPa}$ . Cette valeur de  $E$  est environ sept fois supérieure à celle obtenue pour les granulés. Elle reste toutefois faible comparée au

module d'Young obtenu par mesures de fréquences de résonance, qui était d'environ 3 GPa pour un disque de poudre (*cf.* Tableau 2.1, p.58).

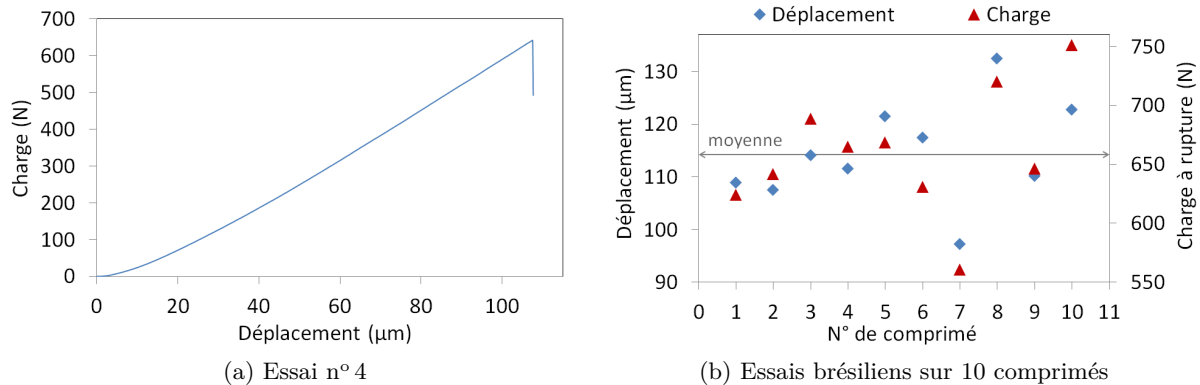


Figure 3.6 – Essais brésiliens sur des comprimés équivalents à des granulés G160-500 $\mu$  : a) évolution de la charge en fonction du déplacement du poinçon supérieur, b) valeurs des charges et déplacements pour les 10 essais.

La majorité des comprimés s'est rompue en trois morceaux (Figure 3.7a). La partie centrale est une plaquette d'une épaisseur correspondant à la surface d'appui du poinçon sur la face latérale du comprimé (notée « a » dans le paragraphe 1.1.3.3, p.13). Il se forme donc deux méplats sur le comprimé au droit des poinçons. Le comprimé n'étant pas totalement rigide, le déplacement ne correspond pas uniquement à une déformation élastique, et en conséquence la valeur du module d'Young calculée à partir du déplacement est sous-estimée. Par ailleurs, une modélisation de la rupture du comprimé en trois parties permettrait certainement de calculer de manière plus exacte la contrainte à rupture à partir de la force à rupture.

L'observation du faciès de rupture révèle de petites protubérances que la fissuration totale du comprimé a contournées (Figure 3.7b). Ces zones présentent des fissures secondaires qui sont également simulées dans des essais numériques de cisaillement bi-axial (*cf.* Figure 1.14, p.21). Les agrégats de poudre sont visibles, leur taille est d'environ 5  $\mu\text{m}$ . La rupture du comprimé à leur niveau semble avoir cassé les liaisons faibles qui les lient entre eux et non les liaisons solides qui lient les cristallites.

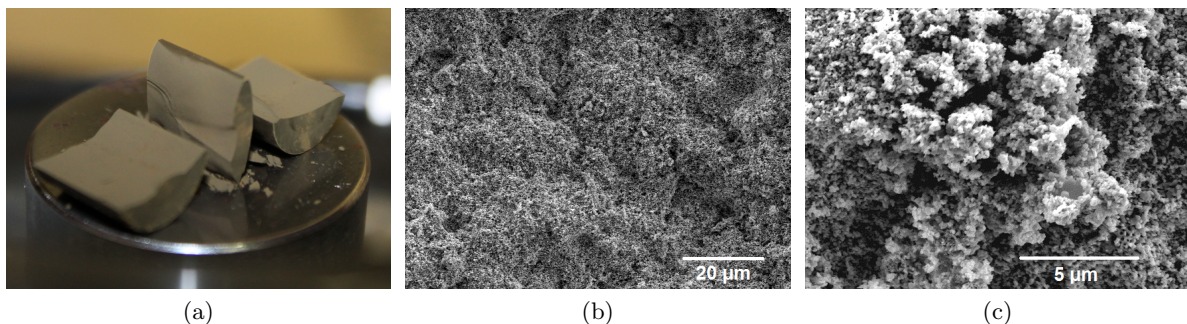


Figure 3.7 – Comprimé de poudre mis en forme à 600 MPa et cisailé lors d'un essai brésilien : a) photo de la division du comprimé en trois morceaux, b)c) faciès de rupture à différentes échelles.

### 3.2.2.3 Synthèse des essais brésiliens

La tenue mécanique des granulés est quantifiée par leur charge à rupture lors d'un essai brésilien. Toutefois, compte tenu de la difficulté à déterminer leur forme et de fait leur surface de rupture de manière précise, des comprimés de microstructure équivalente et aux géométries maîtrisées ont été fabriqués. Les valeurs de contrainte à rupture sont calculées suivant la relation (1.5) (p.14).

Le Tableau 3.1 regroupe les caractéristiques et les résultats des essais sur les granulés, comparés à ceux sur les comprimés considérés comme des granulés macroscopiques cylindriques. La différence de contrainte à rupture moyenne entre les 10 comprimés et les 20 granulés provient très certainement de l'estimation de la surface de rupture.

TABLEAU 3.1 – COMPARATIF DES RÉSULTATS ENTRE LES ESSAIS BRÉSILIENS EFFECTUÉS SUR DES GRANULÉS ET LES COMPRIMÉS ASSIMILÉS À DES GRANULÉS MACROSCOPIQUES (MOYENNES ET ÉCARTS-TYPES)

Nature de l'objet (nombre d'essais)	Granulé (20)	Comprimé (10)
Dimension de l'objet	$d_{\text{moy}} = 330 \mu\text{m}$	$d_{\text{moy}} = 10 \text{ mm}, h_{\text{moy}} = 10 \text{ mm}$
Surface de rupture	$2/\pi d_{\text{moy}}^2$	$2/\pi d_{\text{moy}} h_{\text{moy}}$
Charge à rupture (N)	$1,4 \pm 0,6$	$660 \pm 53$
Contrainte à rupture calculée (MPa)	$7,5 \pm 3,0$	$4,2 \pm 0,3$
Module d'Young (MPa)	$85 \pm 34$	$579 \pm 24$
Vitesse des ondes P (m/s)	$113 \pm 22$	$299 \pm 6$

Les valeurs du module d'Young déterminées à partir des essais brésiliens sont très largement inférieures au module d'Young de l'UO<sub>2</sub> (*cf.* Tableau 2.1, p.58), et conduisent alors à des valeurs anormalement faibles de la vitesse des ondes de compression, calculée selon l'expression (2.2) (p.58). Ces faibles valeurs de E indiquent également que la rupture se produit entre les agrégats et non dans les agrégats.

### 3.2.3 Signature acoustique de la rupture d'un granulé

Dans un premier temps nous nous assurons que la rupture d'un granulé faiblement cohésif produit une onde acoustique suffisamment énergétique et faiblement atténuée pour pouvoir être détectée par le capteur EA [225]. Dans un second temps, nous analysons les signaux enregistrés au moment de la rupture, en nous focalisant plus particulièrement sur les formes d'onde et les paramètres de salves, afin de dégager des descriptifs pertinents. L'influence du chemin de propagation de l'onde est également mise en évidence.

Les essais brésiliens de granulés réalisés sur la machine de micro-compression permettent de visualiser la fragmentation du granulé à l'aide de la caméra (Figure 3.8), et de suivre l'évolution de la charge en fonction du déplacement du poinçon avec une précision de 0,01 N.

En calant les différents enregistrements, à savoir du film, de l'évolution de la charge et des signaux acoustiques, il est alors possible de vérifier par une première approche que la fragmentation conduit à une émission acoustique significative et typique.

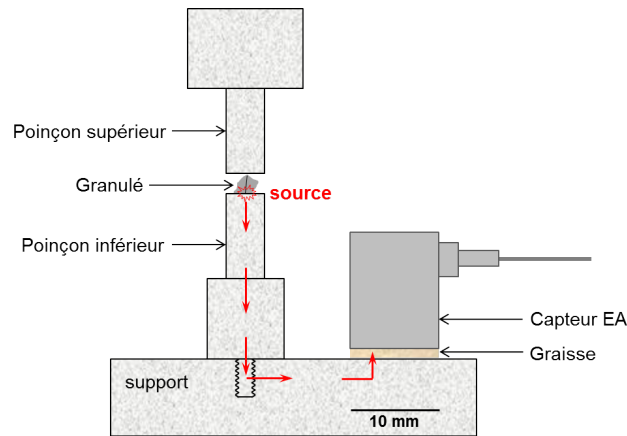


Figure 3.8 – Représentation schématique du parcours des ondes élastiques depuis la source (fragmentation du granulé) jusqu’au capteur EA au sein du dispositif de micro-compression.

Lorsque le poinçon supérieur entre en contact avec le granulé, aucun signal n’est enregistré pour un seuil de détection fixé à 25 dB. La première salve est acquise au moment de la formation d’une fissure ou lors du détachement de petits morceaux aux extrémités du granulé.

Le signal acoustique acquis au moment de la formation de la fissure unique du granulé n°8 (Figure 3.4a, p.85) correspond à un signal discret (Figure 3.9) dont l’enveloppe présente des caractéristiques particulières. Tout d’abord, le temps de montée est très rapide comparé à la durée totale de la salve qui est ici de 4400  $\mu\text{s}$ . Le pic de plus forte amplitude, ici de 56 dB, est atteint 68  $\mu\text{s}$  après le premier dépassement de seuil. Ensuite, le signal présente une décroissance globale de l’amplitude sur un temps long (environ 0,5 secondes). Cette partie du signal correspond soit à la propagation de la fissure au sein du granulé, ou plus probablement à la dispersion, diffusion, diffraction de l’onde au sein de la structure complexe du dispositif (Figure 3.8).

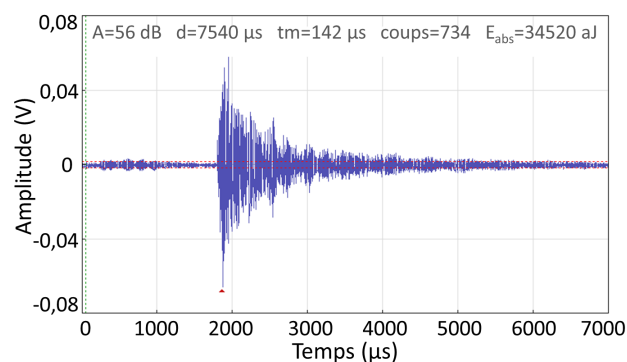


Figure 3.9 – Salve acquise au moment de la rupture du granulé n° 8 avec le dispositif de micro-compression.

Ces phénomènes physiques peuvent induire une décroissance de l’amplitude de l’onde, comme observé sur la Figure 3.9, mais également un spectre fréquentiel complexe où apparaissent plusieurs fréquences prépondérantes, à savoir 153, 170, 174, 198, 219 et 225 kHz (Figure 3.10a). La représentation du signal de la Figure 3.10b dans le plan temps-fréquence met plus particulière-

ment en exergue les fréquences 125, 170 et 225 kHz qui sont majoritairement présentes dans les premières 100  $\mu\text{s}$  de la salve. Nous rappelons que les fréquences 125 et 225 kHz correspondent à la résonance du capteur EA (*cf.* §2.4.1.1, p.69). La valeur 170 kHz semble donc, au premier abord, une fréquence caractéristique du phénomène de rupture. Une étude fréquentielle représentative de plusieurs essais brésiliens sur les granulés sera discutée plus loin.

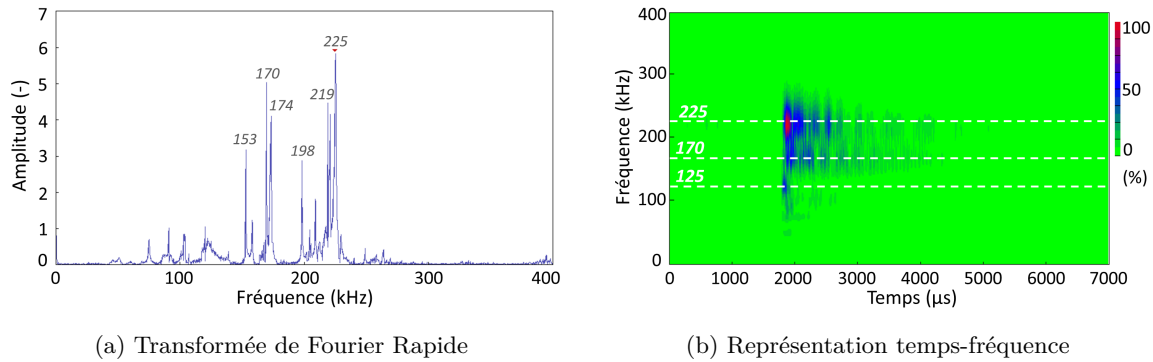


Figure 3.10 – Représentations fréquentielles de la salve acquise au moment de la rupture du granulé n° 8 avec le dispositif de micro-compression : a) Transformée de Fourier Rapide, b) représentation temps-fréquence.

Pour certains essais tels que l'essai n°4, plusieurs fissures semblent se créer simultanément (Figure 3.4b, p.85). Leur distinction n'est pas visible sur la courbe de charge et la vidéo ne permet pas de les dissocier visuellement. Cependant, la double fissuration de l'essai n°4 génère des salves successives et distinctes (Figure 3.11). Les temps de montée très rapides ( $< 100 \mu\text{s}$ ) des deux salves par rapport à leur durée totale suggèrent qu'elles sont générées par un ou plusieurs mécanismes de fragmentation. La deuxième salve qui débute 4030  $\mu\text{s}$  après le début de la première salve peut alors provenir soit de l'amorçage/propagation d'une deuxième fissure, soit de l'avancée de la première fissure, qui se serait arrêtée puis propagée à nouveau. Ainsi, un seul granulé peut entraîner l'émission de plusieurs salves successives.

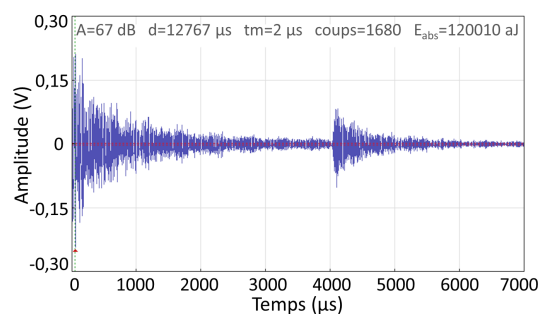


Figure 3.11 – Salves acquises au moment de la multi-fissuration du granulé n° 4 sur le dispositif de micro-compression.

Connaissant l'influence des « guides » d'onde sur la forme du signal enregistré nous avons procédé à des essais similaires mais sur la presse uniaxiale cette fois-ci (Figure 3.12). La propagation de l'onde depuis la zone de rupture jusqu'au capteur EA se fait via la zone de contact du granulé avec le poinçon supérieur, puis le long du poinçon. Les paramètres d'acquisition du signal sont inchangés.



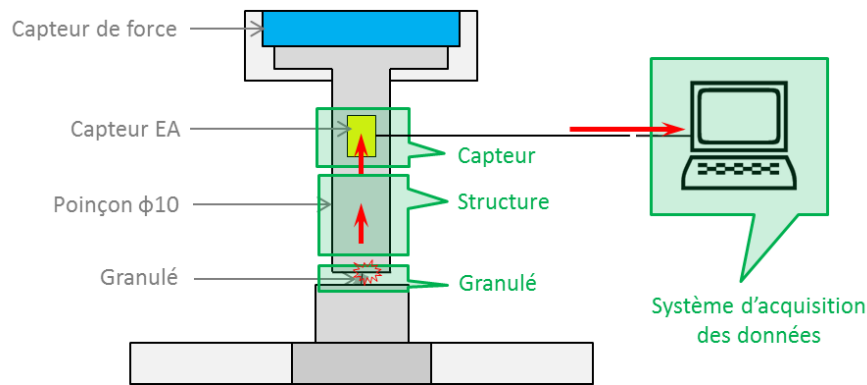


Figure 3.12 – Schéma du dispositif de la presse uni-axiale lors d'un essai brésilien sur un granulé et du cheminement de l'onde.

La charge appliquée par le poinçon supérieur sur le granulé est enregistrée par un capteur de force dont la plage de mesures s'étend de 0 à 7,5 kN et pour une plage étalonnée sur 0-750 N. La précision des mesures de force dans cette gamme est de 0,01 N, soit dix fois inférieure à la précision de la cellule de force de la machine de micro-compression. Cette précision reste toutefois très correcte. En revanche, celle de la mesure du déplacement est de 3  $\mu\text{m}$ , soit 15% du déplacement nécessaire à la rupture du granulé (*e.g.* 60  $\mu\text{m}$  pour le granulé de la Figure 3.5, p.86). La Figure 3.13 représente l'évolution de la charge appliquée sur le granulé en fonction du déplacement du poinçon supérieur. Compte tenu des incertitudes, la courbe de chargement peut être considérée comme similaire à celle obtenue avec la machine de micro-compression.

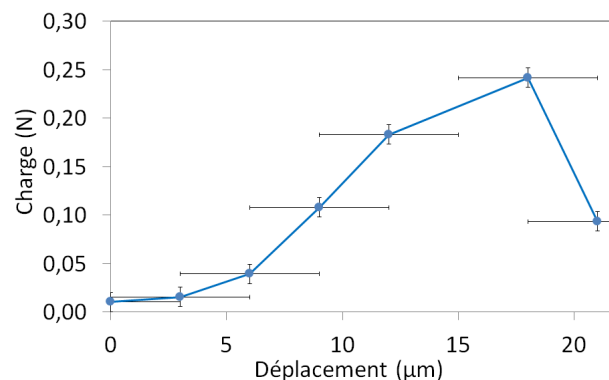


Figure 3.13 – Courbe de charge lors d'un essai brésilien d'un granulé réalisé sur la presse uni-axiale.

Au moment de la rupture du granulé cisailé sur la presse uniaxiale, une salve de 79 dB est acquise par le capteur EA (Figure 3.14a). Sa forme d'onde est similaire à celles observées lors des essais brésiliens sur la machine de micro-compression, comme l'atteste la salve de l'essai n°7 (Figure 3.14b), représentative de l'ensemble des essais. Ainsi, la structure des dispositifs et les conditions de fixation du capteur EA (position et couplage) ne modifient pas la forme d'onde, mais peuvent avoir un impact sur ses caractéristiques. L'amplitude de la salve émise par la rupture est en moyenne plus grande sur la presse uniaxiale que sur la machine de micro-compression.

Pour rapprocher le récepteur au plus près de la source, nous avons fixé le capteur EA direc-

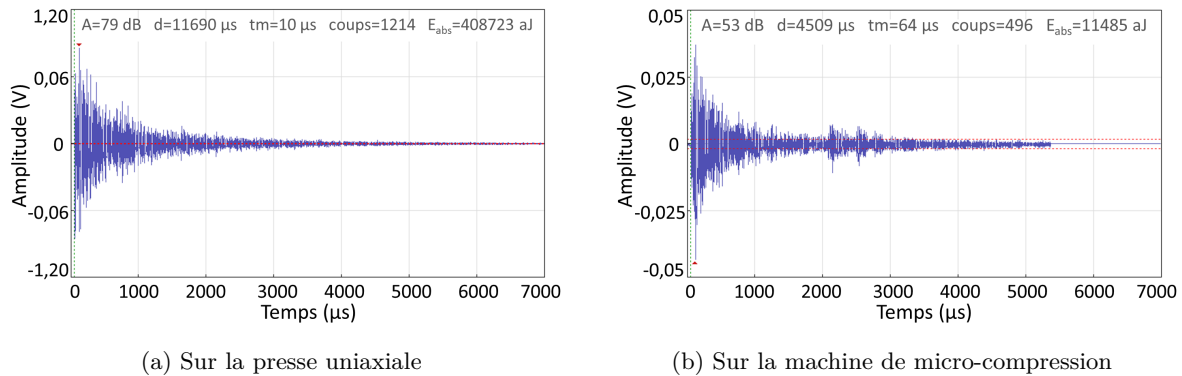


Figure 3.14 – Salves caractéristiques enregistrées au moment de la rupture d'un granulé à l'aide de : a) la presse uniaxiale, b) la machine de micro-compression.

tement sur le matériau. Compte tenu de la difficulté à coupler le capteur à un granulé de par sa taille inférieure au millimètre, nous le faisons sur la face d'un comprimé mis en forme à 300 MPa et constitué de granulés G160-500 $\mu$  (Figure 3.15). Son maintien est assuré par la viscosité de la graisse utilisée comme couplant et un morceau de scotch positionné sur le câble coaxial.

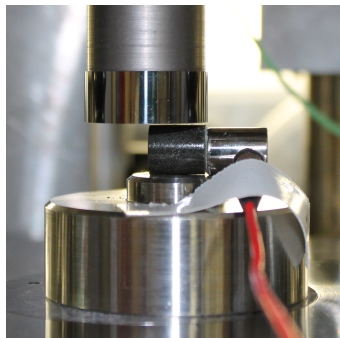


Figure 3.15 – Capteur EA fixé sur un comprimé pendant un essai brésilien à 0,01 mm/s.

Le dispositif utilisé et le chemin de propagation des ondes émises lors de la rupture du comprimé pour chacune des positions du capteur EA sont schématisés sur la Figure 3.16. La différence essentielle entre les deux configurations est le chemin de propagation de l'onde.

Les conditions d'essais sont les mêmes que pour les essais brésiliens réalisés sur les granulés. Pour la première série d'essais, le capteur EA est positionné sur le poinçon supérieur (configuration n°1), tandis que pour la deuxième, le capteur EA est fixé directement sur le comprimé (configuration n°2). Pour chacune des séries, trois essais sont réalisés. Par souci de clarté, nous ne présentons ici que la comparaison de deux essais.

Quelle que soit la position du capteur, une même évolution de la charge appliquée sur le comprimé en fonction du déplacement du poinçon supérieur est constatée (Figure 3.17). La rupture des comprimés ou leur fissuration se produit à 70 N pour la configuration n°1 et à 65 N pour la configuration n°2, alors que le poinçon s'est déplacé respectivement de 69 et 71  $\mu$ m. La similitude des comportements mécaniques montre que le positionnement du capteur sur le comprimé n'affecte pas (ou peu) ce dernier, et autorise la comparaison des signaux émis par leur rupture.

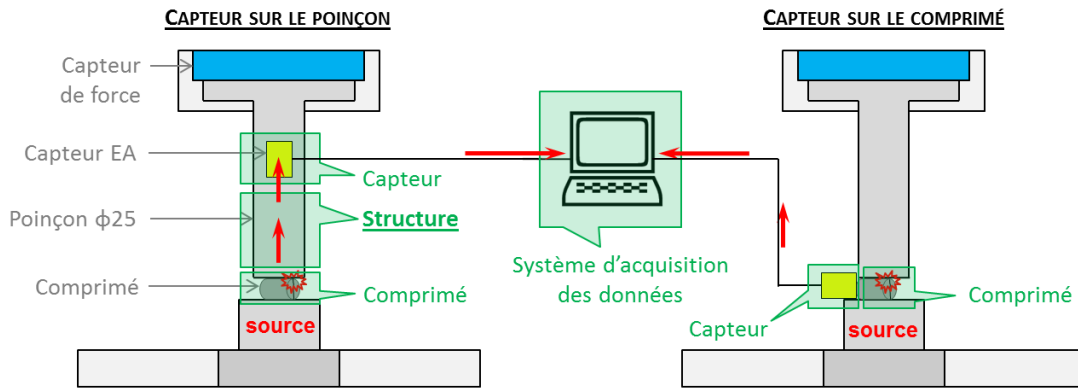


Figure 3.16 – Schéma du dispositif d'essai brésilien sur les comprimés et positionnement du capteur EA sur le poinçon (gauche) et sur le comprimé (droite).

Avant la rupture des deux comprimés, des salves de faibles amplitudes ( $< 40$  dB) et de formes d'onde diverses sont enregistrées dès le contact du poinçon avec les comprimés. Au moment où la fissuration se produit, des salves de type fragmentation sont acquises (Figure 3.18). Les valeurs caractéristiques de l'onde sont également reportées sur cette figure. Nous retrouvons bien les caractéristiques de signaux émis par une rupture, notamment leur temps de montée  $t_m$  court par rapport à leur durée totale  $d$ .

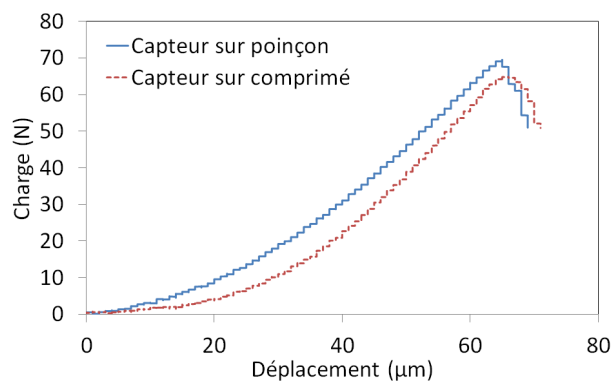


Figure 3.17 – Courbes de charge-déplacement de deux comprimés de granulés G160-500 $\mu$  mis en forme à 300 MPa : pour l'un le capteur est placé sur le poinçon supérieur, pour l'autre le capteur est directement placé au contact du comprimé.

Une différence notable sur la longueur de la coda est visible entre les deux salves. Lorsque l'onde émise par la rupture parcourt uniquement une partie du comprimé avant d'arriver au capteur (Figure 3.18b), la coda est quasi-inexistante et la durée de la salve est très courte (794  $\mu$ s).

Enfin, l'amplitude  $A$  et l'énergie absolue  $E_{abs}$  des salves sont plus faibles lorsque le capteur se trouve sur le poinçon supérieur, alors que les comportements mécaniques sont similaires entre les deux essais (Figure 3.17). Ceci s'explique par une dissipation de l'énergie lors de la propagation de l'onde dans le poinçon et la structure, entraînant une diminution de l'amplitude [112]. Ainsi, la comparaison de ces deux configurations d'acquisition du signal révèle le fort impact de la structure sur les caractéristiques des ondes qui arrivent au récepteur.

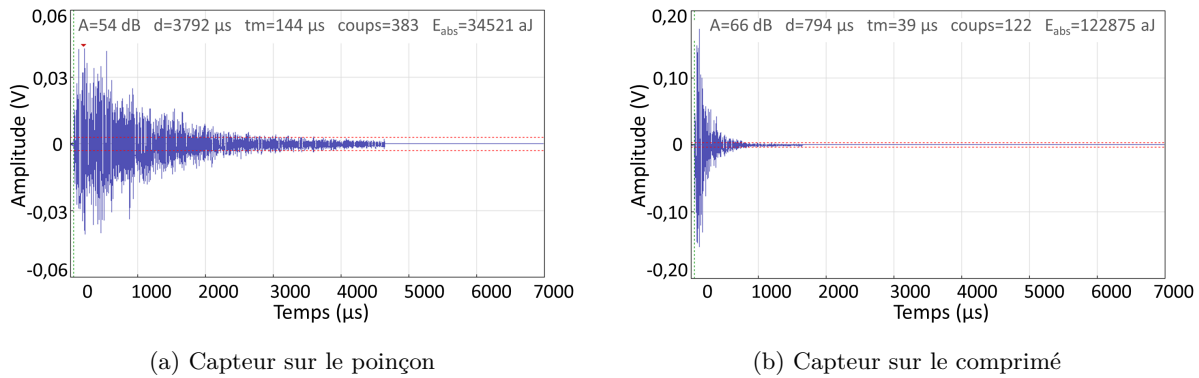


Figure 3.18 – Salves lors de la rupture d'un comprimé pendant un essai brésilien : a) capteur EA placé sur le poinçon supérieur, b) capteur EA fixé sur le comprimé.

Précisons que les spectres fréquentiels des deux signaux de la Figure 3.18 ne permettent pas d'identifier de fréquences caractéristiques de la fonction de transfert de la structure.

En conclusion, en isolant le phénomène de rupture des granulés, nous avons pu définir une signature acoustique de la fragmentation :

- un temps de montée rapide de quelques dizaines de microsecondes,
- une forme d'onde présentant une forte amplitude au début de la salve, suivie d'une décroissance de cette amplitude sur quelques millisecondes,
- une forte influence de la structure qui permet à l'onde d'arriver au récepteur.

### 3.2.4 Corrélation entre contrainte à la rupture et amplitude de salves

Sur les vingt essais brésiliens de granulés réalisés avec la machine de micro-compression, treize essais ont abouti à l'acquisition d'une seule salve ou de plusieurs salves successives au moment de leur fragmentation. Les essais n°2, 3, 5, 12, 14, 15 et 20 ont entraîné la formation d'une fissure sans qu'aucun signal acoustique ne soit acquis. La raison peut provenir soit d'une émission trop peu énergétique et dont l'amplitude est inférieure au seuil de détection de 25 dB, soit à une atténuation de l'onde dans la structure, ou encore à une position du granulé entraînant la rupture du chemin de propagation de l'onde jusqu'au capteur.

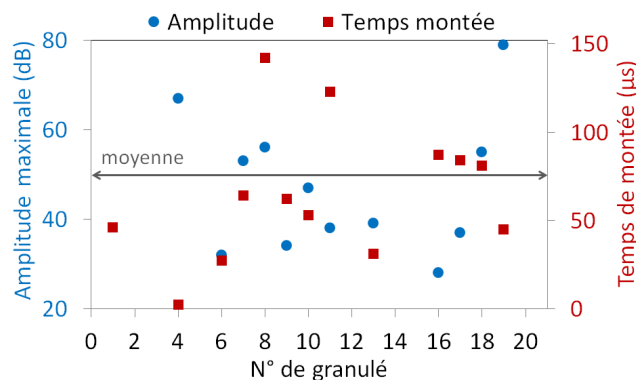


Figure 3.19 – Dispersion des valeurs d'amplitude maximale et de temps de montée des salves acquises au moment de la rupture par essais brésiliens des granulés G160-500μ.

La dispersion des amplitudes maximales de salves en dB et celle du temps de montée en  $\mu\text{s}$  sont représentées sur la Figure 3.19. Le temps de montée varie entre 2 et 123  $\mu\text{s}$  avec une moyenne arithmétique égale à 65  $\mu\text{s}$ . Sachant que la durée totale de la salve est de l'ordre de la milliseconde, la dispersion des valeurs de temps de montée est très faible. Le temps de montée peut donc être un paramètre discriminant de la signature acoustique de la fragmentation d'un granulé.

L'amplitude maximale des salves émises à la rupture des granulés est comprise entre 28 et 85 dB avec une moyenne arithmétique de 50 dB (Figure 3.19). Sachant que l'amplification du signal électrique induit des salves d'amplitude 100 dB au maximum, et que le seuil de détection est fixé à 25 dB, la dispersion des amplitudes des 13 salves acquises est relativement grande.

Par ailleurs, la rupture d'un granulé libère de l'énergie et il est attendu que cette énergie augmente avec la cohésion du granulé, i.e. sa charge à rupture. La Figure 3.20a confirme cette hypothèse en illustrant l'augmentation de l'amplitude maximale des salves, et donc de l'énergie associée, avec la charge à rupture. En effet, l'énergie absolue d'une salve est l'intégrale de l'amplitude au carré sur la durée de la salve. Ainsi, l'énergie absolue des salves augmente également avec la charge à rupture des granulés cisailés (Figure 3.20b).

Nous montrons donc que l'énergie d'une onde acoustique est liée à l'énergie de la fragmentation qui en est la source.

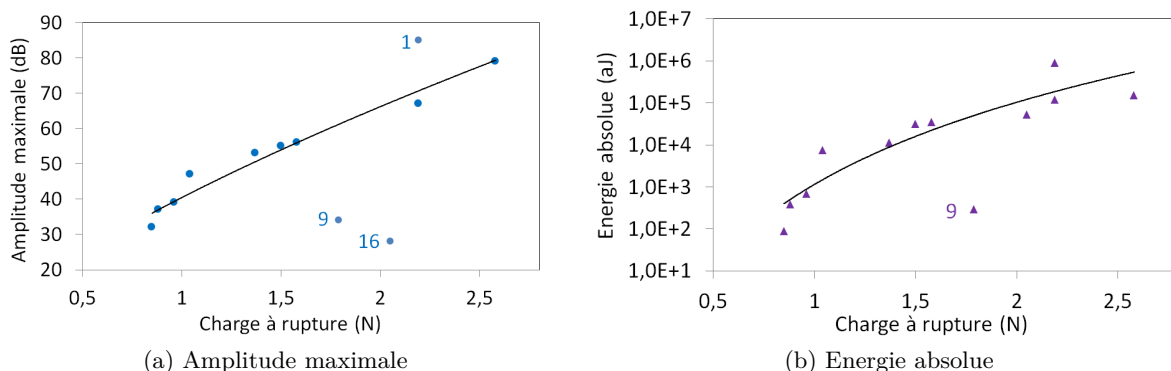


Figure 3.20 – Essais brésiliens des granulés G160-500 $\mu$  : a) évolution de l'amplitude maximale des salves en fonction de la charge à rupture du granulé, b) évolution de l'énergie absolue des salves en fonction de la charge à rupture.

Les fréquences prédominantes des signaux enregistrés lors de la rupture sont reportées sur la Figure 3.21a où les trois couleurs sont associées à trois configurations différentes pour lesquelles la position et le couplage du capteur étaient différents (Figure 3.21b). Les fréquences 122, 172 et 224 kHz sont majoritairement présentes parmi tous les essais (2 configurations sur 3), alors que les fréquences 75 et 275 kHz sont retrouvées pour une seule configuration du montage. De plus, les fréquences de résonance du capteur étant de 125 kHz et 225 kHz (*cf.* §2.4.1.1, p.69), les fréquences 122 et 224 kHz proviennent très certainement de la résonance du capteur et non d'une signature d'un mécanisme de rupture. Ainsi, les fréquences 75, 172 et 275 kHz peuvent être attribuées à la rupture du granulé. La position du capteur et son couplage semblent influencer le contenu fréquentiel de l'onde arrivant au capteur alors que la source est identique.

Au vu des résultats des EA enregistrées au moment de la rupture des granulés, la forme

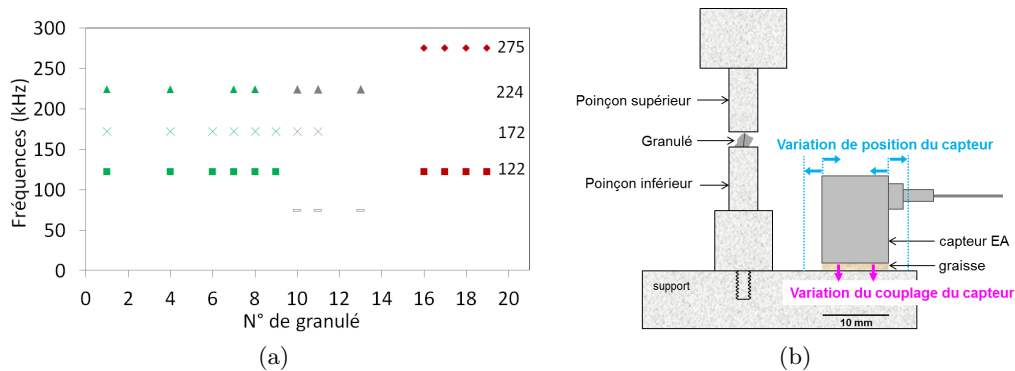


Figure 3.21 – Essais brésiliens des granulés G160-500 $\mu$  sur la machine de micro-compression : a) fréquences identifiées par analyse temps-fréquence des salves émises lors de la rupture des granulés (essais n°1 à n°19), b) variation de la position et du couplage du capteur EA.

d'onde et le temps de montée du signal semblent des critères discriminants. En effet, chaque rupture a généré une salve de forme typique : un temps de montée très court et une décroissance lente. La signature acoustique du mécanisme de fragmentation d'un granulé est donc mise en évidence par leur cisaillement individuel, même s'il a été montré que des signaux de formes très similaires peuvent être générés par deux sources différentes [119]. Ces essais ont également permis de montrer qu'il est possible d'identifier par EA la formation de plusieurs fissures que les courbes de charge et/ou le suivi par caméra rapide ne discernent pas. L'analyse temps-fréquence montre qu'il n'est pas possible d'associer simplement une fréquence à un mécanisme, vu la complexité des phénomènes de propagation rencontrés et le fonctionnement des capteurs.

### 3.3 Emission acoustique lors de la compaction d'un lit de granulés

Lors des essais brésiliens réalisés sur les granulés, les ondes acoustiques acquises proviennent d'un seul mécanisme source qui est la fragmentation. La compaction d'un lit de granulés à l'aide de la presse uniaxiale va quant à elle conduire à l'apparition de mécanismes nouveaux, tels que les réarrangements qui génèrent des frottements par glissement entre les granulés. De plus, les fortes contraintes mises en jeu, lors d'un essai de compaction et au sein d'un milieu granulaire confiné par la chambre de compaction, conduisent à des frottements des granulés avec les parois [226] et des déformations de la structure (*cf.* compliance, §2.3.1.2, p.65). Certains de ces mécanismes vont émettre des ondes qui pourront alors être enregistrées par le capteur EA. De plus, la propagation des ondes depuis leur source jusqu'au capteur va être impactée par la forte évolution du lit de granulés au cours de sa compaction, qui passe de manière continue d'un milieu granulaire aéré et peu cohésif à un état poreux cohésif.

Devant le nombre de sources potentielles d'ondes acoustiques, nous analysons d'abord le signal sans le discrétiser en salves pour conserver un maximum d'informations et tenter d'associer les formes d'ondes et leur sources. Puis nous découpons le signal en salves et nous mettons en oeuvre une analyse du signal discrétisé, monoparamètre dans un premier temps et multiparamètres dans un second temps.

### 3.3.1 Signal brut

La compression du lit de granulés G160-500 $\mu$  est suivie par EA et le dispositif expérimental ainsi que la chaîne d'EA sont schématisés sur la Figure 2.28 (p.78). L'enregistrement des signaux est déclenché au moment où le poinçon supérieur entre en contact avec les granulés et arrêté lorsque la contrainte a atteint le palier de compression.

La représentation temporelle du signal brut (Figure 3.22a), enregistré lors de la compaction des granulés à une vitesse de 1 mm/s, met en évidence une activité acoustique significative 1,6 secondes après l'entrée en contact du poinçon supérieur avec les granulés (zone 1), et jusqu'au palier de compression à 600 MPa. L'amplitude du signal varie de quelques mV à 2 V et permet d'identifier la gamme de pression pour laquelle les ondes sont les plus énergétiques, à savoir entre 0,1 MPa et environ 180 MPa (zone 2).

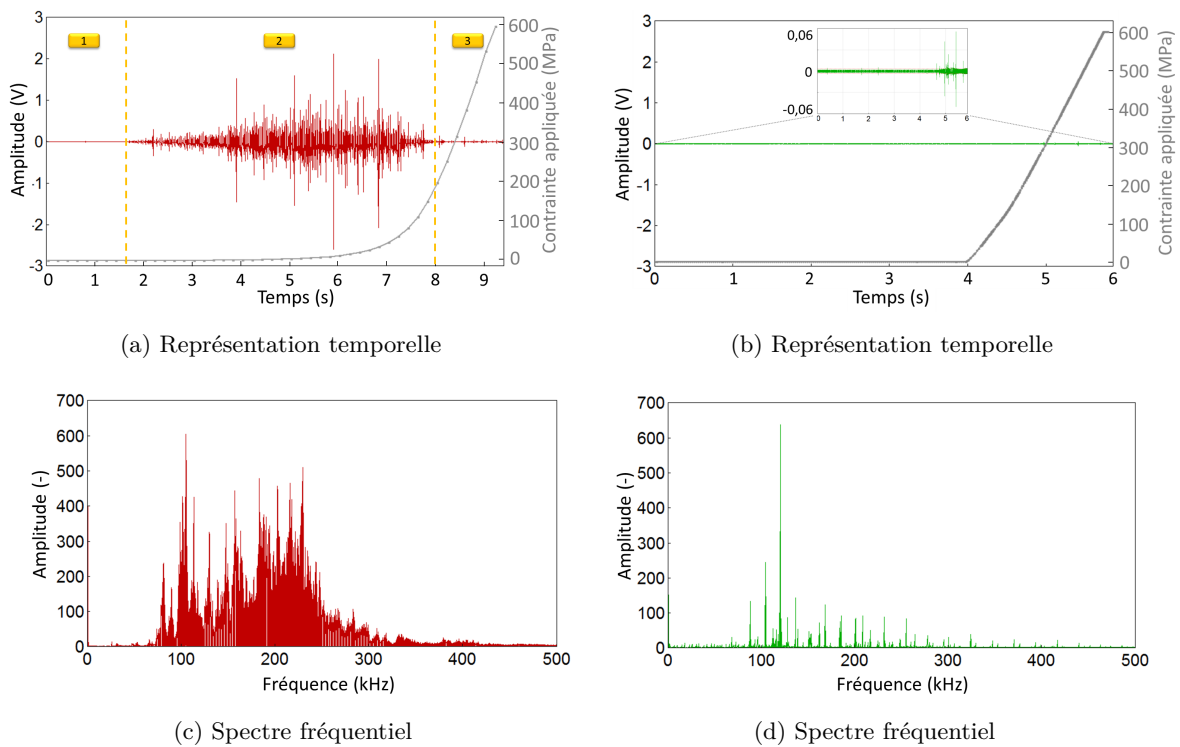


Figure 3.22 – Signaux continus bruts acquis lors : a,c) de la compression de granulés G160-500 $\mu$ , b,d) d'un essai de compliance.

Le signal brut acquis lors d'un essai de compliance (Figure 3.22b), réalisé dans les mêmes conditions d'enregistrement que la compaction des granulés, révèle une activité acoustique très faible dont l'amplitude est inférieure à 0,06 V. Cette mise en parallèle des signaux bruts, acquis avec et sans les granulés, témoigne de l'aptitude des mécanismes de fragmentation et de friction des granulés G160-500 $\mu$  à émettre des ondes acoustiques qui se propagent à travers le poinçon supérieur jusqu'au capteur EA. L'absorption et/ou la diffusion de ces ondes dans le milieu granulaire, puis dans le poinçon supérieur, demeurent cependant inconnues et leur quantification indéterminée.

Le spectre fréquentiel du signal obtenu en présence des granulés (Figure 3.22c) est contenu dans la gamme de fréquences pour laquelle la sensibilité du capteur est la plus élevée, *i.e.* 50-

600 kHz (*cf.* Annexe E, p.173). Il ne permet pas de distinguer des fréquences prépondérantes qui pourraient permettre de dissocier le mécanisme de rupture de celui des frottements induits par les réarrangements. Le spectre fréquentiel de l'essai de compliance met quant à lui en évidence le pic centré en 120 kHz (Figure 3.22d), fréquence de résonance du capteur.

### 3.3.1.1 Sources d'émissions acoustiques autres que la compaction des granulés

Le signal enregistré pendant un essai de compliance (Figure 3.22b) présente des pics qui dépassent le seuil de détection, ce qui signifie que des ondes différentes du bruit de fond sont acquises par le capteur EA. Le Tableau 3.2 répertorie les origines potentielles des sources d'EA et les moyens mis en œuvre pour les éliminer ou les minimiser.

TABLEAU 3.2 – SOURCES DES ÉMISSIONS POTENTIELLES, AUTRES QUE LA COMPACTION DES GRANULÉS

	Sources d'émissions acoustiques	Acquisition de signaux	Moyens d'élimination ou de minimisation
A	Vibrations mécaniques du poinçon supérieur	Oui	Forme d'onde spécifique
	Frottements entre les pièces métalliques (poinçons/parois)	Non	-
B	Déformation de la chaîne de traction et/ou de la matrice aux fortes contraintes	Oui	Forme d'onde spécifique
C	Frottements granulés/parois de la matrice	Oui	Lubrification de la matrice

#### A – Vibrations mécaniques et frottements entre les pièces métalliques

Lorsque le poinçon supérieur se déplace, ses vibrations et les frottements entre les vis d'entraînement de la traverse supportant le poinçon et les écrous, ainsi que les frottements entre le poinçon et les parois de la matrice, sont des sources potentielles d'EA.

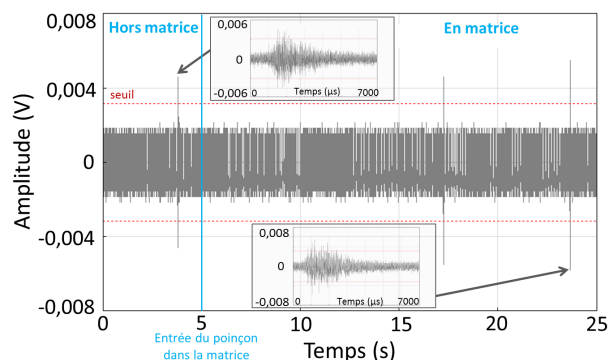


Figure 3.23 – Signal acquis lors de la descente du poinçon supérieur en dehors de la matrice puis le long des parois de la matrice.

Le signal brut enregistré par le capteur EA fixé sur le poinçon est majoritairement en dessous du seuil de détection de 30 dB lorsque le poinçon supérieur se déplace librement en dehors de la



matrice, puis dans la matrice aux parois lubrifiées (Figure 3.23). Ce signal continu correspond au bruit de fond. En revanche, quelques pics d'amplitude inférieure ou égale à 0,006 V (35 dB) dépassent le seuil, et leur représentation sur 7000  $\mu\text{s}$  montre une forme « allongée asymétrique ». Cette forme est acquise toutes les 5 secondes en moyenne.

Le pic émis hors matrice est attribué aux vibrations mécaniques uniquement, alors que les pics visibles lorsque le poinçon se déplace dans la matrice peuvent provenir soit des vibrations, soit des frottements poinçon/matrice. Notons que l'entrée du poinçon dans la matrice n'émet aucun signal.

Lorsque le capteur EA est placé sur la surface de la matrice (Figure 2.18, p.70), les ondes émises par les éventuels frottements parois/matrice devraient être enregistrées. Or, aucun pic n'est visible lorsque le poinçon est en mouvement, en dehors et le long des parois de la matrice. Cela prouve donc que tous les pics acquis par le capteur EA fixé sur le poinçon sont dus aux vibrations mécaniques du poinçon.

Ainsi, les vibrations mécaniques du poinçon peuvent être enregistrées par EA pendant la compaction des granulés. Toutefois, compte tenu de l'acquisition d'un dépassement de seuil toutes les 5 secondes et de la forme du signal caractéristique, ce phénomène parasite sera négligé.

#### B – Déformation de la chaîne de traction et de la matrice

Pendant un essai de compliance, l'appui entre les deux poinçons jusqu'à des contraintes élevées entraîne une déformation globale de la chaîne de traction (*cf.* §2.3.1.2, p.65).

L'EA est enregistrée pendant un essai de compliance en matrice  $\phi 10$  (Figure 3.24), le capteur EA étant fixé sur le poinçon supérieur. Au contact entre les deux poinçons ( $t = 4$  s), la contrainte augmente nettement et un premier pic est observé dès les premiers MPa. Nous distinguons 12 pics d'amplitudes comprises entre 0,005 et 0,06 V (38 et 56 dB) dont la forme correspond à une montée rapide suivie d'une décroissance lente. De plus, de nombreux dépassements de seuils d'amplitude inférieure à 0,005 V sont présents. Ils correspondent à une augmentation du bruit de fond présentant une forme d'onde en « bouffée ».

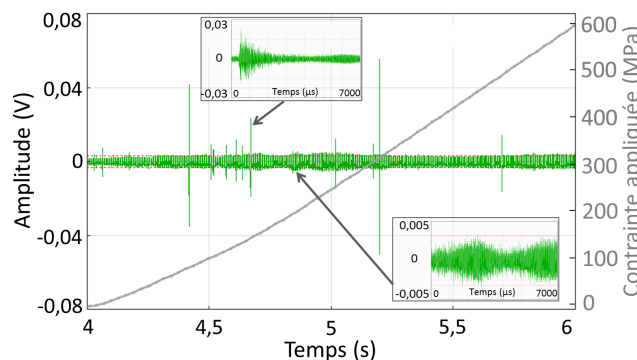


Figure 3.24 – Signal acquis lors d'un essai de compliance en matrice  $\phi 10$ .

Ces formes en bouffées sont alors attribuées à la déformation de la chaîne de traction, ou bien à la déformation du capteur de force placé à la base du poinçon supérieur. Notons que la présence des granulés peut ajouter un phénomène indésirable supplémentaire comparé à l'essai

de compliance, qui est la déformation de la matrice [76]. En effet, l'appui radial du lit de granulés contre les parois de la matrice peut générer des micro-déplacements, et donc des ondes élastiques. Toutefois la matrice étant constituée d'un insert de carbure de tungstène fretté dans une matrice en acier, sa déformation sous l'effet de la force appliquée par les granulés doit être très faible.

### C – Frottements granulés/parois de la matrice

Lorsque les parois de la matrice ne sont pas lubrifiées, les frottements entre les granulés et les parois de la matrice sont exacerbés et deviennent audibles. À partir d'environ 60 MPa, de nombreux pics d'amplitude égale à 99 dB sont enregistrés et alors attribués aux frottements entre le compact et les parois. Cette amplitude signifie que le signal sature à 10 V, comme le montre la Figure 3.25, rendant difficile l'exploitation de ces signaux. La lubrification des parois de la matrice par une vaporisation d'un spray de stéarate de zinc permet donc de minimiser fortement ces frottements. Il est cependant envisagé que des signaux de plus faibles amplitudes soient émis par ces frottements même si la matrice est lubrifiée.

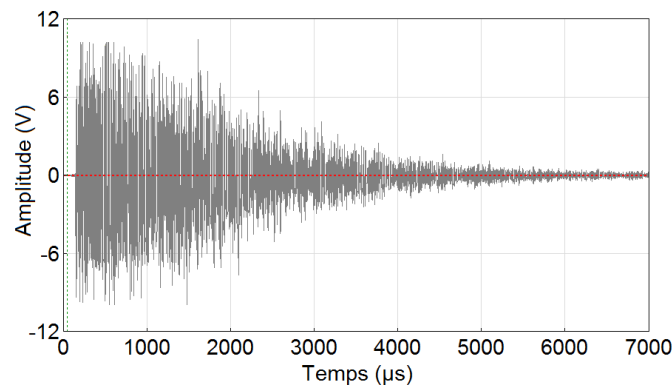


Figure 3.25 – Exemple du signal acquis lors de la compaction en l'absence de lubrification des parois de la matrice. Pour cet exemple, la pression appliquée est d'environ 65 MPa.

Ainsi, les EA que nous pouvons retrouver lors de la compaction des granulés concernent les vibrations du poinçon supérieur et la déformation de la chaîne de traction dès les premiers MPa. Elles sont reconnaissables par leur forme d'onde spécifique, une forme allongée pour les vibrations et des bouffées pour les déformations. Compte-tenu du faible nombre de ces signaux indésirables, ainsi que de leur amplitude inférieure à 35 dB pour la majorité, ils ne seront pas soustraits du signal brut avant son traitement.

#### 3.3.1.2 Formes d'onde au cours de la compaction

L'objectif étant d'attribuer une signature acoustique aux mécanismes de réarrangement et de fragmentation, nous analysons le signal brut acquis lors de la compaction des granulés (Figure 3.22a, p.97) à l'échelle d'une salve de rupture d'un granulé, *i.e.* 7000  $\mu$ s. Cette analyse est réalisée pour chacune des zones identifiées, à savoir entre 0 et 1,6 s (1), entre 1,6 et 8,0 s (2) et enfin entre 8,0 et 9,4 s (3).

Zone (1) : Densification sous faibles contraintes

Au début de la compaction, le poinçon appuie sur les granulés avec une contrainte inférieure à 0,2 MPa qui correspond à la limite de précision du capteur de force 60 kN (*cf.* Tableau 2.4, p.65). De par cette faible contrainte, les réarrangements devraient être favorisés devant les fragmentations. Néanmoins, les granulés préalablement fissurés ou les arrêtes fragiles peuvent également se casser par le simple contact d'un autre granulé. Ainsi, la faible quantité de pics d'EA (Figure 3.26) peut s'expliquer par des frottements et fragmentations peu énergétiques ou par un réseau de contact très faible. En effet, l'empilement est peu cohésif, les contacts servant de guide d'onde ont une faible surface, et les espaces remplis d'air sont en plus grande quantité que ceux pris par les granulés. Les formes d'onde observées sont soit de type « allongé », soit très brèves (d'une durée d'environ 500  $\mu$ s). Remarquons que le signal continu observé en-dessous du seuil de détection correspond au bruit de fond de l'essai.

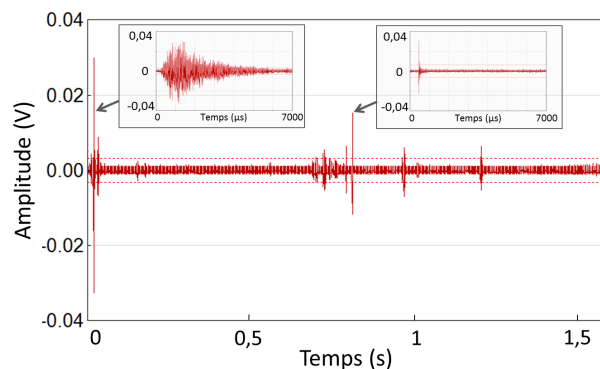


Figure 3.26 – Signal acquis au début de la compaction des granules « zone 1 ».

Afin d'étudier de manière plus précise les premiers réarrangements et fragmentations des granules, nous utilisons le capteur 7,5 kN dans sa gamme de sensibilité 0-750 N (Tableau 2.4, p.65). Pour minimiser les effets de bords, une matrice  $\phi 25$  est utilisée et la hauteur de la chambre de compaction est fixée à 2 mm. Ainsi, la précision du capteur est de l'ordre de 0,001 MPa.

L'objectif premier est de vérifier si les granules se sont fragmentés (ou non) jusqu'aux contraintes appliquées choisies, à savoir 0,1 MPa, 0,4 MPa, 0,8 MPa, 7,7 MPa et 16,4 MPa. Les faibles contraintes appliquées permettent d'obtenir des compacts friables qui reviennent à l'état pulvérulent dès leur éjection de la matrice.

Afin de pouvoir suivre par granulométrie laser l'évolution de la distribution granulométrique, nous avons mis en œuvre pour ces essais des granules dont la répartition initiale est comprise entre 45 et 160  $\mu$ m (courbe rouge pointillée sur la Figure 3.27). La distribution de taille en pourcentage volumique est centrée sur 130  $\mu$ m. La présence de granules supérieurs à 160  $\mu$ m peut s'expliquer par la forme allongée de certains granules. Les petits granules peuvent soit provenir de la fragmentation des granules par leur manipulation et/ou la mise en suspension lors de l'analyse.

Pour chaque contrainte appliquée, trois prises d'essais sont réalisées et analysées. La population des plus petits granules augmente, comme attendu, dès l'application de 0,8 MPa (Figure 3.27). Le diamètre  $d_{50}$  (*cf.* §2.2.4.1, p.60) diminue fortement entre les granules non com-

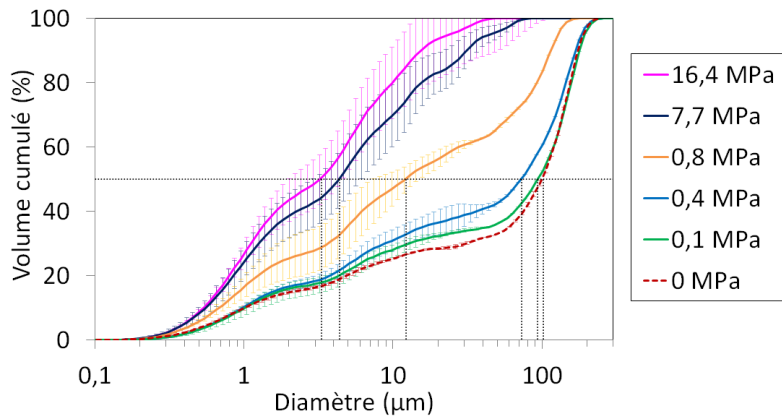


Figure 3.27 – Distributions granulométriques des granulés 45-160 $\mu$  compactés de 0 à 16,4 MPa en matrice  $\phi 25$ .

compactés (102  $\mu\text{m}$ ) et ceux compactés à 7,7 et 16,4 MPa (4  $\mu\text{m}$  et 3  $\mu\text{m}$  respectivement). Entre 0 et 0,4 MPa, seuls les granulés de diamètre moyen compris entre 20 et 80  $\mu\text{m}$  se fragmentent, le diamètre maximal restant inchangé. La micrographie des granulés compactés à 0,1 MPa (Figure 3.28b) montre des granulés fissurés ou fragmentés en plusieurs morceaux mais de manière non significative par rapport aux granulés initiaux (Figure 3.28a).

Au-delà de 0,8 MPa, les granulés G45-160 $\mu$  se fissurent et se fragmentent en plusieurs morceaux. L'application d'une contrainte de quelques MPa entraîne la fragmentation de granulés réduits alors en des fragments de taille inférieure à 10  $\mu\text{m}$  (Figure 3.28d). La taille maximale des granulés diminue également.

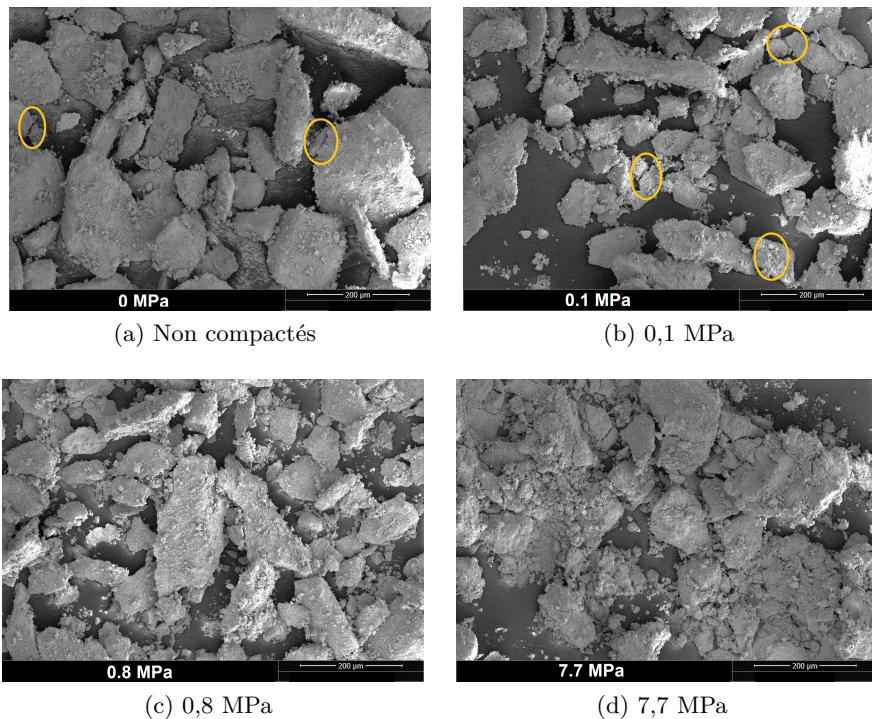


Figure 3.28 – Micrographies de granulés G45-160 $\mu$  : a) non compactés, b)c)d) compactés.

L'observation fine des premiers instants de compaction révèle une évolution non monotone

de la contrainte (Figure 3.29). La compacité  $\rho$  initiale (densité de remplissage) du lit de granulés dans la chambre de hauteur 2 mm est de 0,260. Le léger saut de contrainte observé au premier contact du poinçon avec les granulés peut être dû à une répartition non uniforme des granulés en surface.

La contrainte augmente très légèrement jusqu'à la compacité de 0,285, et trois signaux de forme d'onde similaire à ceux produits par la vibration du poinçon sont enregistrés sur cet intervalle lorsque la compacité vaut 0,265. L'activité acoustique reste cependant très faible entre les compacités 0,260 et 0,285 alors que les granulés se réarrangent, comme en témoigne la densification du milieu. Ceci peut être consécutif à un seuil de détection trop élevé, ou à des ondes émises par le glissement des granulés les uns sur les autres trop faible pour être détectées, ou bien encore à un milieu fortement dissipatif car très poreux.

Une augmentation rapide suivie d'une diminution nette de la contrainte appliquée est observée à une compacité d'environ 0,288 et des salves sont acquises au même moment. Précisons que le signal brut est discrétisé en salves pour cet essai. Deux phénomènes peuvent entraîner cette baisse de contrainte de 0,05 MPa. Le premier est un réarrangement soudain des granulés sans fragmentation, libérant ainsi de l'espace libre. Le deuxième est la fragmentation d'un certain nombre de granulés provoquant également une libération d'espace, et donc un relâchement des contraintes. Les valeurs négatives de contrainte sont dues à un léger décalage du zéro du capteur.

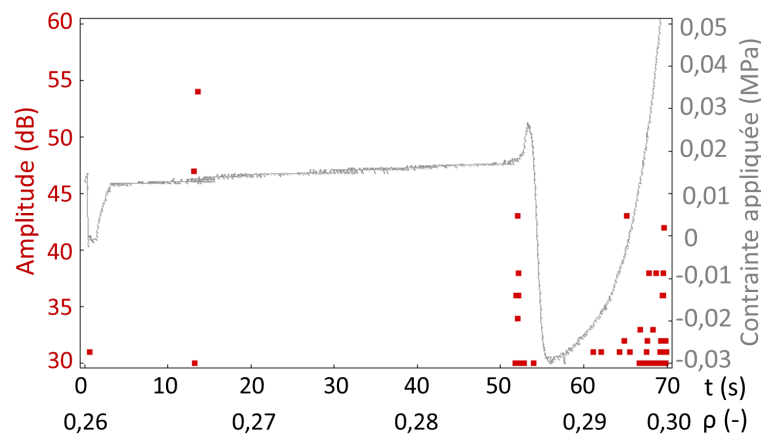


Figure 3.29 – Emission acoustique des réarrangements de granulés G45-160 $\mu$  compactés jusqu'à 0,05 MPa à la vitesse de 0,01 mm/s et contrainte appliquée en fonction du temps et de la densité du lit de granulés.

Les onze salves acquises lors de la chute brutale de la contrainte possèdent des valeurs de paramètres diverses. Cependant, cinq d'entre elles présentent une forme caractéristique de la signature acoustique de la fragmentation (Figure 3.30a). Le temps de montée est compris entre 6 et 300  $\mu$ s, et les fréquences prépondérantes de l'analyse temps-fréquence sont 125, 175 et 225 kHz, apparaissant au début de la salve (Figure 3.30b). Sachant que les fréquences de résonance du capteur sont 125 kHz et 225 kHz, la fréquence 175 kHz associée à la salve de la Figure 3.30a peut être attribuée à la fragmentation d'un granulé. Il est également probable que des granulés se soient fragmentés et que cette fragmentation ait permis un réarrangement brusque.

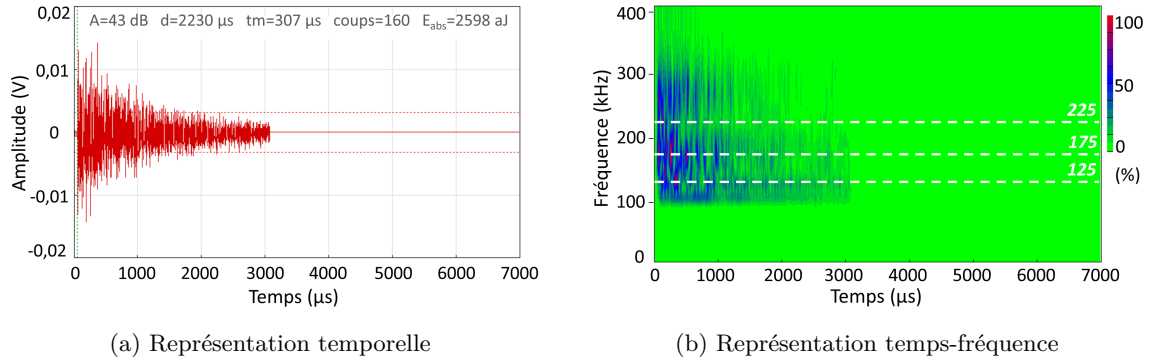


Figure 3.30 – Exemple de signal acquis au moment de la diminution nette de la contrainte à la densité 0,288.

A partir d'une compacité de 0,288, la contrainte augmente soudainement et près de 460 salves sont enregistrées jusqu'à 0,05 MPa pour une compacité de 0,300. L'augmentation de la contrainte signifie que le milieu est suffisamment dense pour opposer une résistance au poinçon supérieur.

L'amplitude des salves augmente en moyenne avec la contrainte appliquée mais les valeurs sont majoritairement inférieures à 50 dB. Nous retrouvons des formes d'onde similaires à celles de la Figure 3.30a, et nous observons aussi des salves de faibles amplitudes assimilées à un signal continu tronqué (Figure 3.31).

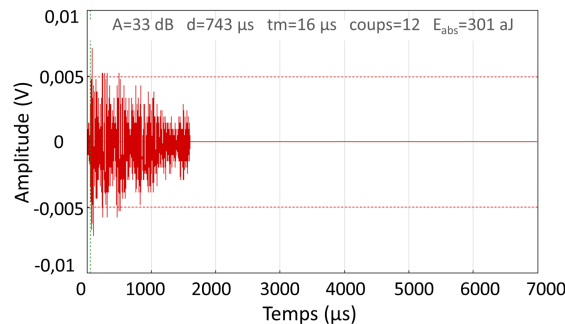


Figure 3.31 – Salve assimilée à un signal continu tronqué, observée lors de la compaction des granulés G45-160 $\mu$  jusqu'à 0,05 MPa.

La compaction de granulés aux faibles contraintes permet alors d'observer un phénomène « d'avalanche ». En effet, le réarrangement est bloqué, la contrainte augmente rapidement jusqu'à un certain seuil, puis diminue tout aussi rapidement avant d'augmenter à nouveau.

#### Zone (2) : EA intense et d'amplitude élevée pour les contraintes de compaction intermédiaires

Le signal brut de la zone (2) correspond à l'EA acquise lors de la compaction des granulés jusqu'à 180 MPa (Figure 3.32). De nombreux pics d'amplitude très élevée sont observés. Nous avons sélectionné trois sous-zones en début, milieu, et fin du domaine, annotées a, b et c sur la Figure 3.32.

A partir d'une compacité du lit de granulés d'environ 0,31, les pics deviennent plus fré-

quents et l'amplitude de l'enveloppe du signal augmente. Elle continue à augmenter jusqu'à une compacité d'environ 0,55.

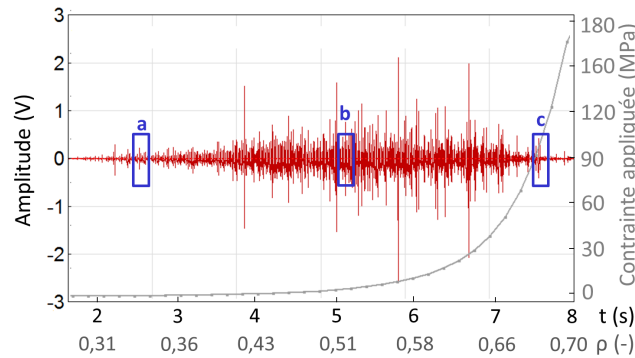


Figure 3.32 – Signal acquis lors de la compaction des granulés jusqu'à 180 MPa (zone 2).

Lorsque la contrainte appliquée sur le lit de granulés est inférieure à environ 1 MPa (zone a), des signaux discrets avec un temps de montée rapide et une décroissance plus lente sont visibles (Figure 3.33a). Leur amplitude est cependant inférieure à 0,2 V (67 dB) et les signaux discrets semblent facilement dissociables les uns des autres. A ce stade de la compaction, de nombreux espaces libres demeurent entre les granulés et les fragmentations des granulés sont peu nombreuses.

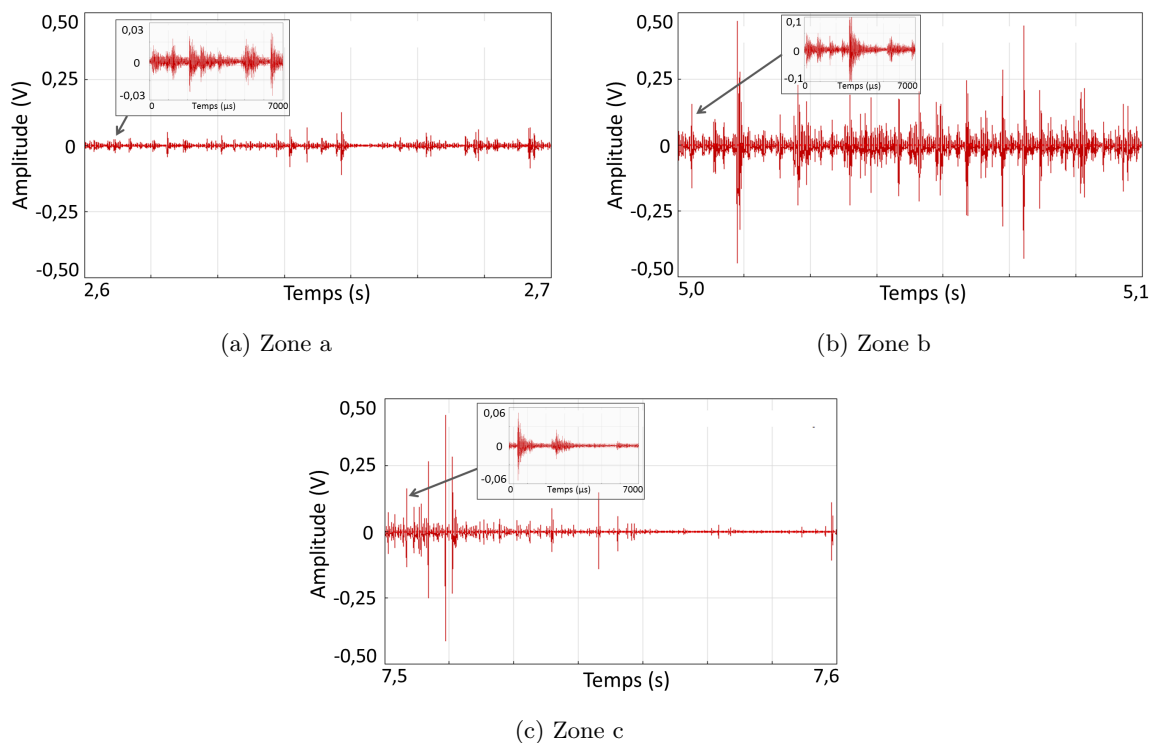


Figure 3.33 – Zoom sur les zones « a », « b » et « c » de la Figure 3.32.

Lorsque la contrainte commence à augmenter significativement (zone b) et que la compacité atteint environ 0,50, les pics sont nombreux et rapprochés dans le temps (Figure 3.33b). L'augmentation rapide de la contrainte signifie que le milieu est dense, que les réarrangements sont donc plus difficiles, entraînant ainsi la fragmentation d'un grand nombre de granulés.

A partir d'environ 50 MPa, l'amplitude du signal commence à diminuer globalement mais les signaux discrets présentent toujours la forme d'onde similaire à celle produite par une fragmentation. Au-delà d'environ 120 MPa (zone c), le nombre de pics diminue et leur amplitude diminue très fortement (Figure 3.33c) jusqu'à repasser en-dessous du seuil de détection vers 180 MPa.

#### Zone (3) : Faible amplitude du signal aux fortes contraintes de compaction

Au-delà d'environ 180 MPa, l'amplitude du signal repasse globalement en-dessous du seuil de détection (Figure 3.34). Néanmoins, une dizaine de pics très brefs sont observés et quelques signaux discrets durant environ 1000  $\mu\text{s}$  sont visibles. La fragmentation de nombreux et/ou gros granulés ne semble plus s'opérer. La densification du milieu semble se produire essentiellement par réarrangement suite à la fragmentation des angles des granulés, voire des agrégats, et à la densification des petits fragments et des granulés sur eux-mêmes. La fragmentation des granulés semble ne plus se produire après une contrainte appliquée comprise entre 100 et 300 MPa. Par ailleurs, ces signaux discrets peuvent également provenir des déformations de structure, comme observé lors d'un essai de compliance (*cf.* §3.3.1.1, p.98).

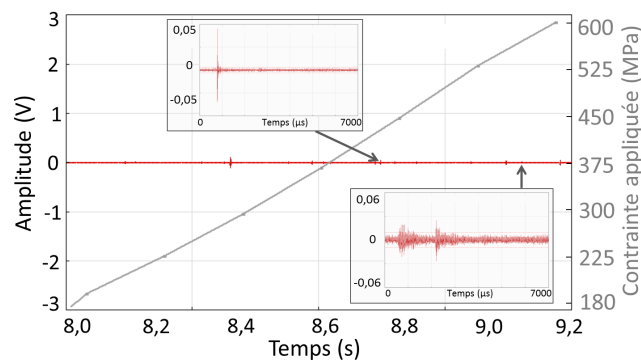


Figure 3.34 – Signal acquis lors de la compaction des granulés au-delà de 180 MPa (zone 3).

L'analyse du signal brut a permis de révéler la présence de signaux de formes d'onde différentes. Toutefois, des signaux discrets présentant une montée rapide suivie d'une décroissance lente sont observés en très grand nombre. Des signaux plus « allongés » sont également visibles, mais semblent se superposer aux signaux discrets.

### 3.3.2 Signal discrétisé en salves

#### 3.3.2.1 Discrétisation du signal

Comme nous l'avons vu précédemment, le signal brut de la compaction des granulés peut être discrétisé en salves à l'échelle de la milliseconde. Par exemple, sur la Figure 3.33b (p.105), plusieurs salves se succèdent entre 5,923 s et 5,930 s et/ou se superposent lors de la compaction du lit de granulés (Figure 3.35a), alors qu'une seule, voire au plus deux salves, sont acquises lors du cisaillement d'un seul granulé (Figure 3.35b). Pour des échelles identiques, les formes d'ondes des salves extraites du signal brut lors de la compaction des granulés sont très similaires à celles obtenues lors de la rupture d'un seul granulé. Le temps de montée est très rapide et la



décroissance lente. La durée de chacune des salves varie entre 0,1 et 0,3 ms.

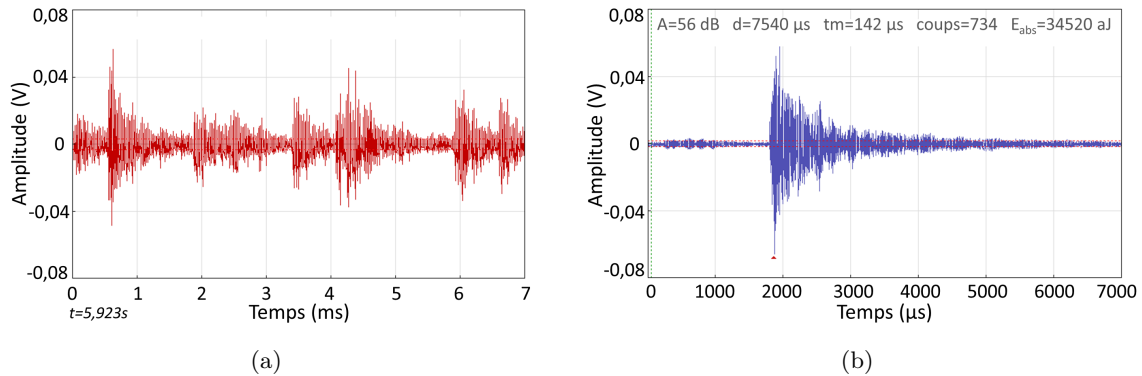


Figure 3.35 – a) Signal issu de la Figure 3.33b représenté entre 5,923 et 5,930 s, b) Signal de la rupture du granulé n°8 avec le dispositif de micro-compression (*cf.* §2.3.2.1, p.67).

La discrétisation du signal brut est obtenue par l'intermédiaire des fenêtres temporelles glissantes dont les valeurs sont données au paragraphe 2.4.2.2 (p.73). Elle est nécessaire pour les analyses monoparamètres et les analyses des formes d'onde réalisées à l'aide du logiciel AEwin®.

La Figure 3.36 représente l'acquisition du signal en émissions discrètes. Chaque point des deux graphes correspond à une salve dont l'amplitude maximale est tracée en ordonnée. Le temps 0 et le déplacement 0 correspondent à l'entrée du poinçon supérieur dans la matrice avec une précision sur le déplacement de 0,01 mm. L'essai est arrêté après l'éjection du comprimé, alors que le poinçon supérieur remonte à sa position initiale (-15 mm). Les valeurs de densité, de contrainte et des paramètres acoustiques correspondent à la moyenne réalisée sur trois essais dans une matrice  $\phi 10$  et pour une hauteur de remplissage de 12 mm.

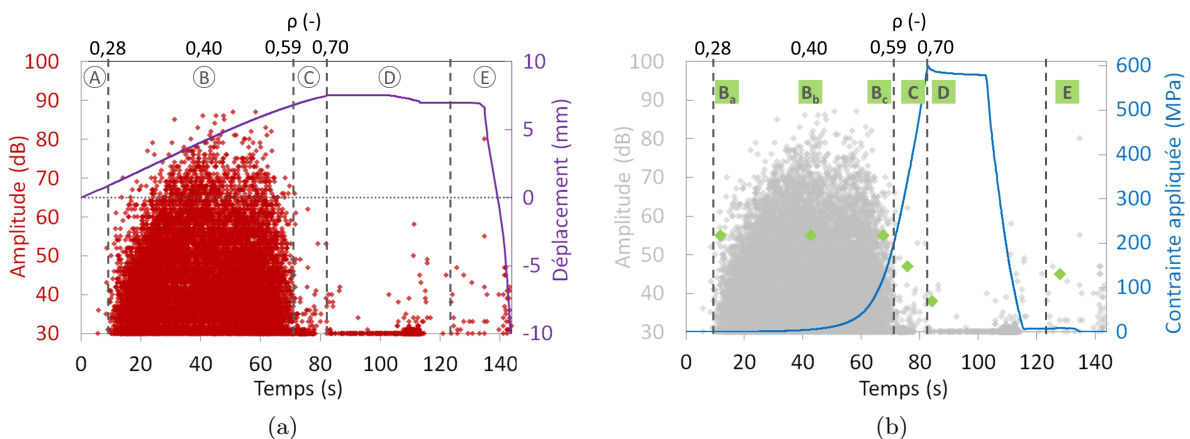


Figure 3.36 – Signaux représentés dans l'espace temps-amplitude lors de la compression de granulés G160-500 $\mu$  : a) déplacement du poinçon supérieur et zones définies entre A et E, b) contrainte appliquée et salves identifiées par des marqueurs verts.

La discrétisation du signal permet de le « découper » en cinq zones notées de (A) à (E) et séparées par les traits verticaux tracés en pointillés sur les graphes de la Figure 3.36. Les zones A, B et C correspondent respectivement aux zones 1, 2 et 3 décrites au paragraphe 3.3.1.2 (p.100). Nous ne redécrivons donc pas les sources d'EA pour ces zones. Par ailleurs nous allons évoquer rapidement l'EA acquise pendant le palier de maintien et l'éjection du comprimé. De

plus, nous avons sélectionné une salve représentative des zones B à E et les salves  $B_a$ ,  $B_b$  et  $B_c$  correspondent aux zones a, b et c détaillées sur la Figure 3.32 (p.105). Les six salves de la Figure 3.37 sont représentées avec les mêmes échelles de temps et d'amplitude choisies proches de celle de la salve acquise au moment de la rupture d'un seul granulé (Figure 3.35b). Ces salves sont indiquées en couleur verte sur le graphe de la Figure 3.36b.

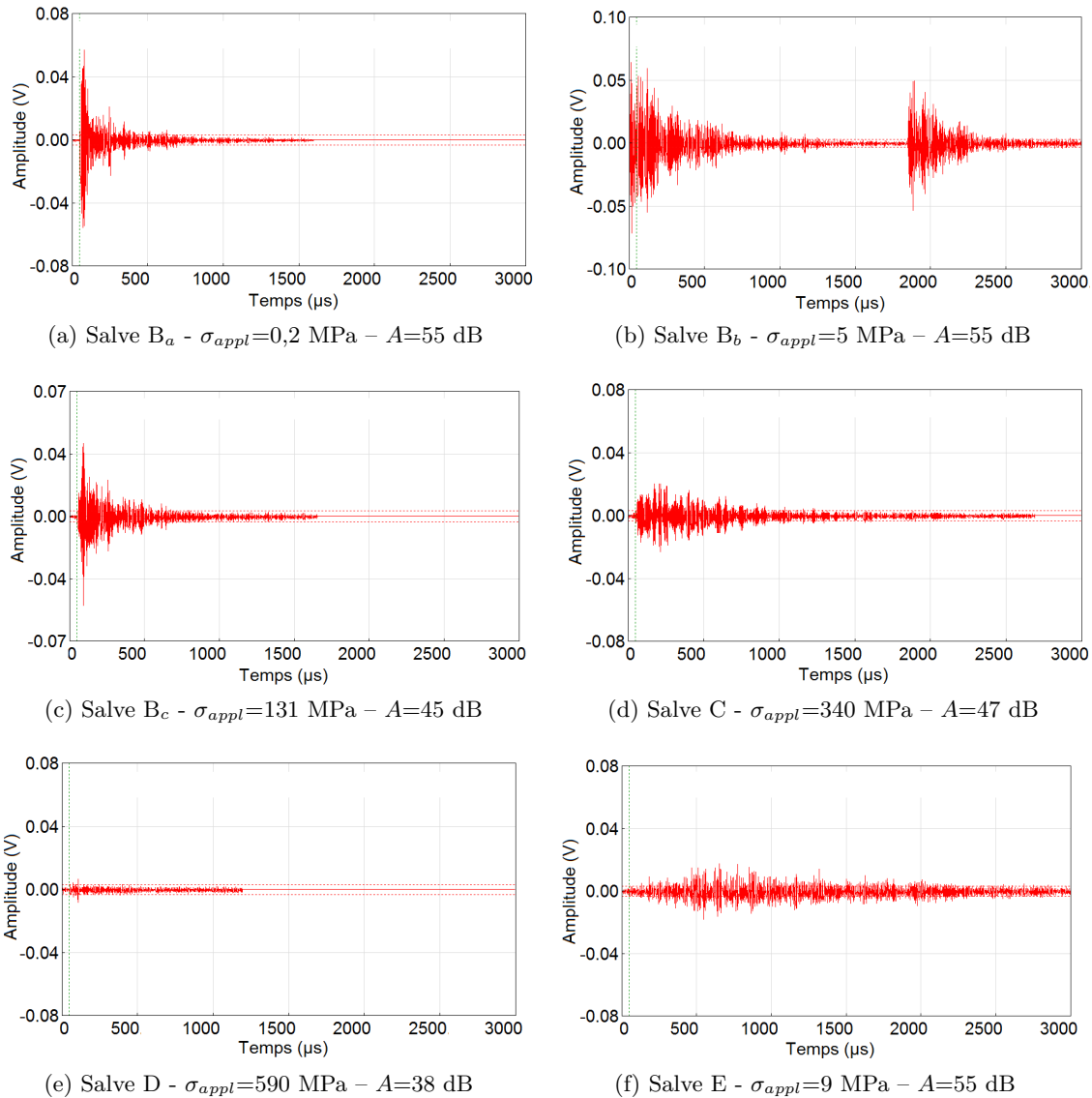


Figure 3.37 – Forme d'onde des salves acquises lors de la compression des granulés G160-500 $\mu$  et identifiées sur la Figure 3.36b.

#### Zone (A) : début de la compression et absence d'EA

La densité apparente du lit de granulés est de 0,258 ( $\pm 0,001$ ). La première salve est enregistrée lorsque la compacité atteint 0,280 ( $\pm 0,004$ ). Pendant les quelques secondes d'absence de salve, le poinçon supérieur descend de 944  $\mu\text{m}$  ( $\pm 115$   $\mu\text{m}$  selon les essais) dans la matrice (Figure 3.36a). Cette distance correspond à environ trois couches de granulés. Cette zone correspond à la zone 1 commentée au paragraphe 3.3.1.2 (p.100).

Zones (B) : augmentation globale de l'amplitude des salves jusqu'à environ 5 MPa

Dès les premières salves, la gamme des amplitudes est large puisqu'elle s'étend entre 30 et 50 dB. La présence de salves d'amplitudes variables peut être due soit aux pertes de contact importantes au début de la compaction qui vont alors modifier la propagation des ondes, soit à la surface ruptée des granulés qui est plus ou moins grande, soit encore à la localisation des granulés fragmentés par rapport au capteur.

L'amplitude maximale augmente progressivement avec la densification pour culminer à 88 dB ( $\pm 3$  dB) correspondant à la compacité de 0,40 ( $\pm 0,02$ ). A partir de la densité 0,40 ( $\pm 0,02$ ), la contrainte appliquée commence à augmenter rapidement (Figure 3.36b), ce qui signifie que le milieu est suffisamment dense pour opposer une résistance au poinçon supérieur. Des salves d'amplitudes comprises entre 30 dB et 85 dB sont enregistrées jusqu'à une compacité de 0,59 ( $\pm 0,01$ ) et une contrainte d'environ 180 MPa. Les salves  $B_a$  (Figure 3.37a),  $B_b$  (Figure 3.37b) et  $B_c$  (Figure 3.37c) ont respectivement des temps de montée de 19, 65 et 35  $\mu$ s et présentent une forme d'onde similaire à celle de la rupture d'un seul granulé.

Zone (C) : EA faible entre environ 180 MPa et le début du palier à 600 MPa

Les salves acquises entre la contrainte 180 MPa et le début du palier de compression à 600 MPa représentent seulement 6% ( $\pm 2\%$ ) du nombre total de salves, alors que la densité augmente de 0,59 à 0,70 ( $\pm 0,01$ ). La majorité de ces salves ont une amplitude qui ne dépasse pas 40 dB. Le signal est plus continu (Figure 3.37d), ce qui complexifie quelque peu la discrétisation sous forme de salves. Il est donc plus difficile d'en extraire une information fiable. De plus, le logiciel ne permet pas de modifier en cours d'essai les paramètres de discrétisation.

Zone (D) : palier de compression et maintien à 9 MPa

Quelques salves sont acquises durant les 20 secondes du palier imposé par une position du poinçon supérieur qui ne bouge alors pas. Ces salves sont plus nombreuses que celles acquises lors d'un essai de compliance. Elles proviennent des phénomènes qui conduisent à la relaxation de la contrainte appliquée. Ces phénomènes peuvent être le réarrangement des granulés sous charge ou le frottement matrice/comprimé. Toutefois la très faible intensité des salves (Figure 3.37e) laisse à penser qu'elles ont pour origine le frottement sans toutefois pouvoir dire s'il s'agit du frottement particule-particule ou particule-paroi.

Zone (E) : éjection du comprimé et remontée du poinçon supérieur

L'éjection est une source d'EA puisque le comprimé frotte contre les parois de la matrice et une partie de l'énergie élastique emmagasinée dans le comprimé se libère dans les directions axiales et radiales. Davantage de signaux sont acquis lors de l'éjection quand le capteur d'EA est placé sur et dans la matrice que lorsqu'il est placé sur le poinçon supérieur. Les salves acquises durant l'éjection ont des amplitudes comprises entre 30 et 55 dB et un temps de montée de l'ordre de 500  $\mu$ s. Elles ont une forme d'onde différente des salves provenant de la fragmentation (Figure 3.37f) et peuvent donc être attribuées semble-t-il au frottement entre le comprimé et la paroi. Le faible nombre de salves acquises peut provenir du fait que les paramètres d'acquisition de l'EA ont été choisis pour suivre la compaction et non l'éjection. Quelques salves sont également

enregistrées lorsque le poinçon supérieur remonte jusqu'à sa position initiale, leur amplitude est inférieure à 40 dB.

### 3.3.2.2 Analyses monoparamètres

Dans le paragraphe précédent, les salves sont tracées suivant leur paramètre d'amplitude. La Figure 3.38 expose les représentations équivalentes à celle de la Figure 3.36b mais en fonction de la densité du lit de granulé et pendant l'étape de compaction uniquement, *i.e.* jusqu'à 600 MPa. Les salves sont représentées en durée, en énergie absolue, en nombre de coups et en fréquence centroïde.

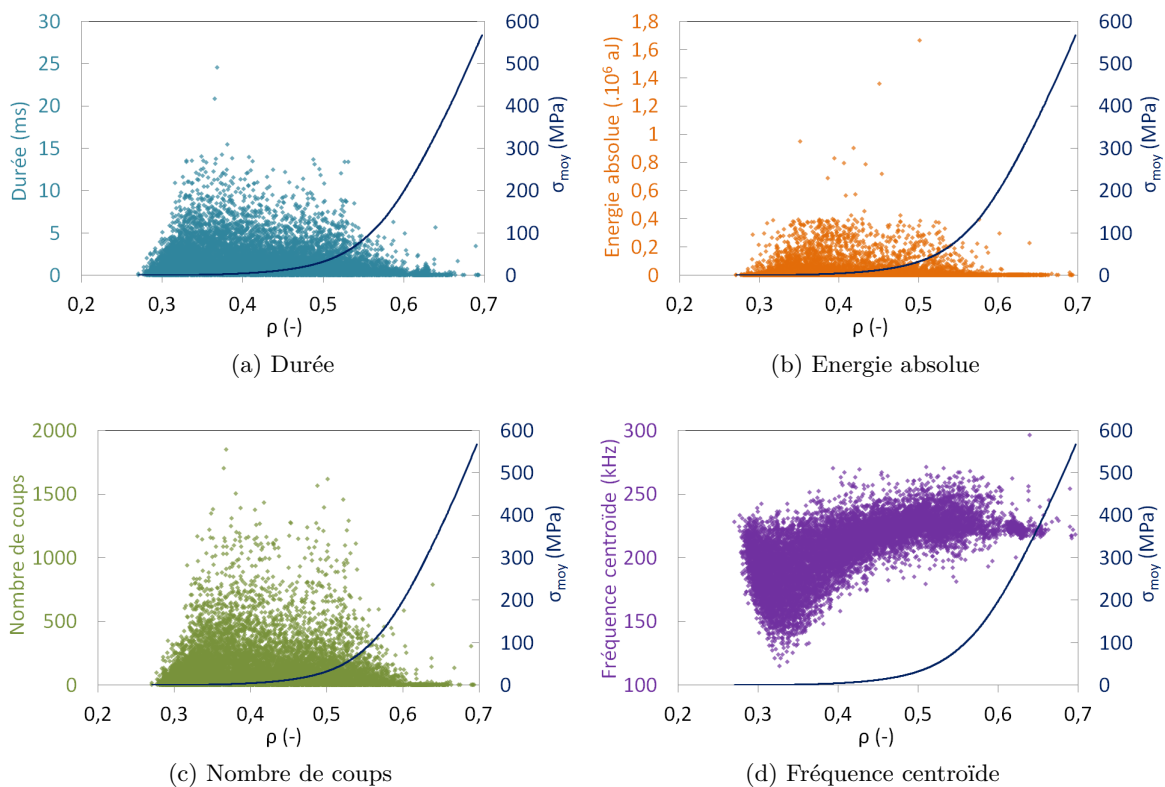


Figure 3.38 – Salves acquises lors de la compaction de granulé G160-500 $\mu$  représentées en : a) durée, b) énergie absolue, c) nombre de coups, d) fréquence centroïde.

Premièrement, les évolutions globales des valeurs de durée (Figure 3.38a), d'énergie absolue (Figure 3.38b) et de nombre de coups (Figure 3.38c) sont similaires à celle des représentations en amplitude (Figure 3.36). En effet, la gamme des valeurs de ces quatre paramètres augmente jusqu'à une densité/contrainte donnée, puis diminue jusqu'à environ 180 MPa. L'amplitude et l'énergie étant liée, ce résultat est peu surprenant. De plus, il est concevable qu'une salve d'amplitude élevée possède également un grand nombre de coups et une durée élevée si la forme des salves est similaire.

Par ailleurs, le nombre cumulé de coups évolue de manière non monotone au cours de la compaction des granulé (Figure 3.39). Une légère inflexion de la courbe est observée vers la densité 0,42 qui correspond approximativement à la microstructure pour laquelle les paramètres de salves sont les plus élevés. Le changement de pente se produisant vers la densité 0,58 correspond à la forte diminution de l'activité acoustique.

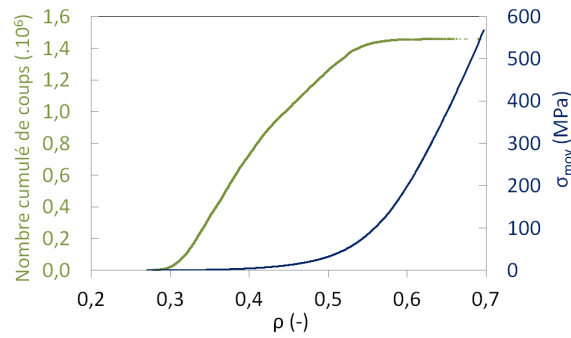


Figure 3.39 – Nombre cumulé de coups des salves acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ .

Deuxièmement, la Figure 3.38d montre que les toutes premières salves acquises sont décalées vers les hautes fréquences (180-230 kHz). Elles peuvent donc correspondre à une forte absorption des ondes dont le comportement est régi par la phase fluide du milieu granulaire, comme ont pu le montrer Legland et al. [110]. En effet, au début de la compaction, le milieu possède une phase poreuse plus grande que la phase solide.

Les fréquences centroïdes sont ensuite comprises dans un large intervalle (120-240 kHz), qui rétrécit vers les hautes fréquences au fur et à mesure que le milieu densifie, avec des valeurs comprises entre 220 et 260 kHz en fin d'essai. Cette augmentation globale des fréquences centroïdes pourrait être la conséquence de la consolidation du compact à l'instar de ce que Langlois a observé lors du frittage de billes de PMMA [121] (*cf.* §1.3.3.3, p.39). Il montre que la vitesse de propagation des ondes de compression et l'amplitude de l'onde cohérente (signal (E), *cf.* §1.3.3.1, p.36) augmentent au cours du frittage, et la transmission de l'onde (E) se décale également vers les composantes hautes fréquences.

Notons que les fréquences des salves acquises au-delà de la contrainte de fin de fragmentation sont comprises entre 215 et 235 kHz et leurs provenances nécessitent d'être davantage investiguées. Ces signaux pourraient être attribués à des mécanismes de fragmentation, beaucoup moins nombreux, et/ou à des bruits indésirables (*cf.* §3.3.1.1, p.98).

### 3.3.3 Influence des paramètres de l'essai sur le nombre de salves détectées

Les propriétés intrinsèques des matériaux (*e.g.*, état granulaire, porosité, ...), la géométrie des structures et les interfaces influencent fortement la propagation des ondes et leur comportement (*e.g.*, diffusion, diffraction, ...). L'impact sur leurs caractéristiques (*e.g.*, forme d'onde, amplitude maximale, spectre fréquentiel) de certains paramètres d'essai et de configuration est analysé ci-après.

#### 3.3.3.1 Géométrie de la matrice

La vitesse de compaction est fixée à 0,1 mm/s et les granulés G160-500 $\mu$  sont comprimés en matrice  $\phi 10$  et en matrice  $\phi 25$ . La hauteur de chambre varie de 5 à 26 mm pour la matrice  $\phi 10$  et de 2 à 6 mm pour la matrice  $\phi 25$ . Ces géométries permettent de comparer les essais en

fonction de la masse de granulés déversés dans la chambre de compaction et quelle que soit la géométrie de la chambre. L'EA est enregistrée par le capteur EA positionné sur la matrice (cf. Figure 2.18, p.70). Les essais sont conduits jusqu'à trois densités  $\rho$  du compact, atteintes à des contraintes appliquées  $\sigma_{appl}$  :

- $\rho = 0,4$  -  $\sigma_{appl} = 5$  MPa ( $\pm 1$  MPa),
- $\rho = 0,5$  -  $\sigma_{appl} = 32$  MPa ( $\pm 3$  MPa),
- $\rho = 0,6$  -  $\sigma_{appl} = 200$  MPa ( $\pm 10$  MPa).

Pour chaque condition, trois essais sont effectués. Nous présentons les valeurs moyennes de ces trois essais et les barres d'erreur indiquent le maximum et le minimum. Nous avons montré précédemment que le nombre de signaux acquis lors de la compaction de granulés est très élevé comparé à un essai de compliance. Cela signifie que les ondes arrivant jusqu'au capteur sont émises en très grande majorité par les granulés eux-mêmes. Il est alors cohérent que le nombre de salves acquises augmente avec le nombre de granulés (Figure 3.40a), *i.e* la masse de granulés déversés ou la hauteur de chambre  $h$ .

Tout d'abord, l'évolution est similaire pour toutes les courbes, quels que soient le diamètre de la matrice et la densité atteinte. Lorsque la quantité de granulés est doublée, le nombre de salves est également augmenté d'un rapport 2 ( $\pm 0,02$  pour la matrice  $\phi 10$  et  $\pm 0,04$  pour la matrice  $\phi 25$ ).

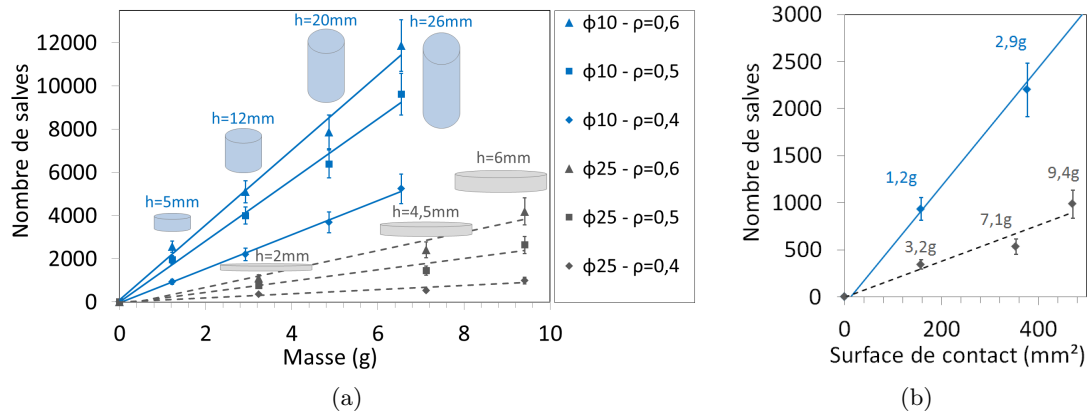


Figure 3.40 – Influences de la géométrie de la matrice de diamètre  $\phi$  sur l'EA : évolution du nombre de salves acquis lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$  jusqu'à la densité  $\rho$  : a) en fonction de la masse de granulés, b) en fonction de la surface de l'interface entre le lit de granulés et les parois de la matrice, pour  $\rho=0,4$ .

Ensuite, pour une quantité de granulés donnée, le nombre de salves acquises dans la matrice  $\phi 10$  est plus grand que dans la matrice  $\phi 25$ . Pourtant les parois de la matrice  $\phi 25$  sont plus près du capteur EA. Cela implique que le facteur influent n'est pas au premier ordre la propagation des ondes dans la matrice. En revanche, la surface de contact entre les granulés et les parois de la matrice est plus grande pour la géométrie de la matrice  $\phi 10$  que pour celle de la matrice  $\phi 25$ , à quantité de granulés identique. La Figure 3.40b révèle que pour une surface d'interface identique entre le lit de granulés et les parois de la matrice, le nombre de salves est supérieur en matrice  $\phi 10$ , alors même que la quantité de granulés est trois fois inférieure. Précisons que la tendance observée pour une densité de 0,4 sur la Figure 3.40b est la même pour les densités  $\rho=0,5$  et  $\rho=0,6$ . Ce résultat montre que la propagation des ondes pourrait donc être favorisée

dans le sens de la compression.

Le nombre de salves acquises dépend du diamètre de la matrice et semble augmenter linéairement avec la quantité de granulés compactés pour une géométrie de matrice et une position de capteur EA données.

### 3.3.3.2 Position du capteur d'émission acoustique

L'influence de la position du capteur EA est étudiée pour la matrice  $\phi 10$  avec des hauteurs de chambre variant entre 5 et 26 mm. Le capteur EA est positionné aux trois emplacements indiqués sur le schéma de la Figure 3.41a :

- sur le poinçon supérieur : capteur à environ 70 mm des granulés,
- sur la surface de la matrice : capteur à environ 30 mm des granulés,
- dans la matrice : capteur à environ 10 mm des granulés.

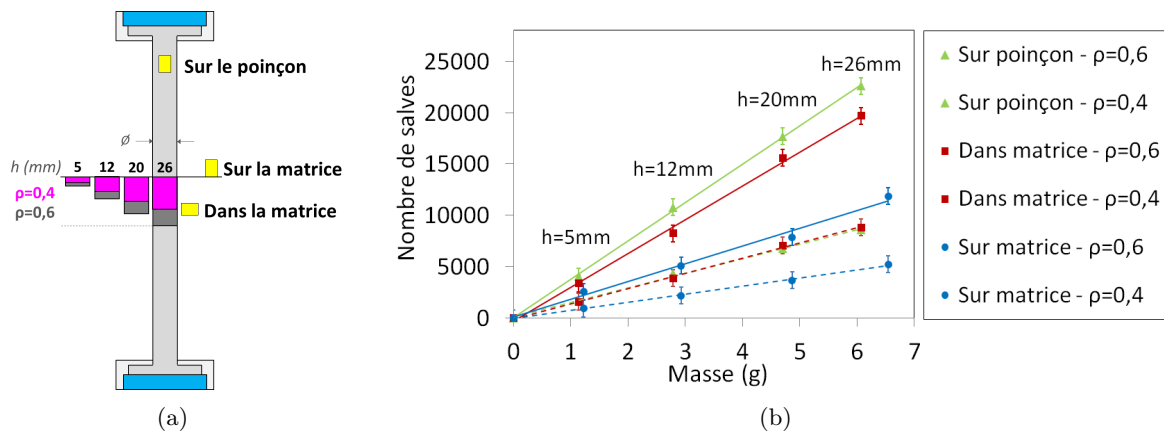


Figure 3.41 – a) Schéma de la presse uniaxiale précisant les positions du capteur EA et les hauteurs des comprimés ayant atteint une densité de 0,4 puis 0,6, b) évolution du nombre de salves en fonction de la masse de granulés versés dans la matrice  $\phi 10$  de hauteur de chambre  $h$  pour 3 positions différentes du capteur EA.

Le nombre de salves est compté pour deux densités  $\rho$  du lit de granulés :

- $\rho=0,4$  -  $\sigma_{appl} = 5 \text{ MPa}$  ( $\pm 1 \text{ MPa}$ ),
- $\rho=0,6$  -  $\sigma_{appl} = 200 \text{ MPa}$  ( $\pm 10 \text{ MPa}$ ).

Pour une densité  $\rho=0,4$  (courbes en pointillées), le nombre de salves acquises par le capteur EA est le même qu'il soit placé sur le poinçon ou dans la matrice, et ce quelles que soient la quantité de granulés et la surface de contact avec les parois du moule (Figure 3.41b). En revanche, le capteur placé sur la matrice enregistre moins de salves et l'écart du nombre de salves avec les deux autres emplacements augmente avec la masse des granulés compactés.

Pour une densité  $\rho=0,6$ , le capteur EA placé sur le poinçon supérieur enregistre le plus grand nombre de salves, alors que le capteur fixé sur la matrice enregistre le moins de salves. Le nombre de salves acquises par le capteur positionné dans la matrice est légèrement inférieur à celui acquis par le capteur fixé sur le poinçon supérieur. De plus, l'écart entre les courbes augmente significativement avec la masse des granulés, et donc avec la surface de l'interface entre le lit de granulés et les parois de la matrice. La quantité de signaux dus aux vibrations est cependant

faible (environ 3 salves par seconde) devant celle provenant des fragmentations/réarrangements (200 à 300 salves par secondes).

La position du capteur a une influence sur le nombre de salves acquises au cours de la compaction des granulés. Aux faibles contraintes, la transmission de l'onde à l'interface granulé-moule est primordiale. Pour les fortes contraintes le frottement entre la matrice et le compact devient non négligeable et les capteurs positionnés directement sur/dans la matrice enregistrent plus de salves que le capteur positionné sur le poinçon où le frottement granulé/poinçon est relativement faible.

### 3.3.3.3 Vitesse de compression

Nous fixons la hauteur de chambre de la matrice  $\phi 10$  à 12 mm. Ainsi, la quantité de granulés, et par conséquent la surface entre le lit de granulés et les parois de la matrice, sont les mêmes pour tous les essais. Par ailleurs, le gradient de densité jusqu'à 600 MPa est négligeable pour une telle hauteur de chambre. Nous faisons varier la vitesse de compression entre 0,05 mm/s et 1 mm/s.

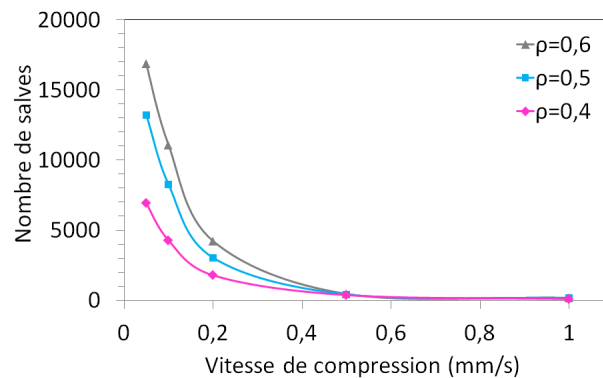


Figure 3.42 – Influence de la vitesse de compression sur l'émission acoustique : évolution du nombre de salves acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$  jusqu'à la densité  $\rho$ .

Nous enregistrons l'EA lors de la compaction de granulés à des vitesses de 0,05 mm/s, 0,1 mm/s, 0,2 mm/s, 0,5 mm/s et 1 mm/s. La Figure 3.42 montre que le nombre de salves acquises diminue lorsque la vitesse de compression augmente, quelle que soit la densité du lit de granulés atteinte. Ce résultat a deux explications possibles. La première est liée aux mécanismes sources d'EA qui sont moins nombreux à la densité  $\rho=0,4$  qu'à la densité  $\rho=0,6$ . La deuxième provient des paramètres d'acquisition des EA choisis initialement pour une vitesse de compression de 0,1 mm/s. La grande quantité de signaux arrivant dans un temps très court peut entraîner une perte d'information, et donc un faible nombre de salves discrétisées.

Pour une vitesse de compression supérieure à environ 0,4 mm/s, l'essai ne dure que quelques secondes et le nombre de salves enregistrées est très faible, *i.e.* inférieur à 500 pour 0,5 mm/s et inférieur à 200 pour 1 mm/s. Néanmoins, pour ces essais, ce que le système d'acquisition reconnaît comme une salve contient en réalité plus d'une dizaine de signaux discrets qui peuvent être dissociés les uns des autres (Figure 3.43a). Les fragmentations et réarrangements des granulés se produisent dans un temps très court, ce qui implique des salves très rapprochées dans le temps.



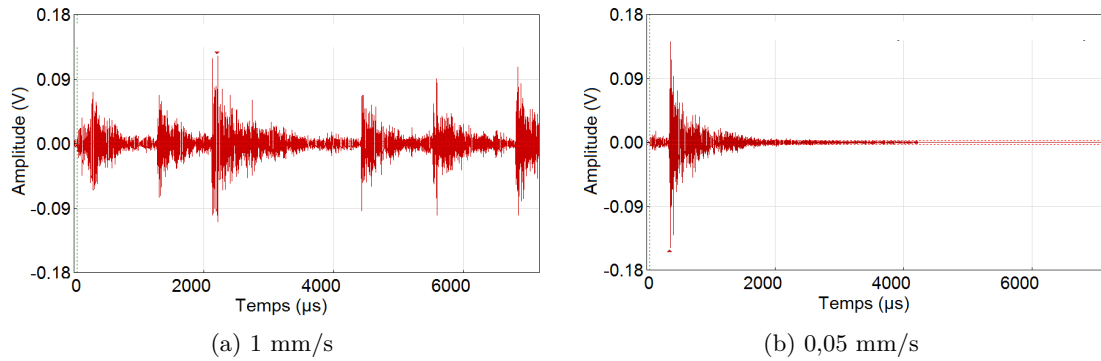


Figure 3.43 – Signaux assimilés à une seule salve lors de la compaction des granulés G160-500 $\mu$  pour une vitesse de compression de : a) 1 mm/s, b) 0,05 mm/s.

Les paramètres d'acquisition définis auparavant l'ont été pour une vitesse de 0,1 mm/s et ne sont donc plus appropriés pour des vitesses de compression élevées.

En revanche, pour des vitesses de compression inférieures à 0,2 mm/s, les essais se déroulent sur plusieurs dizaines de secondes, Les salves s'acquièrent alors de manière plus lente (Figure 3.43b). Les paramètres d'acquisition sont adaptés pour la vitesse de 0,1 mm/s, comme le montre la Figure 3.44. Le nombre moyen de salves acquises par seconde est maximal pour cette vitesse de compression, quelle que soit la densité  $\rho$  atteinte.

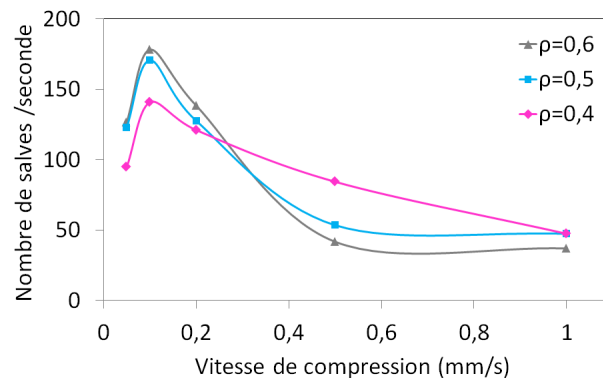


Figure 3.44 – Evolution du nombre de salves moyen par seconde en fonction de la vitesse de compression de granulés G160-500 $\mu$ .

Il conviendrait d'optimiser les paramètres de discrétisation du signal pour appréhender l'effet de la vitesse de compaction sur les réarrangements et la fragmentation.

### 3.3.4 Analyses multiparamètres

Nous avons mis en œuvre un traitement automatique des données à l'aide d'un logiciel commercial Noesis® pour réaliser une analyse multiparamètres. Ces analyses sont largement utilisées pour identifier les mécanismes d'endommagement des matériaux composites [196], [119], [227], [228], [197], [198], à savoir les ruptures de fibre, les fissurations matricielles, les décohésions fibres/matrice et le délaminage. Ces études ont en effet permis d'assigner une signature acoustique à chacun de ces mécanismes.

La démarche utilisée, décrite en Annexe F (p.175), permet de regrouper les données d'EA en classes de signaux présentant des similitudes. Dans l'idéal, une classe représenterait un seul mécanisme physique.

Nous avons réalisé une classification non supervisée à l'aide de dix paramètres de salve, dont le temps de montée, l'amplitude et l'énergie absolue, puis appliqué l'algorithme des k-moyennes. L'analyse en composante principale (*cf.* Annexe F, p.175) réalisée par le logiciel Noesis® conduit à 4 classes, comme l'illustre la Figure 3.45a. L'exemple de la Figure 3.45 correspond aux EA enregistrées lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$  décrite préalablement sur la Figure 3.36 (p.107).

Nous constatons 3 groupes bien distincts. Les salves représentées en rouge et en vert semblent avoir des caractéristiques proches et très différentes de celles des salves représentées en rose et bleu. Toutefois, le logiciel Noesis® ne permet pas de remonter automatiquement aux caractéristiques des salves constituant ces 4 classes. Afin de tenter de relier ces classes à des phénomènes physiques nous les avons représentées en fonction de leur amplitude et dès l'instant où elles sont émises (Figure 3.45b).

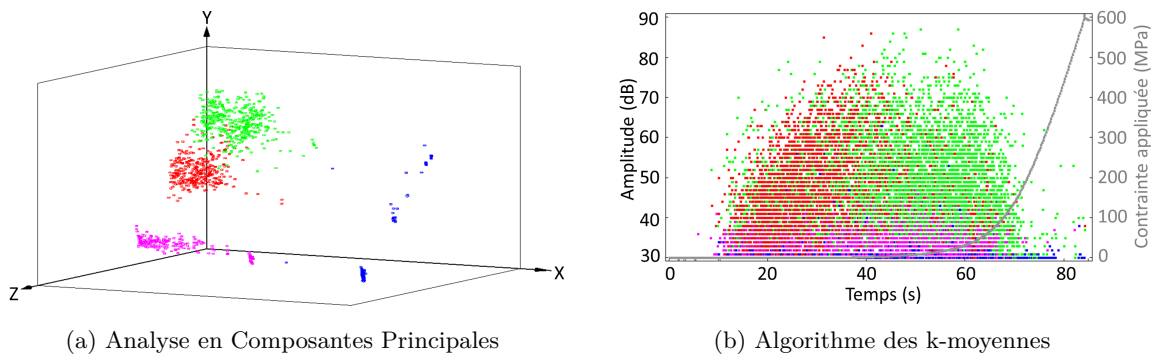


Figure 3.45 – Familles de salves déduites de l'analyse en composantes principales des données d'EA acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$  à la vitesse de compression 0,1 mm/s : a) représentation 3D dans un espace non physique, b) représentation des salves en amplitude au cours de la compaction.

La 1<sup>ère</sup> classe (en rouge sur la Figure 3.45) est majoritaire au début de la compaction lorsque le poinçon appuie sur le lit de granulés sans que la contrainte augmente significativement. Les amplitudes sont comprises entre 30 et 80 dB. Le nombre de salves appartenant à cette classe diminue lorsque la contrainte commence à augmenter.

La 2<sup>ème</sup> classe (en vert sur la Figure 3.45) correspond de manière globale à des salves enregistrées entre le moment où la contrainte commence à augmenter et l'instant où elle atteint environ 180 MPa. L'amplitude des salves couvre également la gamme 30-80 dB.

La 3<sup>ème</sup> classe (en rose sur la Figure 3.45) est globalement composée de salves d'amplitudes comprises entre 30 et 38 dB. Elle est observée dès les premiers instants jusqu'à environ 80 MPa.

La 4<sup>ème</sup> classe (en bleu sur la Figure 3.45) est présente sur toute la durée de la compaction et proche du seuil de détection, *i.e.* 30 dB.

Les classes 1 et 2 semblent être relatives à la fragmentation. La différenciation des deux

classes serait consécutive à la modification de propagation des ondes en passant d'un milieu très poreux à un milieu moins poreux.

La classe 3 pourrait contenir les signaux dus aux frottements des granulés les uns sur les autres ou à la diffusion des ondes dans le poinçon qui sert de guide d'onde.

La classe 4 pourrait correspondre à l'émission acoustique produite lors de l'essai de compliance et proviendrait alors des sources environnantes et de la déformation de la presse.

### 3.4 Conclusion

L'émission acoustique acquise pendant la compression des granulés G160-500 $\mu$  est riche et son traitement apparaît complexe. Le nombre de salves, leurs paramètres et leur apparition durant l'essai dépendent fortement :

- du dispositif : presse uniaxiale, matrice  $\phi 10$  en acier, capteur acoustique large-bande 100-600 kHz positionné sur le poinçon supérieur,
- des conditions de compression : vitesse à 0,1 mm/s, hauteur de chambre de 12 mm,
- des paramètres choisis : fréquence d'échantillonnage à 1 Mega Sample Per Second, filtres fréquentiels et fenêtres glissantes de discrétisation PDT, HDT, HLT.

Il devient alors nécessaire d'étudier l'influence de ces éléments sur l'acquisition des salves. Les mécanismes de compaction étant le cœur de notre étude, nous avons uniquement analysé les signaux acquis entre l'entrée du poinçon dans la matrice et le début du palier de compression.

Le nombre de salves permet de décrire l'activité acoustique et son évolution au cours de la compaction. L'interprétation phénoménologique est rendue possible si chaque salve correspond à un seul signal attribué à un unique événement source d'onde. Les paramètres de discrétisation sont donc à choisir avec précaution. Compte tenu de l'évolution du milieu granulaire, et par conséquent de la modification des modes de propagation et de leurs caractéristiques (amplitude, énergie, fréquence), les fenêtres temporelles glissantes (PDT, HDT, HLT) doivent elles aussi évoluer au cours de la compaction.

Le cisaillement individuel des granulés a permis d'observer les deux modes de rupture fragile évoqués dans la littérature, à savoir la rupture instantanée et « pas à pas ». Elles sont cependant difficilement détectables sur les courbes de charge-déplacement et nécessitent des observations MEB post-essais pour, éventuellement, identifier le mode de propagation des fissures. Néanmoins, la technique de l'émission acoustique semble pouvoir dissocier ces deux modes de propagation de fissure. Nous avons en effet observé plusieurs salves successives lors de la formation d'une seule fissure visible à l'aide de la caméra rapide. Cette étude pourrait alors être approfondie par des observations microscopiques des faciès de rupture des granulés.

Par ailleurs, les essais brésiliens sur les granulés et les comprimés de microstructure équivalente nous ont permis d'attribuer une signature acoustique au mécanisme de fragmentation, avec en particulier un temps de montée inférieur à 100  $\mu$ s. Les autres paramètres de salves ne semblent pas pertinents car ils sont différents d'un essai à l'autre.

Ensuite, la compaction d'un lit de granulés s'est révélée très émissive, et nous avons prouvé que la très grande majorité des signaux est due aux mécanismes de fragmentation et de frottements entre les granulés, induits par les réarrangements granulaires. L'influence des fonctions de transfert de la structure, du capteur et du système d'acquisition des données a été mise en évidence par la présence d'une coda acoustique, signature de diffusions multiples. L'effet du milieu granulaire lui-même sera largement développé dans le chapitre 4.

Enfin, nous avons mis en évidence une diminution très importante de l'EA au cours de la compaction, et plus précisément vers 180 MPa pour les granulés de distribution granulométrique 160-500  $\mu\text{m}$ . Nous avons attribué ce « silence acoustique » à la fin de la fragmentation des granulés. Logiquement, ce niveau de contrainte devrait augmenter avec la cohésion des granulés, et c'est ce que nous verrons au paragraphe 4.3 (p.131) dans le chapitre suivant.

## Chapitre 4

# Fabrication d'une céramique poreuse à partir de particules fragiles

<b>4.1</b>	<b>Influence de la contrainte de mise en forme . . . . .</b>	<b>120</b>
4.1.1	Densité et microstructure du compact . . . . .	120
4.1.2	Tenue mécanique du compact . . . . .	124
4.1.3	Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	125
<b>4.2</b>	<b>Influence de la répartition granulométrique des granulés . . . . .</b>	<b>127</b>
4.2.1	Compressibilité et émission acoustique . . . . .	127
4.2.2	Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	130
<b>4.3</b>	<b>Influence de la cohésion des granulés . . . . .</b>	<b>131</b>
4.3.1	Essai Brésilien sur des granulés consolidés . . . . .	132
4.3.2	Compressibilité et émission acoustique . . . . .	135
4.3.3	Tenue mécanique des compacts . . . . .	139
4.3.4	Porosité ouverte et microstructure après frittage . . . . .	140
<b>4.4</b>	<b>Synthèse . . . . .</b>	<b>143</b>
4.4.1	Corrélation entre émission acoustique et fragmentation . . . . .	143
4.4.2	Corrélation entre taux de fragmentation et tenue mécanique des compacts	144
4.4.3	Corrélation entre taux de fragmentation et porosité ouverte après frittage	145
<b>4.5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>146</b>

## Introduction

L'étude de la compaction d'un lit de granulés a permis de mettre en évidence la fin de la fragmentation des granulés. Il s'agit maintenant d'étudier l'influence du taux de fragmentation observé lors de la compaction sur la porosité ouverte après frittage des pastilles. Ce taux de fragmentation va évidemment dépendre de la contrainte de mise en forme d'un lit de granulés donné, mais aussi de son étendue granulométrique et de la cohésion des granulés. Nous allons étudier ces trois paramètres en nous préoccupant également de la tenue mécanique des compacts, qui est une donnée essentielle pour apprécier l'industrialisation potentielle d'un procédé par métallurgie des poudres.

### 4.1 Influence de la contrainte de mise en forme

Des comprimés de granulés G160-500 $\mu$  ont été fabriqués à différentes contraintes de compaction et l'EA produite pendant leur compaction ainsi que certaines de leurs caractéristiques ont été présentées dans le chapitre 3. Dans ce paragraphe, nous allons présenter plus en détails les caractéristiques de ces comprimés en termes de densité/porosité et de microstructure, leur tenue mécanique et la porosité ouverte observée après leur frittage.

Tous les granulés sont compactés à l'aide de la presse uniaxiale décrite au paragraphe 2.3.1.1 (p.64) avec la matrice  $\phi 10$  de hauteur de chambre fixée à 20 mm.

#### 4.1.1 Densité et microstructure du compact

L'évolution de la masse volumique du lit de granulés G160-500 $\mu$  est suivie au cours de sa compaction (Figure 4.1a). La masse volumique après le remplissage de la matrice est de 3,00 g/cm<sup>3</sup>, ce qui correspond à une densité apparente de l'empilement de 0,46 en prenant en considération la masse volumique des granulés (6,49 g/cm<sup>3</sup>), inférieure à celle d'un empilement aléatoire de sphères monodisperses [229] qui est de 64%. La contrainte appliquée oscille entre 0 et 1 MPa (intervalle correspondant à la précision de mesure de la contrainte avec le capteur de force utilisé pour cette expérience) tant que la masse volumique est inférieure à 3,64 g/cm<sup>3</sup>, soit une densité relative de l'empilement de 0,56. La contrainte augmente très rapidement au-delà d'environ 60 MPa, ce qui correspond à une masse volumique en matrice d'environ 6,0 g/cm<sup>3</sup>, soit une densité de l'empilement de 0,92, si on considère la masse volumique initiale des granulés (6,49 g/cm<sup>3</sup>), et une densité relative d'environ 0,55, si on considère la masse volumique théorique de l'UO<sub>2</sub> (10,96 g/cm<sup>3</sup>).

La comparaison entre la masse volumique mesurée à la fin du palier de contrainte appliquée (*cf.* Figure 2.13, p.67) et celle mesurée après éjection du comprimé (Figure 4.1a) montre que le rebond, donc l'énergie élastique emmagasinée pendant la compaction, est fonction de la contrainte appliquée. En effet, plus la contrainte appliquée sur le compact est élevée et plus l'énergie emmagasinée est grande, ce qui conduit à une augmentation du rebond volumique avec la contrainte de mise en forme (Figure 4.1b).

Notons que la masse volumique évolue de manière monotone avec la contrainte. Il n'est alors

pas possible de discerner un changement de mécanisme de compaction sur ces courbes avec la précision de notre capteur.

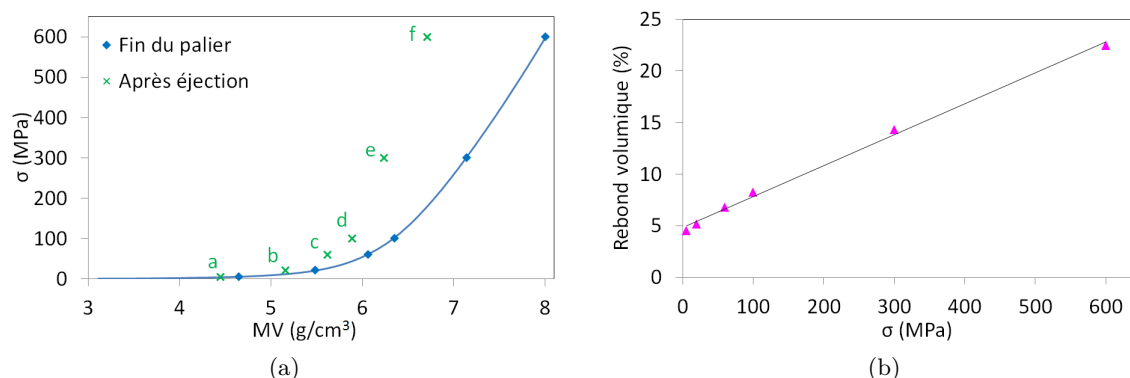


Figure 4.1 – Compaction de granulés G160-500 $\mu$  : a) évolution de la contrainte appliquée en fonction de la masse volumique à la fin du palier et après éjection des comprimés, b) relation entre le rebond volumique et la contrainte de mise en forme.

La masse volumique du compact mis en forme à 600 MPa après éjection est de 6,60  $\text{g/cm}^3$  et cette valeur est plus grande que celle mesurée pour la poudre compactée à la même contrainte (6,49  $\text{g/cm}^3$ ). Cela signifie que les granulés ont densifié sur eux-mêmes.

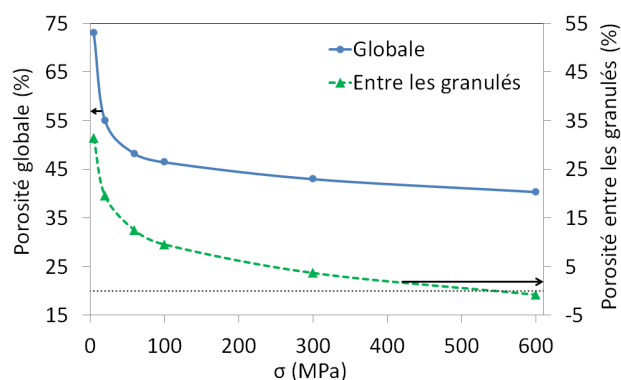


Figure 4.2 – Evolution de la porosité en fonction de la contrainte appliquée - La porosité globale est calculée à partir de la masse volumique du compact par rapport à la masse volumique théorique de l' $\text{UO}_2$  (10,96  $\text{g/cm}^3$ ), et la porosité entre les granulés est calculée à partir de la masse volumique du compact par rapport à la masse volumique des granulés (6,49  $\text{g/cm}^3$ ), *i.e.* en faisant l'hypothèse que les granulés sont incompressibles.

A partir des masses volumiques du compact, nous pouvons calculer le taux de porosité global et le taux de porosité entre les granulés en utilisant respectivement la masse volumique théorique de l' $\text{UO}_2$  (10,96  $\text{g/cm}^3$ ) et celle des granulés (6,49  $\text{g/cm}^3$ ). Le calcul de la porosité entre les granulés s'appuie sur l'hypothèse que les granulés sont sécables mais incompressibles. Comme attendu, le taux de porosité diminue lorsque la contrainte de mise en forme augmente (Figure 4.2). Les deux courbes évoluent de manière similaire mais les taux de porosité sont logiquement différents. La porosité globale varie entre environ 73% et 40%, tandis que la porosité entre les granulés diminue d'environ 54% à -1%. Cette dernière valeur n'a aucun sens physique et montre bien que les granulés densifient sur eux-mêmes, à fortes contraintes de mise en forme pour le moins. L'hypothèse d'incompressibilité n'est alors plus valable.

Des mesures par porosimétrie mercure ont été réalisées sur les six comprimés mis en forme à 20, 60, 100, 200, 400 et 600 MPa, afin de déterminer la distribution des pores entre les granulé et des pores intra-granulés. Précisons que la pression maximale du mercure est de 200 MPa.

Tout d'abord, plus la contrainte de mise en forme est grande et plus le volume intrus par le mercure est faible (Figure 4.3a). Au-delà d'une pression de mercure d'environ 100 MPa (diamètre d'environ  $0,02 \mu\text{m}$ ), le volume intrus n'augmente plus. La majorité des pores intrus présente une taille voisine de  $0,1 \mu\text{m}$ , ce qui correspond aux pores entre les particules qui composent les granulé et non aux pores entre les granulé.

En faisant l'hypothèse que le mercure a pénétré tous les pores ouverts et qu'il n'existe pas de pores fermés, le volume total de mercure intrus permet de calculer la porosité totale des compacts. La comparaison des valeurs de densité obtenues à celles calculées à partir de la densité géométrique permet de constater que les valeurs sont en bon accord pour des contraintes de mise en forme supérieure à 400 MPa. En dessous de 400 MPa, les mesures de porosimétrie Hg sous-estiment la porosité des compacts. En fait, avec le dispositif dont nous disposons, le mercure pénètre dans les pores de taille supérieure à quelques micromètres par simple gravité, lors du remplissage de la cellule. Yanai et al. [81] évoquent également leur difficulté à détecter des pores supérieurs à  $0,4 \mu\text{m}$  au sein de comprimés crus de poudre d' $\text{UO}_2$  contenant des porosités de quelques micromètres.

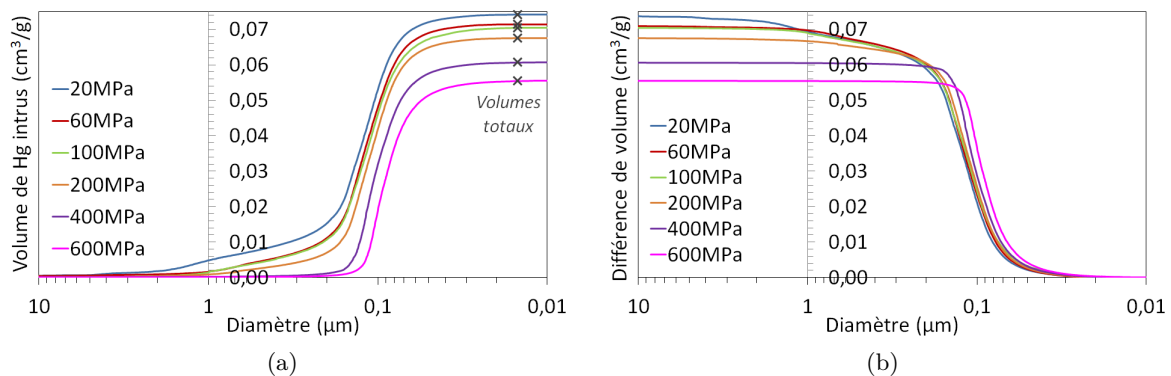


Figure 4.3 – Porosimétrie mercure des comprimés de granulé G160-500 $\mu$  mis en forme à 20, 60, 100, 200, 400 et 600 MPa : a) mesure du volume total de mercure intrus dans les pores, b) calcul de la différence entre le volume total intrus et le volume intrus pour un diamètre donné.

Enfin, en représentant la différence entre le volume intrus total et le volume intrus à une pression donnée, *i.e.* pour un diamètre de pore donné, nous constatons que le diamètre des pores intragranulaires ne varie pas pour des contraintes de compaction inférieures à 200 MPa (Figure 4.3b). A partir d'une contrainte de 400 MPa, tous les pores intrus ont une taille voisine de  $0,1 \mu\text{m}$ , ce qui atteste que la porosité entre les granulé est quasiment comblée. Les pores intrus par le mercure au sein du comprimé mis en forme à 600 MPa sont logiquement plus petits et moins nombreux que ceux contenus dans le comprimé compacté à 400 MPa.

L'observation des coupes céramographiques de compacts élaborés à différentes contraintes permet de visualiser l'évolution de la microstructure (Figure 4.4). Une partie de la différence d'apparence des granulé sur les céramographies des compacts mis en forme à 5, 20 et 60 MPa, et ceux mis en forme à 100, 300 et 600 MPa, provient de la préparation des échantillons. Les



premiers sont enrobés sous vide dans une résine, puis polis, tandis que les seconds sont légèrement consolidés thermiquement avant d'être polis. Ces procédures de préparation sont nécessaires pour éviter l'arrachement des particules lors du polissage. Les masses volumiques indiquées sont celles mesurées après rebond. Les lettres « a » à « f » des céramographies correspondent aux échantillons identifiés par les mêmes lettres sur la Figure 4.1a (p.121).

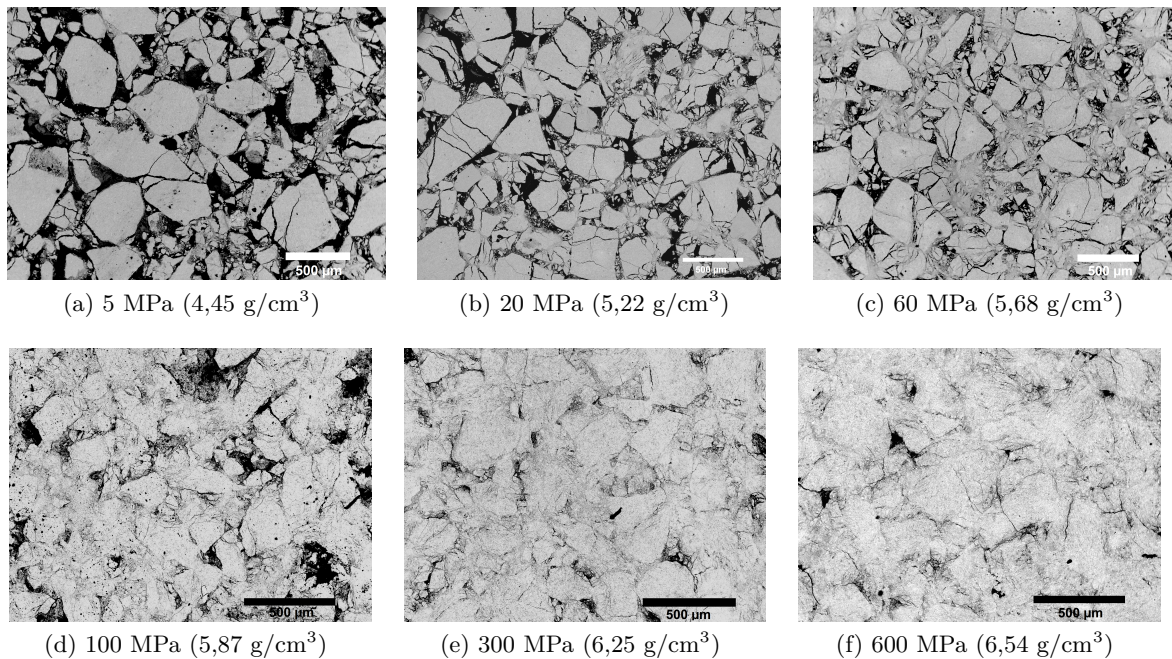


Figure 4.4 – Micrographies de comprimés crus de granulés G160-500µ compactés à : a) 5 MPa, b) 20 MPa, c) 60 MPa, d) 100 MPa, e) 300 MPa, f) 600 MPa.

Après l'application d'une contrainte de 5 MPa, des granulés sont fissurés et une large porosité entre les granulés est visible (en noir sur la Figure 4.4). Cette fragmentation va faciliter le réarrangement des granulés. Il semble que certains granulés se fragmentent beaucoup alors que d'autres ne sont pratiquement pas fragmentés. De plus, les trois modes de fragmentation (*cf.* Figure 1.14, p.21) sont présents et visibles sur les micrographies. Certains granulés sont fragmentés en deux ou trois (grands) morceaux, d'autres voient leurs coins se détacher (épaufrement) ou sont totalement fragmentés (amas de particules de quelques µm).

Lorsque la contrainte passe de 5 MPa à une valeur comprise entre 100 et 300 MPa, la fragmentation augmente. Entre 300 et 600 MPa, il semble que la taille moyenne des granulés ne varie plus.

La quantification de l'évolution de la taille des granulés par analyse d'images est compliquée et n'a pu être réalisée que manuellement. Les mesures révèlent une légère augmentation du nombre de petits granulés pour les comprimés mis en forme à 60 MPa comparés à ceux comprimés à 5 MPa (Figure 4.5). Pour des compacts mis en forme à une contrainte supérieure à 60 MPa, le contour des granulés est difficilement identifiable sur les micrographies. Les résultats obtenus sont de fait entachés d'une erreur importante.

Même après une contrainte appliquée de 600 MPa, il reste quelques espaces entre les granulés qui ne sont pas comblés. Ces espaces ne sont pas tous dus à des arrachements de particules lors de la préparation de l'échantillon mais à des pores présents dans le compact. Ils sont la preuve

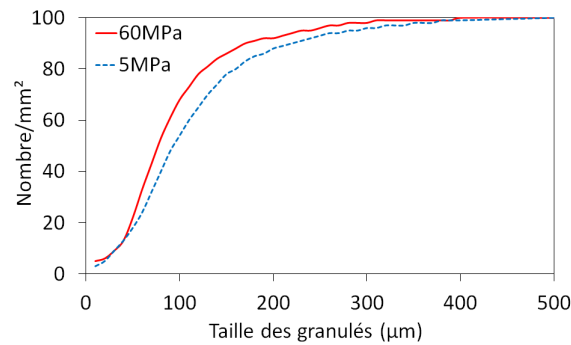


Figure 4.5 – Evolution du nombre de granulés par  $\text{mm}^2$  en fonction de leur taille à deux pressions de mise en forme (5 et 60 MPa).

que certains granulés peuvent être soumis à un chargement isotrope fort et des contraintes de cisaillement faibles. Ils ne se fragmentent pas alors que la porosité entre les granulés n'est pas complètement résorbée.

Pour confirmer la persistance de granulés non fragmentés même sous forte contrainte de mise en forme, nous avons réalisé la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés fabriqués à une pression de granulation de 400 MPa. La Figure 4.6 permet d'observer des granulés de grande taille peu fragmentés.

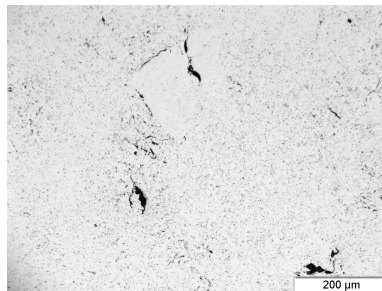


Figure 4.6 – Pastille frittée de granulés obtenus à une pression de granulation de 400 MPa et mis en forme à 600 MPa : observation d'un granulé non ou peu fragmenté.

Les observations « très » macroscopiques des microstructures dans ce paragraphe sont en bon accord avec les résultats de simulation numérique [230] qui permettent par ailleurs une description beaucoup plus fine de l'évolution de la microstructure d'un matériau granulaire soumis à une compression œdométrique.

#### 4.1.2 Tenue mécanique du compact

La tenue mécanique des comprimés est quantifiée par leur contrainte à rupture mesurée par des essais brésiliens (Figure 4.7). En-dessous de 100 MPa, les compacts sont très peu manipulables. Nous avons alors mesuré la résistance mécanique de comprimés crus de granulés G160-500μ mis en forme à 150, 300 et 600 MPa, à l'aide du dispositif présenté au paragraphe 2.15 (p.68). La Figure 4.8a révèle la faible dispersion des valeurs de contrainte à rupture des comprimés mis en forme aux mêmes contraintes de mise en forme. La Figure 4.8b confirme que la contrainte à rupture des comprimés augmente avec leur contrainte de mise en forme.

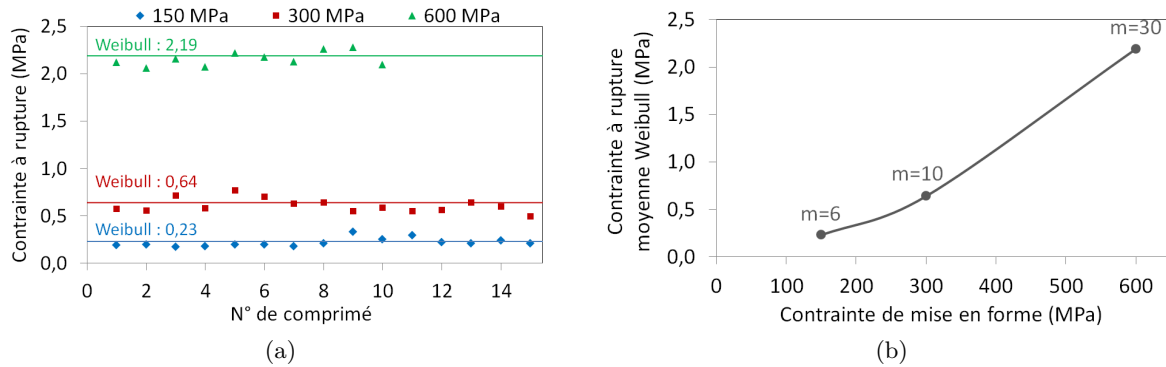


Figure 4.7 – Tenue mécanique déterminée par essais brésiliens de comprimés de granulés G160-500 $\mu$  : a) contrainte à rupture de tous les essais et valeur moyenne obtenue par statistique de Weibull, b) évolution de la contrainte à rupture moyenne obtenue par statistique de Weibull des comprimés en fonction de leur contrainte de mise en forme ( $m$  : module de Weibull).

Pour les comprimés mis en forme à 150 MPa, la rupture du comprimé est précédée de la formation d'un méplat sur la tranche. Il est noté « a » sur la Figure 1.8 (p.14) et sa largeur vaut environ 1 mm. Il correspond à une zone de faible déformation liée à la faible cohésion du comprimé. Cela provoque alors la rupture du comprimé en trois morceaux (Figure 4.8a). Pour les comprimés mis en forme à 300 et 600 MPa, la fissure est nette et traverse le comprimé dans le sens de l'application de la charge (Figure 4.8b). Pour quelques essais, la rupture est franche et conduit à la séparation du comprimé en deux morceaux.

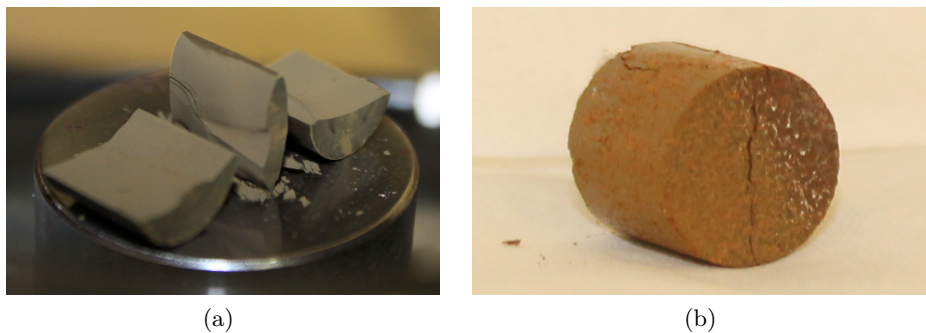


Figure 4.8 – Comprimés cisailés par essais brésiliens : a) formation d'un méplat menant à la rupture du comprimé en 3 morceaux, b) fissure nette du comprimé dans le sens de l'application de la charge.

#### 4.1.3 Porosité ouverte et microstructure après frittage

La Figure 4.9 montre que la porosité ouverte diminue très rapidement lorsque la contrainte de mise en forme passe de 0 à environ 100 MPa, puis beaucoup plus lentement à partir d'environ 150-200 MPa. La porosité ouverte des pastilles sur cette gamme de contraintes est d'environ 6%, ce qui ne laisse plus beaucoup d'espace pour le réarrangement des granulés. De plus, une proportion de granulés reste pratiquement intègre jusqu'à 600 MPa (*cf.* Figure 4.4, p.123).

La Figure 4.10 montre la microstructure des pastilles mises en forme à trois contraintes différentes.

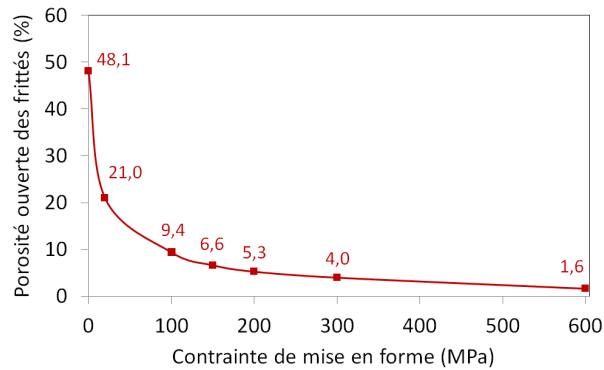


Figure 4.9 – Evolution de la porosité ouverte de pastilles de granulés G160-500 $\mu$  en fonction de leur contrainte de mise en forme.

Tout d'abord, nous observons que les pores sont très nombreux lorsque le lit de granulés est mis en forme à une contrainte inférieure à 100 MPa (Figure 4.10a). En effet, la porosité ouverte est de 21,0% au sein de la pastille de granulés G160-500 $\mu$  mise en forme à 20 MPa. De plus, les contacts entre les granulés sont peu nombreux, ce qui explique la faible tenue du comprimé.

Ensuite, les pastilles fabriquées à 300 MPa possèdent encore des pores ouverts dont la forme est majoritairement allongée (Figure 4.10b). La présence de pores allongés s'explique par le rapprochement des granulés entre eux, créant des espaces libres le long des surfaces de contact.

Enfin, l'augmentation de la contrainte jusqu'à 600 MPa révèle un comblement de ces derniers, la porosité ouverte n'étant alors que de 1,6% (Figure 4.10c).

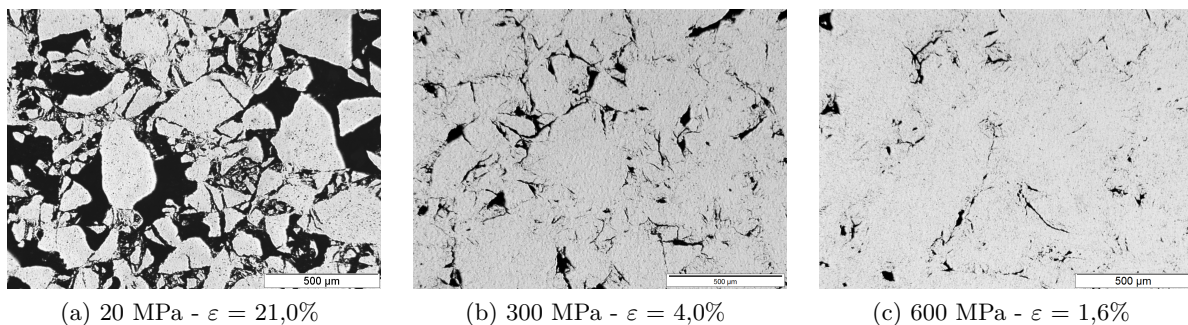


Figure 4.10 – Micrographies de coupes de pastilles à porosité ouverte  $\varepsilon$  composées de granulés G160-500 $\mu$  - Influence de la contrainte de mise en forme.

Les micrographies de la Figure 4.10 montrent que la porosité ouverte diminue avec la contrainte de mise en forme grâce aux réarrangements des granulés, facilités par leurs fragmentations. Les deux mécanismes se produisent en simultanée et la formation d'un comprimé manipulable à porosité ouverte n'est possible que par la combinaison des deux. Cependant, la microstructure se fige à partir d'une contrainte donnée car les granulés sont soit trop résistants, soit « protégés » par les fragments qui les entourent qui conduisent à un chargement isotrope au moins dans la gamme de contraintes explorée.

## 4.2 Influence de la répartition granulométrique des granulés

Quatre lots de granulés de taille moyenne et d'étalement différents sont considérés, à savoir G45-160 $\mu$ , G160-500 $\mu$ , G800-1000 $\mu$  et G0-1000 $\mu$  (*cf.* §2.2.4.1, p.60). Nous nous intéressons ici à l'influence de la taille des granulés sur la compressibilité et la porosité ouverte formée après frittage, pour différentes contraintes de mise en forme du compact. Notons que la contrainte à rupture des comprimés crus n'a pas été mesurée mais nous pouvons toutefois préciser que la présence de granulés de taille supérieure à 800  $\mu$ m a tendance à légèrement fragiliser le comprimé.

### 4.2.1 Compressibilité et émission acoustique

Comme évoqué par plusieurs auteurs [169], [165], [125], la taille des granulés augmente l'activité acoustique enregistrée au cours de la compaction. Nous avons alors étudié ce qu'il en était pour les granulés d'UO<sub>2</sub>. La hauteur de la chambre de compaction lors du remplissage a été fixée pour tous les essais à 12 mm.

Ces quatre lots de granulés de cohésion interne identique sont compactés en matrice  $\phi 10$  jusqu'à 600 MPa. La densification des granulés est très similaire jusqu'à environ 100 MPa (Figure 4.11), malgré des densités après remplissage légèrement différentes (Tableau 4.1).

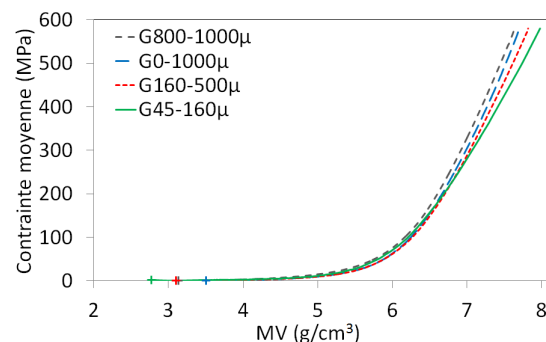


Figure 4.11 – Densification jusqu'à 600 MPa de quatre lots de granulés de distribution granulométrique différente (les croix correspondent aux masses volumiques de remplissage).

Au-delà d'environ 100 MPa, les courbes se dissocient légèrement les unes des autres. Les comprimés possédant les plus gros granulés (G800-1000 $\mu$ ) sont les moins denses en matrice, indépendamment de la présence de petits granulés. En revanche, les distributions granulométriques les plus fines conduisent aux comprimés les plus denses. A fragmentation identique, un petit granulé va conduire à de plus petits fragments qu'un gros granulé, ce qui va permettre une meilleure occupation de l'espace et donc une meilleure densification du compact.

TABLEAU 4.1 – DENSITÉS MESURÉES LORS DE LA COMPACTION DE GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES

Granulés	45-160	160-500	0-1000	800-1000
Densité de remplissage (-)	0,253±0,001	0,283±0,001	0,319±0,001	0,286±0,001
Densité après éjection (-)	0,607±0,001	0,600±0,001	0,603±0,001	0,604±0,001

Ce résultat s'observe dès le remplissage des granulés dans la matrice puisque le lot G0-1000 $\mu$  possède la densité de remplissage la plus élevée (Tableau 4.1). Malgré des écarts de densité de remplissage notables entre les quatre lots de granulés, les densités après éjection peuvent être considérées similaires.

Avant d'analyser l'EA enregistrée lors de la compaction, rappelons que les paramètres de discrétisation (PDT, HDT et HLT) ont été optimisés pour les essais avec les granulés G160-500 $\mu$ . Ainsi, nous commenterons la variation des caractéristiques des salves entre les différents lots de granulés et non leur valeur en absolu.

Pour chaque lot de granulés de distribution variable, l'EA est caractérisée par l'amplitude des salves (1<sup>ère</sup> colonne) et leur fréquence centroïde (2<sup>ème</sup> colonne) en fonction de la densité  $\rho$  du lit de granulés (Figure 4.12). La contrainte moyenne de mise en forme est également reportée. Le début de la courbe de compression correspond à l'instant où le poinçon supérieur entre dans la matrice, *i.e.* entre en contact avec les granulés.

Tout d'abord, l'EA produite lors de la compaction est fonction de la granulométrie des granulés mais présente un aspect global identique. En effet, les premières salves sont acquises à partir d'une densité supérieure à celle de remplissage et l'activité acoustique est intense jusqu'à une pression/densité donnée (Tableau 4.2 : « Densité de fin des EA (-) »).

TABLEAU 4.2 – DENSITÉS ET CONTRAINTE DE DÉBUT ET DE FIN D'ACQUISITION DES ÉMISSIONS ACOUSTIQUES POUR DES GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES

Distribution granulométrique ( $\mu\text{m}$ )	45-160	160-500	0-1000	800-1000
Densité de début des EA (-)	0,30	0,28	0,32	0,31
Densité de fin des EA (-)	0,52	0,59	0,60	0,62
Contrainte moyenne de fin des EA (MPa)	50	180	220	260

Premièrement, le début de l'EA ne dépend pas de la taille moyenne des granulés mais nous remarquons que plus la distribution granulométrique est étendue, plus l'amplitude des salves augmente progressivement. Pour les granulés G800-1000 $\mu$  qui présentent une distribution granulométrique très étroite, dès les premières EA, certaines salves présentent des amplitudes pratiquement égales à l'amplitude maximale observée durant l'essai. Les granulés G0-1000 $\mu$  qui possèdent l'étendue granulométrique la plus grande sont ceux pour lesquelles les salves atteignent le plus progressivement leur amplitude maximale. La fragmentation ne doit donc pas s'opérer de la même façon selon l'étendue granulométrique des granulés.

Deuxièmement, la fin de l'EA dépend quant à elle de la taille moyenne des granulés (Figure 4.13), comme l'a également noté Rouèche [96] lors de la compaction de grains de sable de quelques centaines de micromètres. La contrainte moyenne et la densité du milieu à partir de laquelle l'EA cesse augmentent avec la taille moyenne des granulés initiaux.

Ensuite, l'amplitude maximale des salves est d'autant plus grande que le diamètre moyen des granulés est élevé (Figure 4.14a). Ce constat a également été fait par Waring [169] pour des particules NaCl de quelques centaines de micromètres.

En reportant le nombre de salves émises entre les densités de 0,30 et de 0,60 en fonction

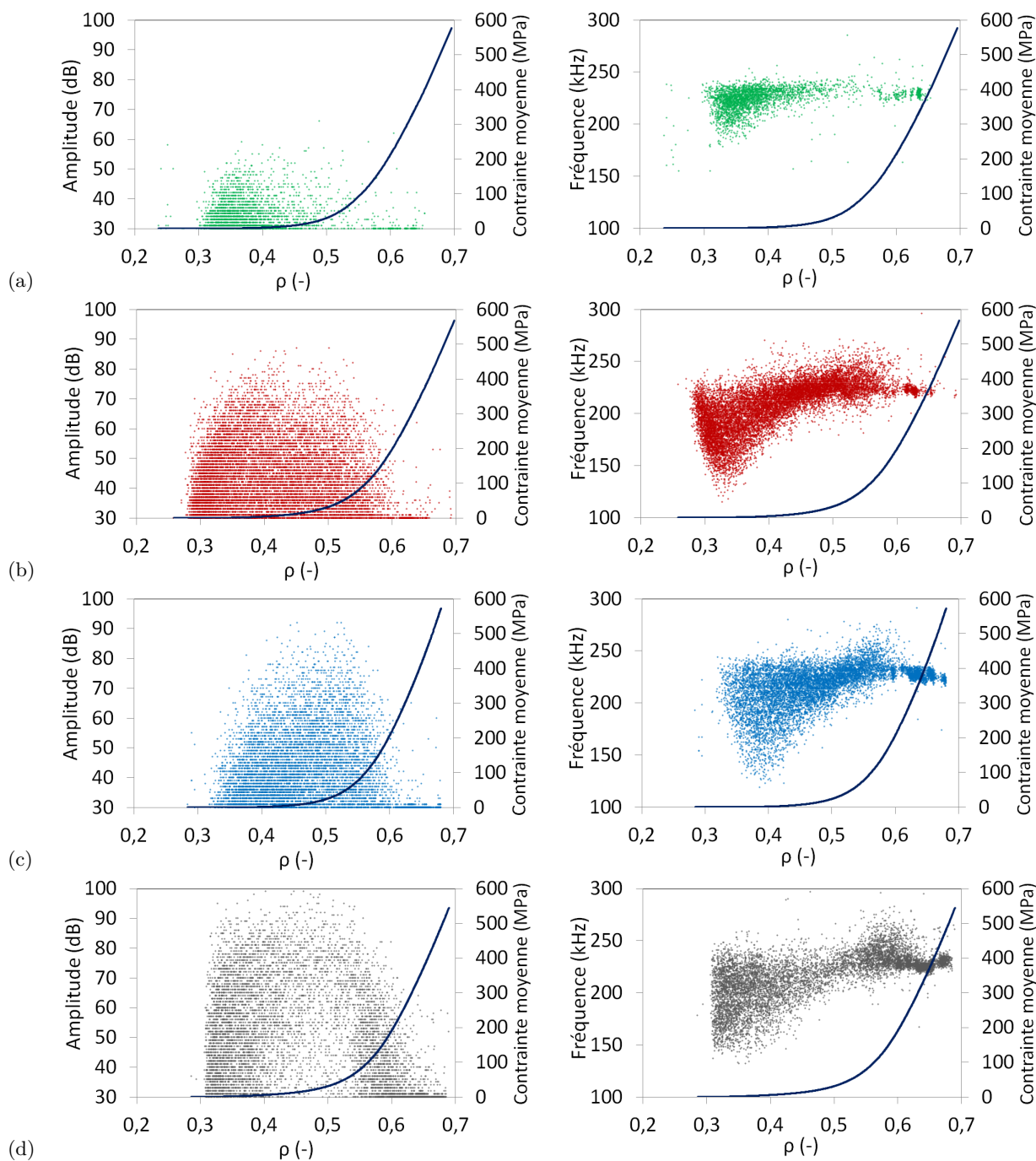


Figure 4.12 – Emission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granules de distribution granulométrique : a) 45-160  $\mu\text{m}$ , b) 160-500  $\mu\text{m}$ , c) 0-1000  $\mu\text{m}$ , d) 800-1000  $\mu\text{m}$ .

de leur amplitude (Figure 4.14b), nous constatons que pour les petits granules (G45-160 $\mu$ ) la moitié des salves possède une amplitude inférieure ou égale à 33 dB. Ainsi, les faibles valeurs d'amplitude peuvent être attribuées aux réarrangements et fragmentations de granules de tailles inférieures à 160  $\mu\text{m}$ . Précisons que ces salves de faibles amplitudes peuvent être « masquées » par des salves de plus fortes amplitudes. Par ailleurs, la distribution des amplitudes des salves présente quasiment la même allure pour les lots G160-500 $\mu$  et G0-1000 $\mu$  et la distribution de celles provenant de la compaction des granules G800-1000 $\mu$  est quasi uniforme sur l'intervalle 30-80 dB.

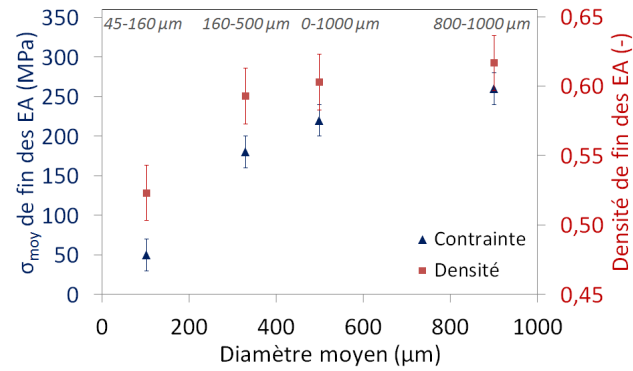


Figure 4.13 – Evolution de la contrainte et de la densité de fin des EA en fonction du diamètre moyen des lots de granulés.

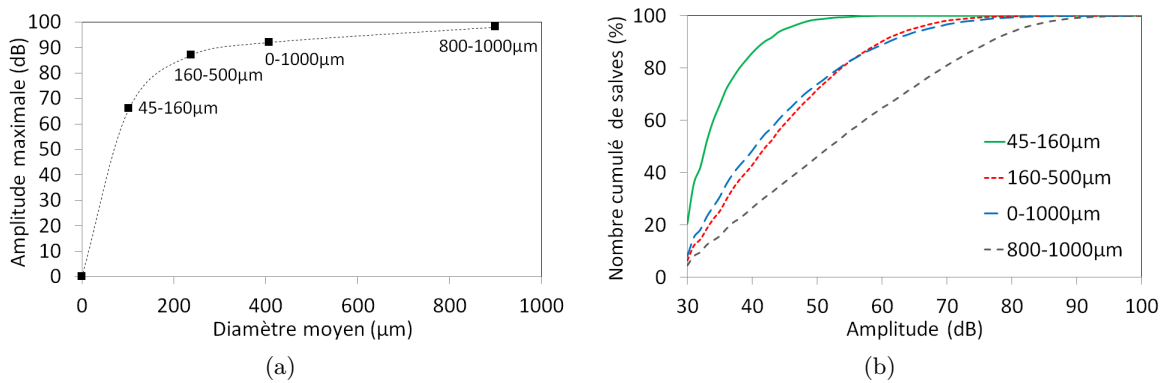


Figure 4.14 – Densification sur l'intervalle de densités 0,30 - 0,60 de granulés de distributions granulométriques différentes : a) évolution de l'amplitude maximale de toutes les salves acquises en fonction du diamètre moyen des quatre lots de granulés, b) distribution des amplitudes de salves.

Enfin, les fréquences centroïdes des salves évoluent globalement de la même manière pour les quatre essais (Figure 4.12). Les fréquences commencent par couvrir un large domaine, de 150 à 250 kHz. Puis elles augmentent en moyenne tout en se resserrant avant de diminuer légèrement en fin d'essai.

#### 4.2.2 Porosité ouverte et microstructure après frittage

Trois comprimés de granulés G45-160µ, G160-500µ, G800-1000µ et G0-1000µ ont été mis en forme à 150 MPa, 300 MPa et 600 MPa par lots et par contraintes, puis frittés à 1700°C sous hydrogène pendant 4 heures. La porosité ouverte des pastilles est calculée à partir des mesures de densité hydrostatique.

Tout d'abord, la porosité ouverte diminue avec la contrainte de mise en forme, comme observé au paragraphe 4.1.3 (p.125), et dépend peu, en première approche, de la tranche granulométrique considérée (Figure 4.15). Seule la tranche 45-160 µm conduit à des pastilles dont la porosité ouverte est significativement plus faible que celle des autres tranches. Il faut dire que la fin de l'EA, que nous avons liée à la fin de la fragmentation, se produit à une contrainte d'environ 50 MPa, valeur inférieure à la plus faible contrainte de mise en forme, *i.e.* 150 MPa. Les granulés



G0-1000 $\mu$  conduisent, pour les trois contraintes appliquées, à une porosité légèrement plus faible que celle obtenue à partir des lots G160-500 $\mu$  et G800-1000 $\mu$ . La présence de petits granules peut combler une partie de la porosité. Même après une pression appliquée de 600 MPa, toutes les pastilles issues des lots G160-500 $\mu$ , G800-1000 $\mu$  et G0-1000 $\mu$  présentent une porosité ouverte notable, preuve que la mémoire des granules initiaux existe encore.

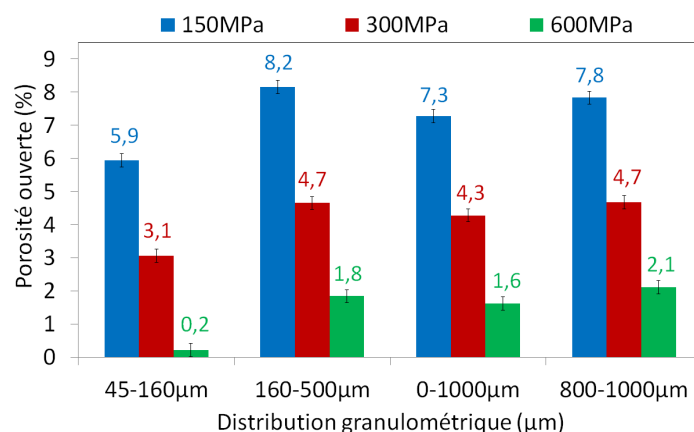


Figure 4.15 – Porosité ouverte de pastilles réalisées à partir de différentes tranches granulométriques de granules et mises en forme à 150, 300 ou 600 MPa.

La Figure 4.16 présente les microstructures représentatives de pastilles mises en forme à 300 MPa pour les quatre lots de granules. La distance entre les pores ouverts dépend logiquement de la taille des granules puisque la porosité ouverte se forme autour d'eux. Des granules de grande taille (supérieure à 500  $\mu\text{m}$ ) sont observés pour les pastilles issues des lots G0-1000 $\mu$  et G800-1000 $\mu$ . Ils sont entourés de zones poreuses qui sont constituées de fragments de granules. Bien que présentant le même taux global de porosité, la pastille fabriquée avec les granules G160-500 $\mu$  présente une répartition de porosité différente de celle des pastilles G0-1000 $\mu$  et G800-1000 $\mu$ . L'absence de quantification de la distribution de la porosité limite la comparaison des microstructures.

Pour conclure, la distribution granulométrique, la taille moyenne et l'étalement de lots de granules plus ou moins cohésifs influencent très peu le volume de porosité ouverte formée lors du frittage, indépendamment de la contrainte de mise en forme du comprimé. Toutefois, la taille des granules modifie la morphologie et la distribution des pores ouverts.

### 4.3 Influence de la cohésion des granules

Les granules mis en œuvre jusqu'à maintenant présentent une cohésion due à l'imbrication des agrégats, aux forces de Van der Waals et aux liaisons électrostatiques. En augmentant la pression de granulation, la cohésion est améliorée mais reste faible. Un moyen de l'accroître notablement est de créer des liaisons fortes entre les agrégats qui composent le granule. Pour ce faire, les granules sont traités thermiquement à des températures pour lesquelles la consolidation se produit, à partir d'environ 800°C (*cf.* §2.2.4.2, p.62), sans modifier fortement la taille des particules ni leur structure.

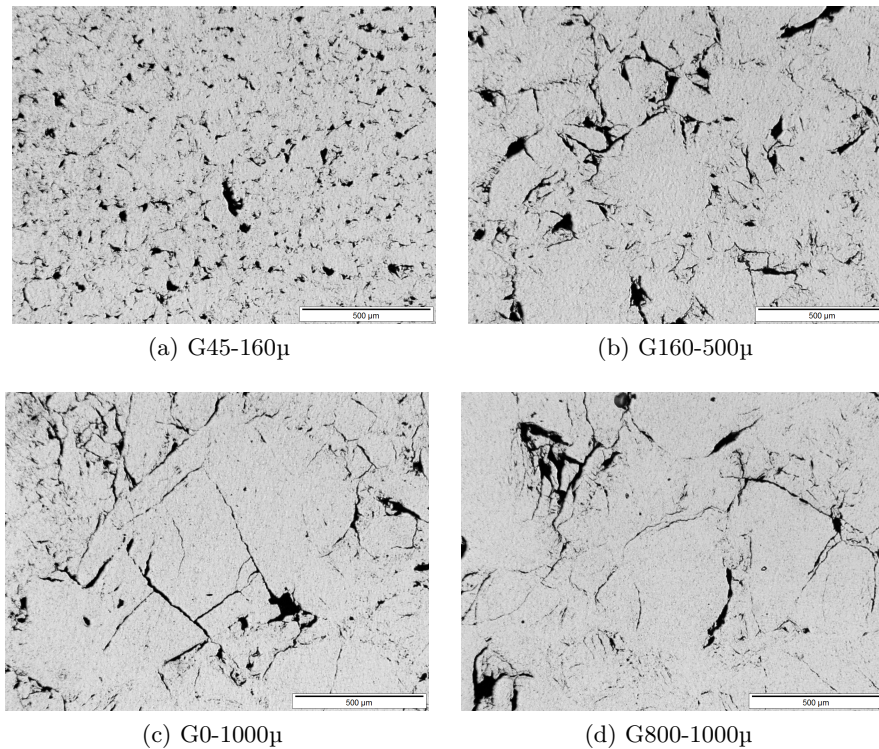


Figure 4.16 – Micrographies de pastilles frittées mises en forme à 300 MPa – Distribution de la porosité ouverte pour des granularités différentes.

Nous présentons dans ce paragraphe les mesures de résistance mécanique de ces granulés consolidés thermiquement ainsi que l'influence de leur cohésion sur la compressibilité, l'EA, la tenue mécanique des compacts et la porosité ouverte formée après frittage.

### 4.3.1 Essai Brésilien sur des granulés consolidés

La consolidation des granulés par frittage crée des liaisons fortes, solides, plus difficilement fragmentables que les liaisons assurant la cohésion des granulés non consolidés. La charge à rupture des granulés GC700, GC1000 et GC1200 est mesurée par essai brésilien, à l'aide de la machine de micro-compression (*cf.* §2.3.2.1, p.67).

#### 4.3.1.1 Courbe de charge et contrainte à rupture

Tout d'abord, une partie des courbes de charge présente plusieurs sauts de force (Figure 4.17a). Les sauts apparus à 2,4 puis 2,6 N n'ont pas conduit à une fissure observable, tandis que pour le saut qui s'est produit à 4 N, une fissure a été détectée (Figure 4.17c). Ces observations ne permettent pas de connaître l'origine de ces sauts : est-ce la même fissure qui s'arrête puis recommence à se propager ? Est-ce la création de nouvelles fissures ? Ou encore, est-ce le résultat de la rupture de protubérances (Figure 2.4, p.59) ?

La seconde partie des granulés consolidés thermiquement se fragmente sans que la courbe de charge présente de discontinuités avant la rupture (Figure 4.17b). La fragmentation semble s'accompagner d'une libération d'énergie notable car les fragments s'écartent nettement les uns

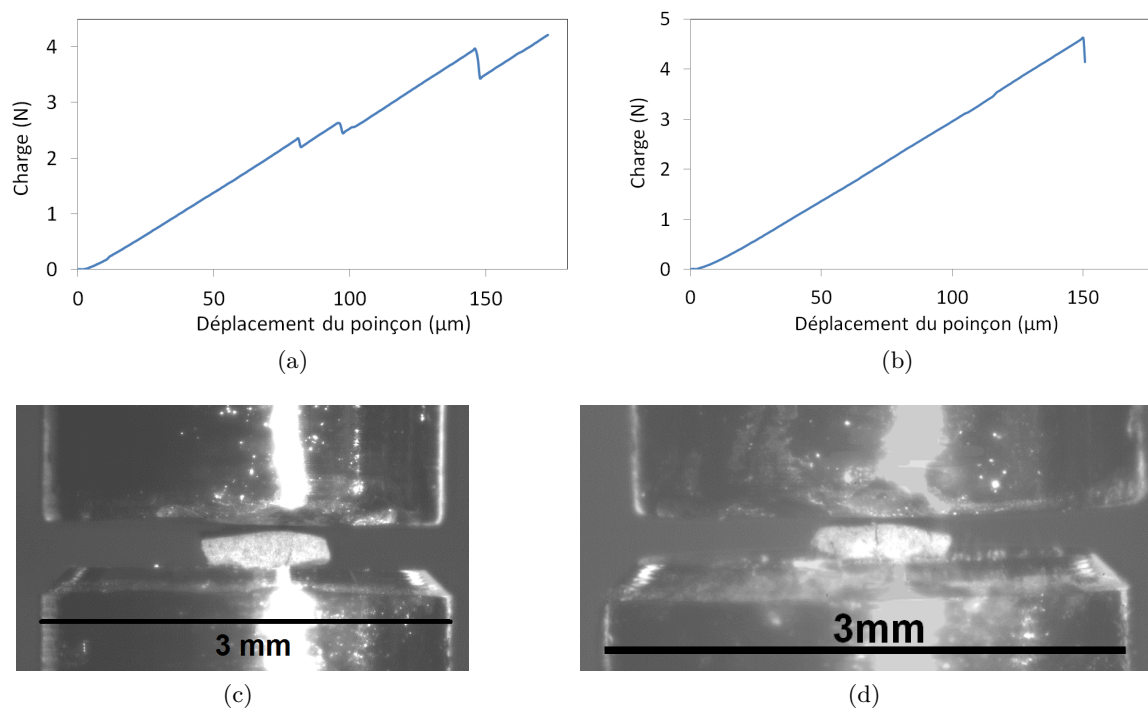


Figure 4.17 – Cisaillements par essai brésilien de granulés GC1000 à l'aide de la machine de micro-compression (*cf.* §2.3.2.1, p.67) - Courbes de charge et photos des granulés fissurés : a,c) fissure visible au 3<sup>ème</sup> saut de charge, b,d) rupture nette du granulé au 1<sup>er</sup> saut de charge.

des autres (Figure 4.17d). Il est également observé des arrachements de matière au niveau des angles ou des détachements de petits morceaux.

Pour chacun des trois lots de granulés GC700, GC1000 et GC1200, une quinzaine d'essais brésiliens est réalisée. Il est à noter que certains granulés GC1200 ne se sont pas fragmentés sous une charge de 8 N.

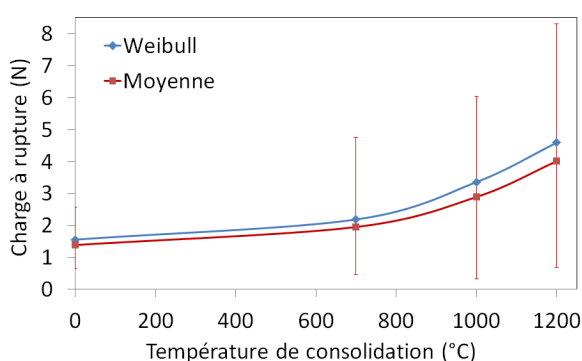


Figure 4.18 – Evolution de la charge à rupture des granulés en fonction de leur température de consolidation.

Comme attendu, la charge à la rupture moyenne augmente avec la température de consolidation (Figure 4.18). Les valeurs obtenues par statistique de Weibull sont légèrement supérieures aux valeurs moyennes mais l'évolution avec la température de consolidation reste inchangée. Les extrema des barres d'erreur correspondent aux valeurs minimales et maximales de charge à rupture obtenues pour chacun des lots. La dispersion est d'autant plus grande que la tempé-

rature de consolidation est élevée. Cette dispersion est aussi traduite par le module de Weibull qui est compris entre 1 et 3 pour les quatre lots de granulés. Elle est consécutive au fait que les granulés possèdent des formes et des microstructures internes différentes telles que la présence d'hétérogénéités plus ou moins marquée.

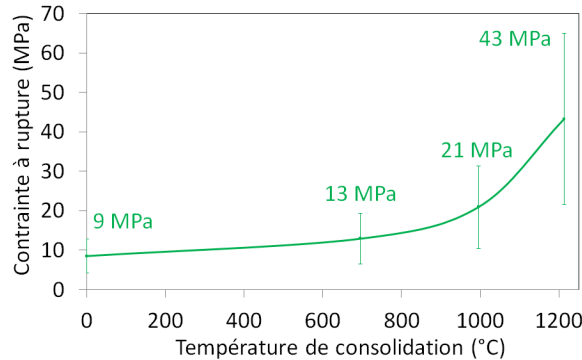


Figure 4.19 – Evolution de la contrainte à rupture des granulés en fonction de leur température de consolidation.

Le calcul de la contrainte à rupture est délicat du fait de la forme polyédrique des granulés et de leur surface de rupture qui n'est pas plane. Nous la calculons à partir de la relation Tableau 3.1 (p.88). Les valeurs de contrainte à rupture varient de 8,5 MPa, pour les granulés non consolidés G160-500 $\mu$ , jusqu'à 43,3 MPa, pour les granulés GC1200 qui sont les plus consolidés thermiquement (Figure 4.19). Les barres d'erreur représentent l'écart entre les valeurs minimales et maximales et correspondent à une dispersion d'environ 40%.

#### 4.3.1.2 Emission acoustique

Les salves émises au moment de la rupture des granulés consolidés thermiquement possèdent une forme d'onde similaire à celle des granulés non consolidés, à savoir un temps de montée rapide et une décroissance lente.

Comme constaté lors des essais brésiliens réalisés sur les granulés G160-500 $\mu$ , certaines ruptures se font sans qu'aucun signal acoustique ne soit détecté. Les granulés consolidés thermiquement à 700°C, 1000°C et 1200°C ont respectivement une probabilité de conduire à un signal acoustique détecté de 89%, 94% et 93%.

Par ailleurs, la rupture d'un granulé peut entraîner l'acquisition de plusieurs signaux discrets qui peuvent être dus soit à la propagation d'une fissure unique, soit à la propagation de plusieurs fissures. La contrainte à rupture étant plus grande, l'EA émise par celle-ci devrait être plus forte, et donc la probabilité de la capter plus grande.

Toutefois, l'amplitude des salves acquises ne semble pas dépendre de la contrainte à rupture (Figure 4.20a) alors que leur durée augmente en moyenne (Figure 4.20b). Ce résultat est assez surprenant car l'énergie libérée à la rupture est normalement fonction de la contrainte à rupture. Une des explications possibles est l'atténuation de l'onde avant d'arriver au capteur (*cf.* §3.2.4, p.94).

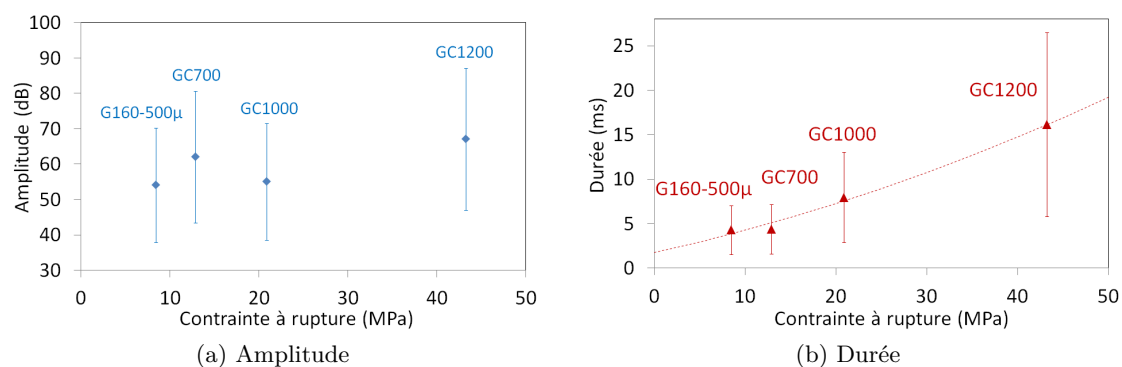


Figure 4.20 – Paramètres de la salve émise au moment de la rupture en fonction de la contrainte à rupture des granulés : a) amplitude, b) durée.

### 4.3.2 Compressibilité et émission acoustique

#### 4.3.2.1 Compressibilité et microstructure des compacts

La densification des lits de granulés sous charge est suivie dans la matrice  $\phi 10$  avec une hauteur de chambre de 12 mm. La contrainte maximale appliquée par le poinçon supérieur est de 600 MPa. La contrainte moyenne  $\sigma_{moy}$  vue par le comprimé, qui est la moyenne géométrique de la contrainte appliquée et de la contrainte transmise [44], est de 564 MPa ( $\pm 5$  MPa). Elle dépend très peu du lot de granulés considéré. Précisons que les contraintes à rupture des lots de granulés G600, GC800 et GC1100 sont estimées à partir de la courbe de la Figure 4.19 (p.134).

Pour chaque lot, trois essais de compaction jusqu'à 600 MPa sont réalisés et les données correspondent aux valeurs moyennes obtenues pour ces trois essais. Les valeurs des densités (calculées par rapport à la densité théorique de l' $UO_2$ ) de remplissage, sous charge et après éjection, sont reportées dans le Tableau 4.3. Précisons que les comprimés composés de granulés GC1200 sont très fragiles, c'est pourquoi nous ne développerons pas de résultat les concernant.

La différence des densités de remplissage entre les lots provient de la microstructure des granulés, et notamment de leur taille qui a légèrement diminué lors du traitement thermique de consolidation. En effet, nous versons 2,82 g ( $\pm 0,01$  g) de granulés GC1100 dans la chambre de compression alors que nous ne versons que 2,66 g ( $\pm 0,01$  g) de granulés G160-500μ.

TABEAU 4.3 – DENSITÉS MESURÉES LORS DE LA COMPACTION DE GRANULÉS DE COHÉSIONS DIFFÉRENTES

Granulés	G160-500μ	GC600	GC800	GC1000	GC1100
Densité de remplissage	0,258 $\pm$ 0,002	0,248 $\pm$ 0,001	0,255 $\pm$ 0,004	0,276 $\pm$ 0,001	0,273 $\pm$ 0,001
Densité après éjection	0,544 $\pm$ 0,001	0,595 $\pm$ 0,001	0,591 $\pm$ 0,004	0,610 $\pm$ 0,001	0,605 $\pm$ 0,003

De manière globale, nous remarquons que la densification est similaire entre les granulés consolidés thermiquement, la courbe des granulés GC1000 se trouvant dans la précision de la mesure (Figure 4.21a). L'évolution de la densité des granulés non consolidés G160-500μ présente la même allure mais le compact atteint la masse volumique la plus élevée en fin d'essai.

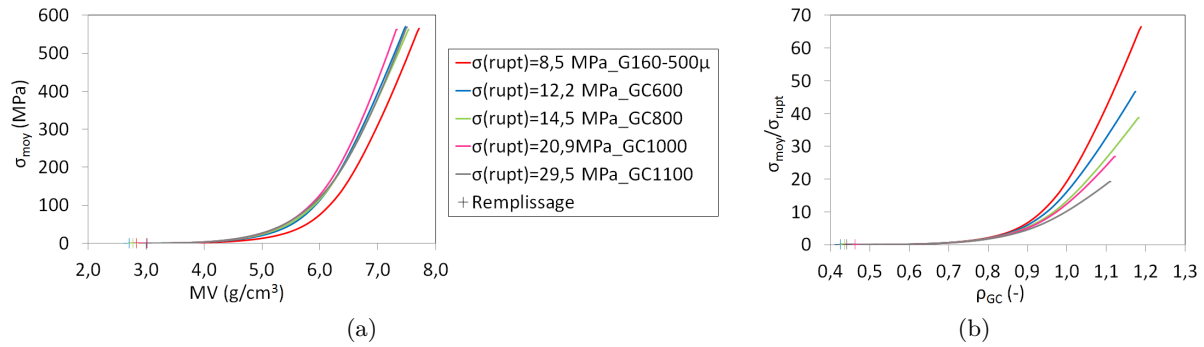


Figure 4.21 – Densification jusqu’à 600 MPa des granulés non consolidés (G160-500 $\mu$ ) et consolidés thermiquement (GC600, GC800, GC1000, GC1100) : a) masse volumique et contrainte moyenne, b) densité relative calculée en considérant la masse volumique des granulés et contrainte normalisée par rapport à la contrainte à rupture des granulés.

Toutefois, le Tableau 4.3 annonce une densité relative à la densité théorique de l’UO<sub>2</sub> qui est la plus faible pour ces granulés G160-500 $\mu$ . L’explication vient de la différence de masse volumique et de cohésion des granulés. Nous avons alors tracé la densité relative  $\rho_{GC}$  en considérant la masse volumique des granulés (*cf.* Tableau 2.3, p.63) en fonction de la contrainte normalisée par rapport à la contrainte à rupture des lots de granulés  $\sigma_{moy}/\sigma_{rupt}$  (*cf.* Tableau 2.3, p.63) (Figure 4.21b).

La densification est identique pour les cinq lots de granulés jusqu’à ce que le compact soit dense à environ 0,82, tandis que la contrainte a augmenté d’environ  $2\sigma_{rupt}$  (Figure 4.21b). Cela correspond à une augmentation de la densité  $\rho_{GC}$  d’environ 0,36 par rapport au remplissage. Au-delà, l’évolution de la densité  $\rho_{GC}$  en fonction de la contrainte normalisée est différente selon les lots de granulés considérés.

Pour tous les lots de granulés, la densité du compact sous 600 MPa dépasse celle des granulés ( $\rho_{GC} > 1$ ). La fragmentation des granulés libère de la porosité qui peut alors être comblée.

#### 4.3.2.2 Emission acoustique lors de la compaction

Quatre lots de granulés consolidés GC600, GC800, GC1000 et GC1100 ont fait l’objet d’un suivi par EA de leur compaction jusqu’à une contrainte appliquée de 600 MPa (Figure 4.22). Pour comparaison, nous avons rappelé l’EA acquise pendant la compaction des granulés non consolidés G160-500 $\mu$ . Pour tous les lots testés, la compacité du lit de granulés commence par augmenter sans qu’aucun signal ne soit détecté. Puis des salves sont enregistrées alors que la contrainte moyenne appliquée est inférieure à 1 MPa.

Tout d’abord, dès les premiers enregistrements, l’étalement des amplitudes des salves diminue avec la cohésion des granulés tandis que l’amplitude maximale atteinte augmente. Par ailleurs, l’étalement des fréquences centroïdes diminue également, en se décalant vers les hautes fréquences avec la cohésion des granulés. En effet, elle s’étend de 130 à 230 kHz pour les granulés G160-500 $\mu$  et de 160 à 230 kHz pour les granulés GC1100. Ce résultat est en accord avec les études de Langlois et al. [121] (*cf.* §1.3.3.3, p.39) indiquant que l’onde cohérente (E) se décale vers les composantes hautes fréquences au cours du frittage de billes de PMMA.

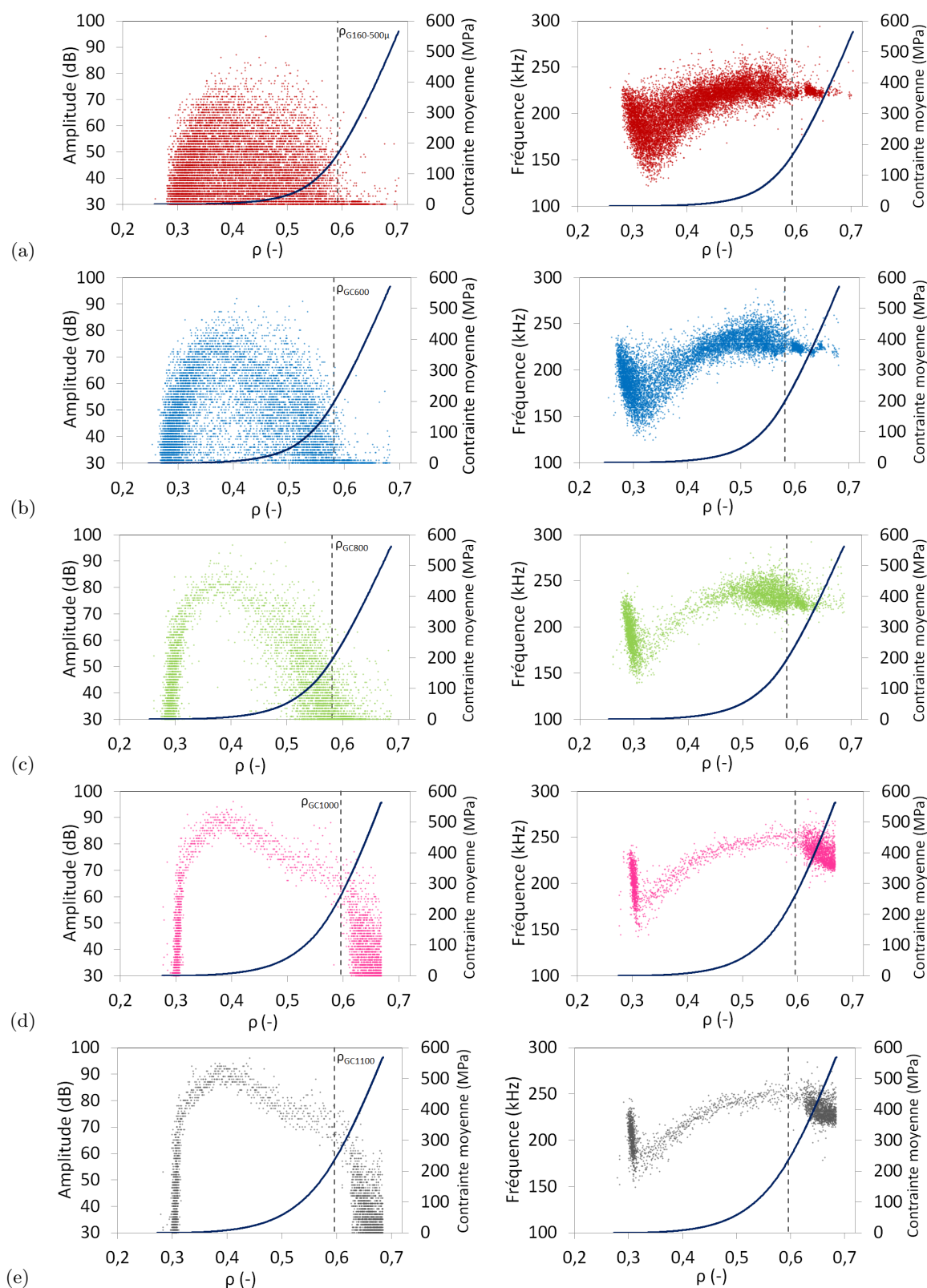


Figure 4.22 – Emission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés : a) non consolidés G160-500 $\mu$ , b) GC600, c) GC800, d) GC1000, e) GC1100

Le milieu continue ensuite à densifier sans augmentation nette de la contrainte. Sur cet intervalle, la gamme des amplitudes et celle des fréquences diminuent d'autant plus que les granulés sont cohésifs. Par exemple, les amplitudes des salves émises lors de la compaction des granulés GC1100 sont comprises entre 82 et 94 dB sur l'intervalle de densification 0,50 - 0,55.

Ce rétrécissement de la gamme des amplitudes de salves provient de l'augmentation importante de l'amplitude du signal brut et de la succession très rapide des émissions discrètes. De fait, le seuil de détection (fixé à 30 dB) et les paramètres temporels de discrétisation, choisis pour les granulés G160-500 $\mu$ , ne permettent pas de révéler les salves de plus faible amplitude. Autrement dit, le fait de ne pas observer de salves de faible amplitude peut provenir des conditions de discrétisation du signal brut.

La Figure 4.23 représente la distribution des amplitudes des salves enregistrées pendant la compaction des cinq lots de granulés, sur l'intervalle de densité 0,27 - 0,50.

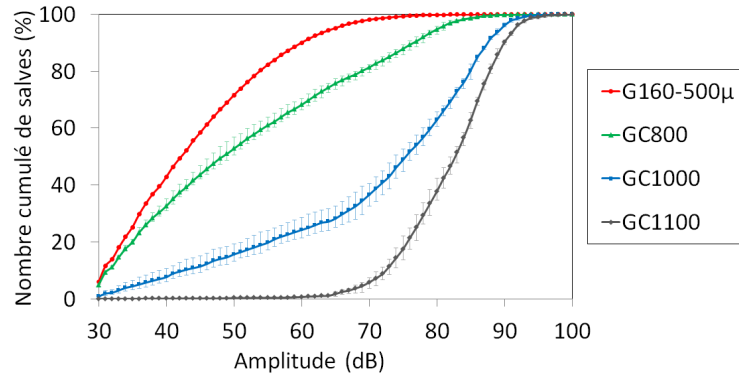


Figure 4.23 – Distribution des amplitudes de salves lors de la compaction de granulés non consolidés (G160-500 $\mu$ ) et consolidés thermiquement (GC800, GC1000, GC1100) sur un intervalle de densités du compact comprises entre 0,27 et 0,50.

La répartition des amplitudes de salve des granulés non consolidés est nettement décalée vers les faibles valeurs (< 60 dB) et celle des granulés les plus cohésifs (GC1100) est majoritaire aux fortes valeurs (> 63 dB). Pour les granulés de cohésions intermédiaires, la distribution des amplitudes s'étale sur toute la gamme 30-100 dB, mais les amplitudes sont d'autant plus grandes que les granulés sont cohésifs. De plus, la compaction des granulés les moins cohésifs émet des ondes dont les amplitudes ne dépassent pas un maximum. Par exemple, les granulés GC600 génèrent des salves d'amplitudes inférieures à 85 dB, alors que les salves enregistrées lors de la compaction des granulés GC1100 atteignent des amplitudes de 100 dB.

Enfin, lorsque le lit de granulés atteint une densité proche de celle des granulés, l'amplitude des salves est fortement diminuée et la forme d'onde caractéristique de la fragmentation n'est plus observée. Nous considérons alors que la majorité des granulés s'est fragmentée à partir de cette densité. Nous pouvons alors définir une contrainte de fin d'EA pour chacun des lots (valeurs reportées sur la Figure 4.24). Néanmoins, il est probable que les EA enregistrées en fin d'essai pour les granulés GC1000 et GC1100 correspondent également en partie à de la fragmentation.

De plus, la contrainte moyenne de fin d'EA augmente pratiquement linéairement avec la contrainte à rupture  $\sigma_{rupt}$  des granulés dans le domaine étudié. Ce résultat montre tout l'intérêt de suivre la compaction de particules fragiles par EA.

Néanmoins, au-delà de ces contraintes de fin de fragmentation identifiées par EA, les milieux granulaires continuent à se densifier quelle que soit la cohésion des particules qui les composent (Figure 4.21a, p.136). La fragmentation doit continuer à contribuer à la densification du compact mais de manière secondaire.



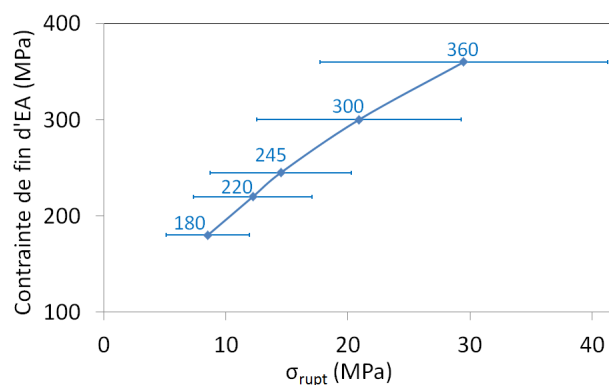


Figure 4.24 – Evolution de la contrainte moyenne de fin d'EA en fonction de la contrainte à rupture des granulés cohésifs.

Les phénomènes de densification doivent être différents soit par leur nature, soit par leur proportion relative.

### 4.3.3 Tenue mécanique des compacts

Nous avons mesuré la résistance mécanique de 15 comprimés crus pour les lots de granulés GC800 et GC1000, mis en forme à 150, 300 et 600 MPa, à l'aide du dispositif présenté au paragraphe 2.3.2.2 (p.68), et nous avons comparé les valeurs obtenues avec celles relatives aux compacts composés des granulés G160-500 $\mu$ .

Comme pour des granulés non consolidés (*cf.* §4.1.2, p.124), un méplat se forme lors de l'essai brésilien sur les comprimés mis en forme à 150 MPa, alors que les comprimés mis en forme à 300 et 600 MPa se rompent en deux.

La Figure 4.25a présente la dispersion des valeurs de contrainte à rupture des comprimés mis en forme à 300 MPa et cisailés par essais brésiliens. Les modules de Weibull pour les comprimés constitués de granulés G160-500 $\mu$ , GC800 et GC1000 valent respectivement 10, 5 et 10.

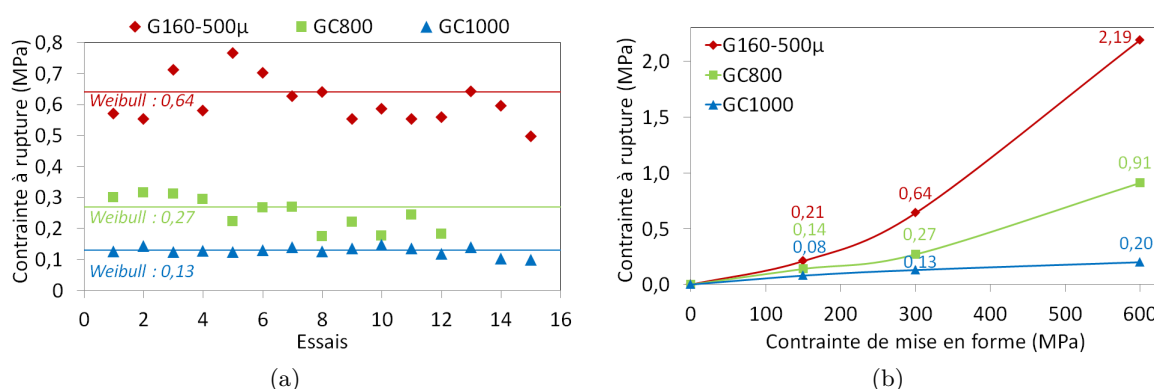


Figure 4.25 – a) Dispersion des valeurs de contrainte à rupture de comprimés mis en forme à 300 MPa et cisailés par essais brésiliens, b) évolution de la contrainte à rupture de comprimés crus constitués de granulés G160-500 $\mu$ , GC800 et GC1000, en fonction de leur contrainte de mise en forme.

La Figure 4.25b montre que la contrainte à rupture des comprimés augmente avec leur

contrainte de mise en forme, et ce pour les trois lots de granulés. En effet, plus la contrainte appliquée sur le lit de granulés est élevée, plus les granulés se fragmentent, ce qui favorise leur rapprochement et par conséquent l'augmentation des forces de contact. En revanche, cette augmentation reste faible pour les granulés les plus cohésifs (GC1000) car les liaisons solides au sein de ces granulés se fragmentent à des contraintes plus élevées que les deux autres lots de granulés. De fait, même à 600 MPa, les points de contacts ne sont pas assez nombreux pour garantir une consolidation du comprimé. Ceci explique également la diminution de la résistance mécanique des comprimés avec la cohésion des granulés, quelle que soit la contrainte de mise en forme.

Les critères de tenue d'un comprimé cru de particules d'actinides sont généralement basés sur des tests empiriques tels que des essais de chutes, d'arrachement et des contrôles visuels. Dans le cas des comprimés de combustibles nucléaires, seul le transfert des comprimés de la presse vers les nacelles de frittage doit être assuré. Ainsi, nous estimons que les comprimés de granulés peuvent être manutentionnés automatiquement dans les conditions d'essais pour lesquelles la contrainte à rupture est supérieure ou égale à 0,2 MPa. De fait, les granulés GC1000 doivent être mis en forme à au moins 600 MPa, alors que les granulés G160-500 $\mu$  peuvent être comprimés à seulement 150 MPa pour obtenir un comprimé manipulable.

#### 4.3.4 Porosité ouverte et microstructure après frittage

L'influence de la cohésion des granulés sur la porosité ouverte après frittage est étudiée à l'aide des granulés G160-500 $\mu$ , GC800, GC1000 et GC1100 dont la cohésion est définie par leur contrainte à rupture  $\sigma_{rupt}$  (cf. Figure 4.19, p.134). Nous présentons les résultats obtenus sur des pastilles mises en forme à 150 et 600 MPa.

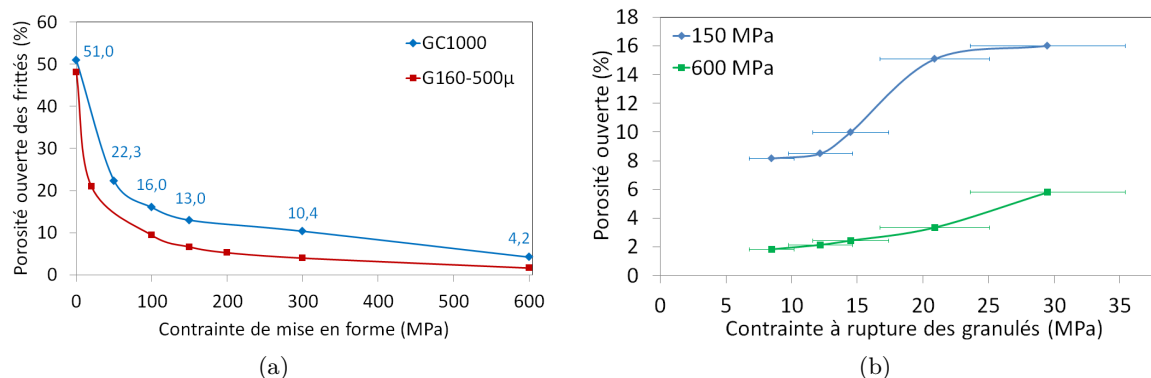


Figure 4.26 – Pastilles de granulés G160-500 $\mu$  et GC1000 : a) évolution de la porosité ouverte en fonction de leur contrainte de mise en forme, b) évolution de la porosité ouverte en fonction de leur contrainte à rupture, pour 2 contraintes de mise en forme (150 et 300 MPa).

Tout d'abord, l'évolution de la porosité ouverte des pastilles de granulés GC1000 (Figure 4.26a), en fonction de leur contrainte de mise en forme, est similaire à celle des pastilles de granulés G160-500 $\mu$  de la Figure 4.9 (p.126). Néanmoins, la porosité ouverte diminue de 6,2% entre 300 et 600 MPa pour les granulés GC1000. Cela suggère qu'ils continuent à se fragmenter jusqu'à 600 MPa car le réarrangement seul ne semble pas permettre de combler l'espace libre.

Ensuite, les pourcentages volumiques de pores ouverts sont, comme attendu, supérieurs pour les granulés les plus cohésifs (Figure 4.26a). Ce résultat est mis en évidence sur la Figure 4.26b puisque la porosité ouverte augmente avec la contrainte à rupture des granulés, quelle que soit la contrainte de mise en forme des comprimés. Compte tenu des barres d'erreur, nous ne pouvons pas conclure si l'évolution de ces courbes est similaire ou non pour les deux contraintes de mise en forme.

La Figure 4.27 représente la microstructure des pastilles des lots de granulés G160-500 $\mu$ , GC1000 et GC1100, mis en forme à 150 et 600 MPa.

Les granulés les moins cohésifs ( $\sigma_{rupt} = 8,5$  MPa) possèdent aucune liaison solide entre les agrégats qui les composent car ceux-ci n'ont pas été consolidés thermiquement. Néanmoins, les liaisons faibles qui lient les agrégats constituant les granulés résistent en partie aux contraintes qui leur sont appliquées. En effet, des granulés et des fragments de plus de 100  $\mu$ m sont visibles à 150 MPa et leurs traces sont encore visibles à 600 MPa. Ainsi, la présence de certains granulés permet d'obtenir une porosité ouverte de 5,1% à 150 MPa, mais seulement de 1,2% à 600 MPa.

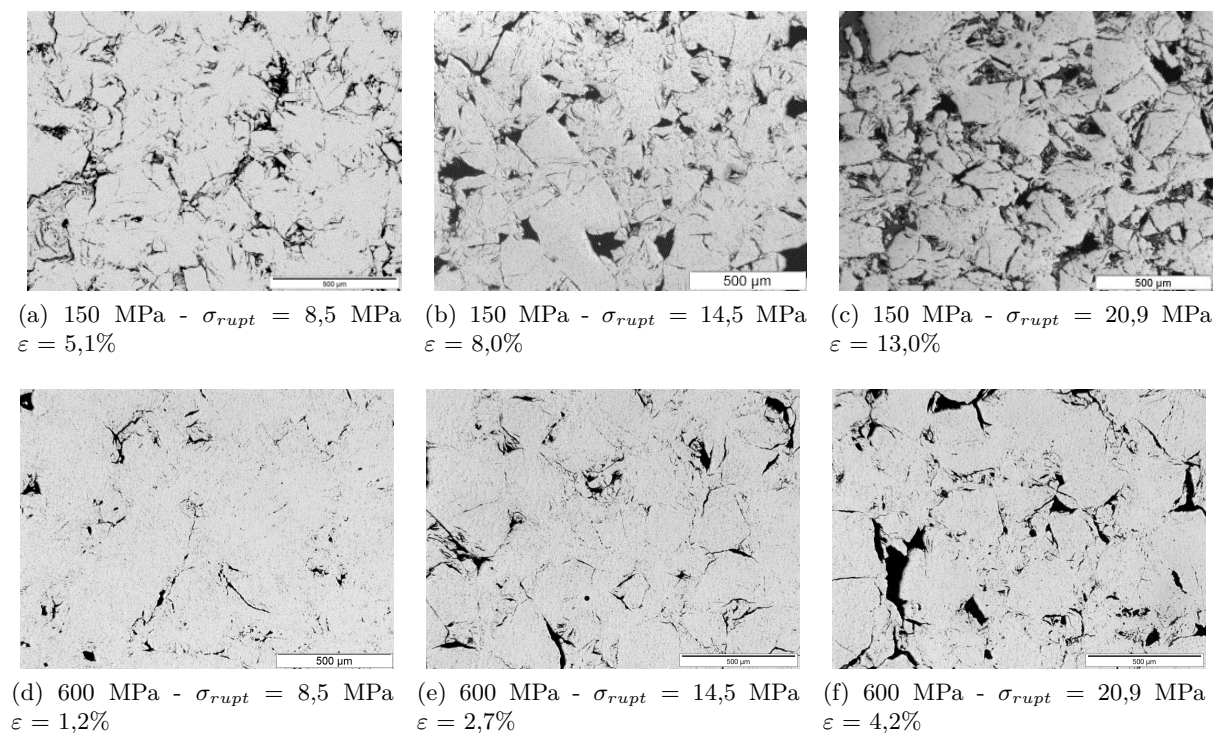


Figure 4.27 – Micrographies de coupes de pastilles à porosité ouverte  $\varepsilon$  mises en forme à 150 et 600 MPa : influence de la cohésion des granulés  $\sigma_{rupt}$ .

L'augmentation de la cohésion des granulés jusqu'à 14,5 MPa, puis 20,9 MPa, résulte de la présence de ponts solides entre les agrégats des granulés, en plus grand nombre au sein des granulés de cohésion 20,9 MPa. Ainsi, à contrainte de mise en forme similaire, plus le nombre de ces liaisons fortes est élevé, plus les granulés conservent leur intégrité. Le faible nombre de points de contact conduit à un frittage préférentiel des granulés sur eux-mêmes créant aussi un vide entre eux. La porosité ouverte augmente donc avec la cohésion des granulés et la forme des pores dépend aussi de leur cohésion. Ils sont en majorité longs et fins lorsque la cohésion est faible, et plus larges lorsque la cohésion des granulés est importante. Pour ces derniers, les fines

particules n'ont pas comblé les vides entre les granulé, ou les granulé ne se sont pas déformés pour que leurs surfaces adjacentes soient fortement en contact.

Les micrographies de la Figure 4.27 montrent également de grandes différences de taille des pores ouverts entre les pastilles et au sein même des pastilles. La distribution de leur taille est mesurée par porosimétrie mercure pour des pastilles mises en forme à 150 MPa (Figure 4.28)

Premièrement, le mercure s'introduit dans les pores de tailles comprises entre 200 et 0,1  $\mu\text{m}$ . Ces pores sont situés entre les granulé (inter-granulé). La taille des pores contenus dans les granulé GC1000 est comprise entre 0,1 et 20  $\mu\text{m}$ , alors que la taille des pores dans les granulé G160-500 $\mu$  est comprise entre 0,3 et 4  $\mu\text{m}$ .

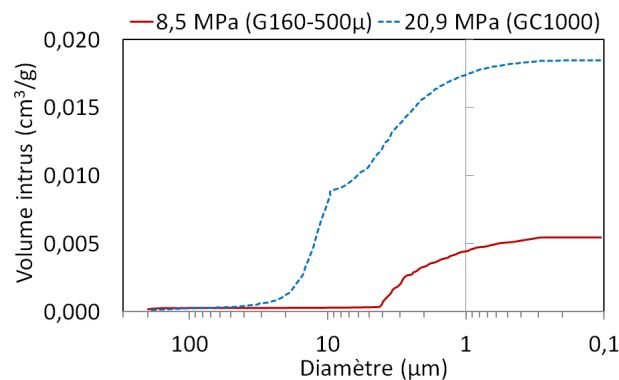


Figure 4.28 – Distribution, mesurée par porosimétrie mercure, de la taille des pores des pastilles de granulé G160-500 $\mu$  et GC1000, mises en forme à 150 MPa.

Le volume intrus dans les pores inter-granulé est bien supérieur dans la pastille constituée des granulé les plus cohésifs (0,018  $\text{cm}^3/\text{g}$ ) à celui dans la pastille constituée des granulé les moins cohésifs (0,005  $\text{cm}^3/\text{g}$ ). A partir du volume intrus, nous pouvons calculer le taux de porosité ouverte en faisant l'hypothèse que le mercure pénètre tous les pores. Nous trouvons respectivement 5% et 18% pour les pastilles G160-500 $\mu$  et pour les pastilles GC1000. Compte tenu des incertitudes de mesure, ce résultat est en bon accord avec les valeurs calculées à partir des mesures de pesée hydrostatique.

## 4.4 Synthèse

### 4.4.1 Corrélation entre émission acoustique et fragmentation

L'évolution de la densité d'un compact en fonction de la contrainte appliquée ne permet pas de mettre en évidence le début ou la fin de la fragmentation des granulés d' $\text{UO}_2$ . La rupture des particules, même peu cohésives, produit une EA sous forme de salves qu'il est possible d'acquérir à l'aide d'un capteur piézoélectrique. Le suivi de l'EA produite lors de la compaction de particules permet donc de suivre qualitativement le mécanisme de fragmentation.

Toutefois, les paramètres des salves dépendent de nombreux paramètres tels que la position du capteur piézoélectrique (*cf.* §3.3.3.2, p.113) ou la cohésion des particules (*cf.* §4.3.2.2, p.136) et évoluent quelque peu avec la densité du compact, *i.e.* la porosité du milieu. De plus, d'autres sources d'EA existent et viennent se superposer aux salves provenant de la fragmentation. La difficulté majeure consiste à identifier les différents signaux afin de les analyser. Le logiciel utilisé pour le traitement en continu de l'information acquise (paramétrage de reconnaissance des salves) n'est pas assez flexible pour permettre une exploitation plus quantitative des données. Par ailleurs, une simple analyse fréquentielle s'est révélée insuffisante et une analyse multiparamètres du signal semble obligatoire.

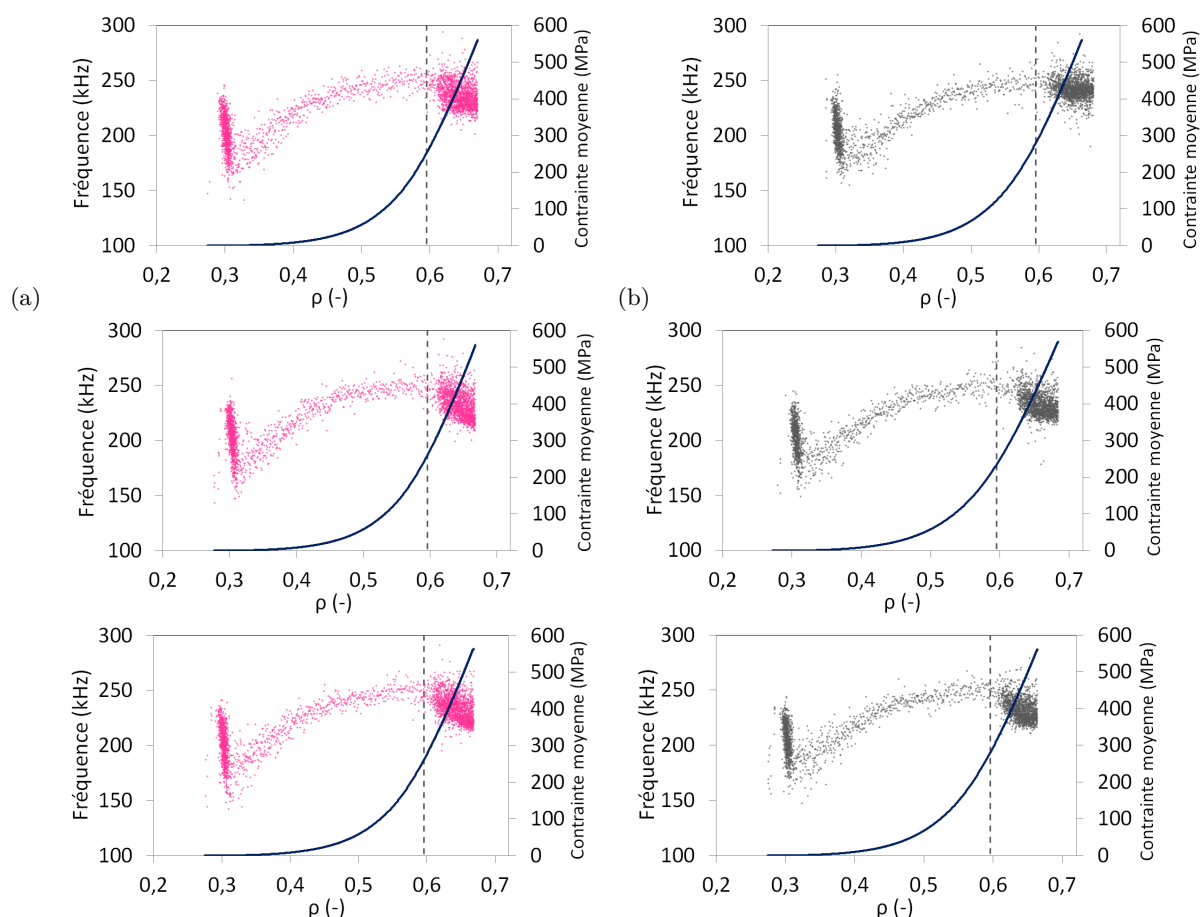


Figure 4.29 – Fréquence centroïde des salves d'émission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés : a) GC1000, b) GC1100.

Néanmoins, les résultats obtenus pour les différents types de granulés compactés montrent

l'intérêt de suivre par EA leur compaction, même si les paramètres n'ont pas pu être optimisés faute de temps. Il serait en particulier intéressant de réaliser cette optimisation pour les granulés consolidés à une température supérieure à 1000°C afin de savoir s'il existe ou non des salves de faible amplitude lors de leur fragmentation. De plus, l'évolution de la fréquence centroïde est particulière pour ces granulés, ce qui tend à montrer qu'une analyse multiparamètres devrait permettre de mieux exploiter les signaux émis.

La Figure 4.29 met en évidence une répétabilité des mesures acoustiques pour des lots de granulés identiques. Autrement dit, les trois graphes de la colonne *a*, respectivement de la colonne *b*, sont très similaires. De plus, la différence de comportement à la compaction entre des granulés consolidés à 1000°C et des granulés consolidés à 1100°C est significative, en particulier au niveau de l'apparition des salves basses fréquences au-delà d'une densité de 0,6 (Figure 4.29). En relatif, l'émission acoustique semble un moyen simple et efficace de contrôle en ligne de la compaction de particules fragmentables.

#### 4.4.2 Corrélation entre taux de fragmentation et tenue mécanique des compacts

Même si la tenue mécanique des compacts n'a pas été mesurée pour tous les lots, il semble, en première approximation, qu'il soit nécessaire que la fragmentation des particules soit quasi complète pour que les comprimés soient manipulables. Autrement dit, les comprimés sont suffisamment solides pour être manipulés si la contrainte de mise en forme est supérieure à la contrainte de fin de fragmentation.

Nous avons reporté la contrainte de fin de fragmentation déterminée par EA sur les courbes reliant la tenue mécanique des comprimés à la contrainte de mise en forme des granulés G160-500 $\mu$ , GC800 et GC1000 (Figure 4.30).

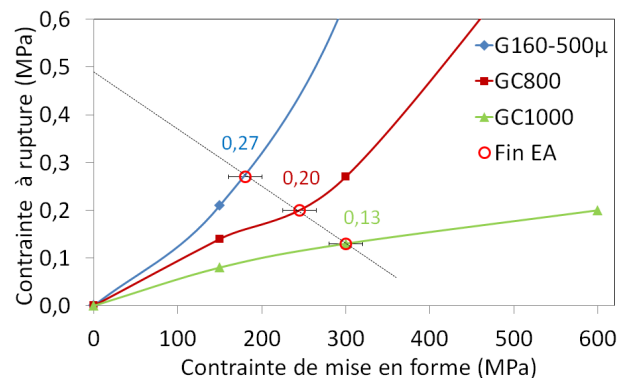


Figure 4.30 – Contraintes de fin d'EA placées sur les courbes reliant la tenue mécanique des comprimés de granulés de cohésions différentes à leur contrainte de mise en forme.

Les contraintes à rupture entre les différents types de granulés sont différentes car la consolidation thermique qui a été réalisée a conduit à une diminution notable de la surface spécifique et donc du rayon de courbure moyen des particules (*cf.* §2.2.4.2, p.62). La cohésion des compacts, principalement due aux forces de Van der Waals et aux liaisons électrostatiques, diminue donc avec la température de consolidation des granulés. Un compromis est alors à trouver entre la

température de consolidation qui permet d'augmenter la contrainte à rupture des granulés et la diminution de la surface spécifique.

Une température de consolidation de 1000°C semble être trop importante pour la poudre considérée car, soit le pré-frittage a conduit à une surface spécifique faible induisant des forces d'adhésion relativement faibles entre les particules, soit le traitement thermique a modifié la chimie de surface des granulés par l'élimination des feuillets d'oxyhydrates [33]. Cette température de consolidation trop élevée est apparemment la raison pour laquelle la contrainte à rupture des compacts GC1000 augmente beaucoup plus lentement pour des contraintes appliquées supérieures à celle correspondant à la fin de l'EA que celle relative aux granulés G150-500 et GC800.

#### 4.4.3 Corrélation entre taux de fragmentation et porosité ouverte après frittage

L'obtention de pores ouverts interconnectés est fortement liée au taux de fragmentation des granulés au sein des compacts pour des contraintes de mise en forme inférieures à la contrainte de fin de fragmentation. Pour les contraintes de mise en forme supérieures à celles de fin de fragmentation, la diminution de la porosité ouverte après frittage est majoritairement due au rapprochement des granulés qui provoque une augmentation de leur adhésion les uns aux autres. Lors du frittage, ces forces d'adhésion vont être supérieures aux forces qui conduisent à une densification des granulés sur eux-mêmes.

Nous avons reporté sur la Figure 4.31 les contraintes déterminées par EA, à partir desquelles la fragmentation semble terminée. Les points correspondant à la fin des EA se trouvant juste après le point d'inflexion, la forte diminution de l'activité acoustique semble donc bien coïncider avec la fin de la fragmentation des granulés au cours de leur compaction.

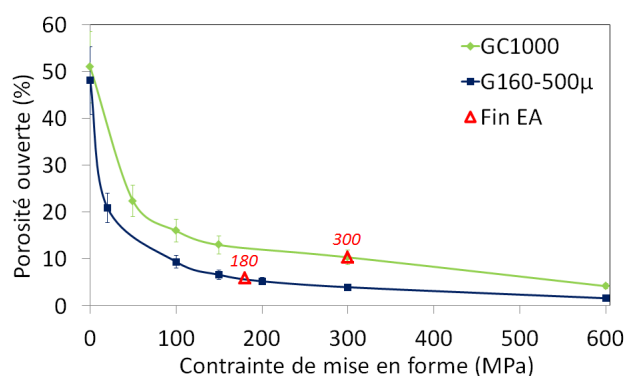


Figure 4.31 – Contraintes de fin d'EA placées sur les courbes reliant la porosité ouverte des comprimés de granulés de cohésions différentes à leur contrainte de mise en forme.

Il serait alors intéressant de mesurer précisément la porosité ouverte et d'observer la microstructure des pastilles mises en forme aux contraintes de fin de fragmentation, *i.e.* 180 MPa et 300 MPa pour les lots respectifs G160-500μ et GC1000.

## 4.5 Conclusion

Le contrôle de la porosité ouverte de particules fragiles sans additif est possible par métallurgie des poudres, en ajustant simplement la contrainte de mise en forme à la cohésion des particules. En effet, la contrainte appliquée sur un lit de granulés de centaines de micromètres doit être suffisante pour obtenir un comprimé manipulable, signifiant que ces granulés se sont réarrangés et fragmentés pour améliorer la cohésion interne du milieu. Néanmoins, cette contrainte ne doit pas conduire à la fragmentation totale de tous les granulés au risque de résorber une grande partie des pores ouverts pendant le frittage. Ainsi, le taux de fragmentation est le facteur majeur régnant la création de la porosité ouverte au sein de pastilles d'oxydes d'actinides.

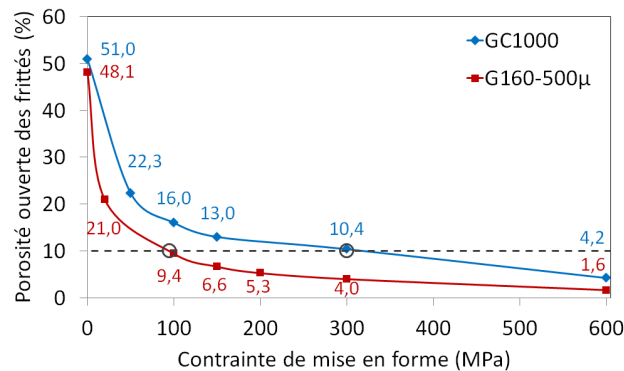


Figure 4.32 – Evolution de la porosité ouverte de pastilles de granulés G160-500μ et GC1000 en fonction de la contrainte de mise en forme : deux conditions possibles pour fabriquer une pastille présentant une porosité ouverte d'environ 10%.

Tout d'abord, il est possible de fabriquer deux pastilles de même porosité ouverte à partir de granulés de cohésion différente par simple modification de la contrainte de mise en forme. La Figure 4.32 montre qu'une pastille de granulés possédant une porosité ouverte d'environ 10% peut être obtenue soit à partir de granulés G160-500μ compactés à environ 100 MPa, soit de granulés GC1000 compactés à 300 MPa.

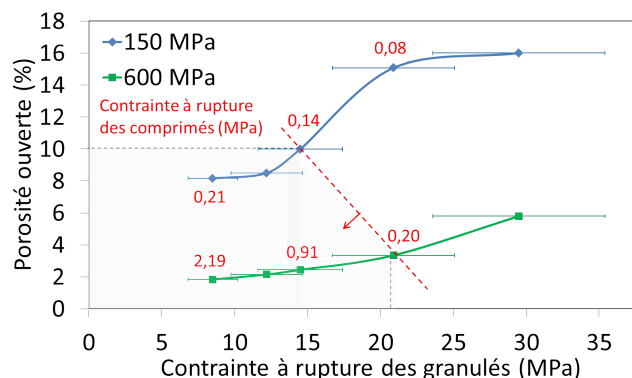


Figure 4.33 – Evolution de la porosité ouverte de pastilles mises en forme à 150 et 600 MPa, en fonction de la contrainte à rupture  $\sigma_{rupt}$  des granulés.

Néanmoins, la tenue mécanique du compact doit présenter une contrainte à rupture d'au moins 0,2 MPa pour assurer sa manutention. Ainsi, nous pouvons fabriquer des pastilles de



granulés cohésifs dont la contrainte à rupture ne doit pas excéder environ 20 MPa et possédant une porosité ouverte après frittage d'environ 10% (Figure 4.33). Toutefois, il est envisageable de fabriquer des pastilles de particules fragiles à porosité ouverte supérieure à 10% dans le cas où les comprimés ne nécessiteraient pas d'être déplacés/manipulés, *e.g.* si la presse se trouve dans l'enceinte du four de frittage.

Ensuite, nous avons montré que la distribution granulométrique des granulés influence très peu le volume des pores ouverts après frittage, et ce quelle que soit la pression de mise en forme du comprimé initial. Seule la distribution spatiale de la porosité ouverte est modifiée par la taille des granulés. Ce résultat a également été vérifié pour des granulés consolidés thermiquement (Figure 4.34).

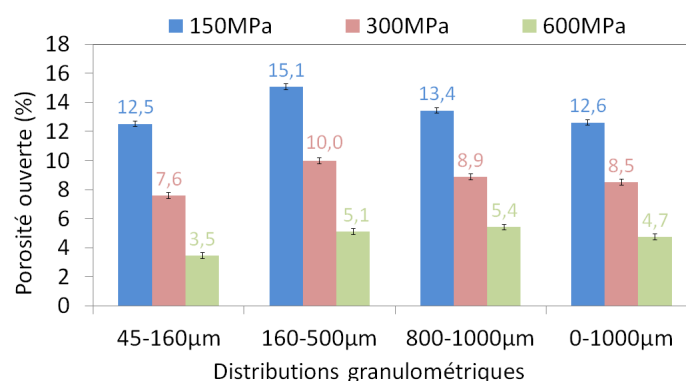


Figure 4.34 – Porosité ouverte de pastilles de granulés GC1000 de distribution granulométrique différente, mises en forme à 150, 300 et 600 MPa.

Enfin, il est alors possible de fabriquer des compacts manipulables de particules fragiles, sans ajout d'éléments organiques, qui possèdent un taux de porosité ouverte qui peut atteindre jusqu'à 10% en volume après frittage.



# Conclusion et perspectives

L'objectif des travaux de thèse présentés dans ce mémoire était d'étudier la relation entre la microstructure d'un empilement de particules fragiles, nommées granulés, compacté par pressage uniaxial et la porosité ouverte après frittage. Pour suivre in-situ l'évolution de l'empilement granulaire, nous avons mis en œuvre la technique par émission acoustique car la rupture fragile d'un matériau s'accompagne de la propagation d'une onde élastique qu'il est possible d'acquérir à l'aide d'un capteur piézoélectrique. Une première analyse du système dans son ensemble, *i.e.* le matériau, la machine de compression et l'environnement, a montré que les phénomènes produisant des ondes élastiques étaient très nombreux. De plus, la compacité du lit de granulés évoluant au cours de l'essai, la propagation des ondes en son sein évolue également.

Partant de ce constat, la méthodologie retenue a été de travailler sur un système d'apparence simple, puis d'augmenter sa complexité pour arriver à un lit de granulés. Ainsi, nous avons commencé par étudier la fragmentation d'un granulé isolé afin de caractériser la forme de l'onde produite par la rupture d'une particule fragile. Nous avons ensuite caractérisé la rupture par essai brésilien d'un compact massif, sur lequel nous avons positionné préalablement le capteur piézoélectrique afin d'évaluer l'influence de la propagation des ondes dans la structure de la machine de compression sur le signal reçu. Enfin, nous avons considéré le système réel, à savoir un lit de granulés dont la compacité évolue par fragmentations et réarrangements successifs des particules. En dernier lieu, nous avons tenté de relier la porosité ouverte observée après frittage à des paramètres tels que la contrainte de mise en forme, la répartition granulométrique et la cohésion des granulés, qui influencent la microstructure des ébauches crues et leur solidité.

A la rupture d'un granulé, il se produit une onde élastique dont le signal associé reçu par le capteur piézoélectrique est caractérisé par un temps de montée rapide (inférieur à 100  $\mu$ s) et une décroissance plus lente pouvant s'étendre sur plusieurs millisecondes. Ce signal discret est nommé salve. Les paramètres de cette salve en termes d'amplitude, d'énergie, de durée et de fréquence notamment, dépendent non seulement des caractéristiques du granulé (taille, cohésion), et également du « guide d'onde » qui permet à l'onde d'arriver au niveau du capteur piézoélectrique. Nous avons montré en particulier que la localisation du capteur par rapport au comprimé fragmenté influence fortement les caractéristiques de la salve. Alors que la quantification de cette fragmentation à partir de l'émission acoustique paraît dès lors difficile, la salve enregistrée lors d'une rupture garde toutefois la même allure générale. Ainsi, il est possible de suivre qualitativement l'évolution de la fragmentation d'un lit de granulés par le nombre et la forme des salves émises.

Lors de la compaction d'un lit de granulés, nous distinguons trois domaines sur le signal

d'émission acoustique brut. Tout d'abord, le milieu se densifie sous l'effet du déplacement du poinçon sans qu'il soit détecté une émission acoustique du fait de la forte porosité du milieu. La force appliquée est très faible et l'augmentation de la compacité procède essentiellement par réarrangements. Les premiers signaux sont ensuite enregistrés lorsque la contrainte appliquée au milieu granulaire diminue rapidement. Nous avons associé ces premières salves au début de la fragmentation des granulés qui définit alors le début du deuxième domaine. Sur ce dernier, l'amplitude du signal augmente d'autant plus rapidement que les granulés sont cohésifs ou que leur diamètre moyen est grand. Par ailleurs, l'analyse fréquentielle du signal montre que les fréquences sont comprises entre environ 90 kHz et 300 kHz et le signal peut être discrétisé en salves dont la forme est majoritairement celle rencontrée lors de la rupture d'un seul granulé. Enfin, l'amplitude diminue fortement à partir d'une contrainte appliquée qui dépend, entre autres, de la cohésion et de la taille moyenne des granulés. C'est le début du troisième domaine. Les signaux discrets sont moins nombreux et leur forme d'onde est en moyenne différente de celle observée dans le deuxième domaine.

Compte tenu du large spectre fréquentiel observé, nous avons procédé à la discrétisation automatique du signal brut afin de l'étudier par des analyses monoparamètres et multiparamètres. Ces analyses ont permis d'étudier les paramètres d'amplitude, de durée, de nombre de coups, d'énergie et de fréquence de chacune des salves discrétisées dans le but de dissocier les salves provenant de la fragmentation de celles générées par les frottements et autres sources extérieures au lit de granulés. Ces analyses ont permis de suivre qualitativement la compaction des granulés mais les paramètres de salves se sont avérés insuffisants pour la dissociation des deux mécanismes de compaction. N'ayant pas comme objectif initial de développer un traitement spécifique du signal, nous avons choisi de nous baser sur la forme caractéristique de la salve acquise lors de la rupture d'un seul granulé pour suivre les fragmentations lors de la compaction d'un lit de granulés. Ce choix proscrit toutefois une exploitation quantitative du signal. En effet, la définition au préalable des paramètres de forme tels que la durée maximale et le temps de montée, se base sur une salve définie par le logiciel qui peut en contenir plusieurs en réalité. Par ailleurs, le nombre de fragmentations pouvant être très élevé dans un temps très court, nous nous trouvons à la limite des cadences d'acquisition du logiciel utilisé et celui-ci ne permet pas de retraiter a posteriori le signal enregistré. La discrétisation du signal en salves est concomitante à son acquisition.

Ainsi, il est possible de suivre qualitativement l'évolution de la fragmentation d'un lit de granulés en suivant le nombre et la forme des salves émises mais le dénombrement des fragmentations est sujet à caution.

L'observation de la microstructure de compacts fabriqués à différentes contraintes a permis de confirmer par émission acoustique le début et la fin de la fragmentation. Quelques fragmentations supplémentaires se produisent très certainement au-delà, mais elles sont peu nombreuses en participant de manière minoritaire à la densification du compact et/ou trop peu énergétiques pour être détectées par EA. Ainsi, même si les caractéristiques des ondes sont modifiées au sein du milieu granulaire et lors de leur propagation dans la structure jusqu'au capteur, il est tout de même possible de déterminer par émission acoustique le domaine de fragmentation des granulés.

L'emploi de particules fragiles permet de faire varier le taux de porosité ouverte après frittage

entre 0% et environ 50% suivant leur cohésion et la contrainte appliquée lors de la mise en forme. Pour obtenir une porosité ouverte nulle après frittage, l'adhésion entre deux granulés doit être supérieure à l'adhésion entre les particules composant les granulés. Par exemple, les granulés obtenus par compactage d'une poudre à 600 MPa conduisent à une porosité ouverte de 1% après mise en forme à la même contrainte, *i.e.* 600 MPa. Une porosité ouverte d'environ 50% peut être obtenue mais le compact est très fragile et il n'est pas envisageable qu'il soit manipulé sur une chaîne de fabrication. Les comprimés deviennent suffisamment solides pour des contraintes de mise en forme supérieures à la contrainte de fin de fragmentation. Dans ce cas, la porosité ouverte mesurée après frittage est inférieure à 10%. Autrement dit, il est possible de fabriquer des pastilles possédant 10% de porosité ouverte en modulant la cohésion des particules et la contrainte de mise en forme des compacts. Bien entendu, la microstructure des pastilles va dépendre de la microstructure de l'empilement granulaire des compacts. Pour un même taux de porosité ouverte, celle-ci peut être répartie différemment suivant les caractéristiques des granulés.

Il est évident que la mise en œuvre de sphérules, telle que prévue dans l'une des options de fabrication des combustibles contenant des actinides mineurs, va quelque peu modifier la microstructure des pastilles par rapport à celle observée avec les granulés polyédriques. Toutefois, le principe consistant à fabriquer de la porosité ouverte en jouant sur la cohésion de ces sphérules et la contrainte de mise en forme reste acquis.

L'émission acoustique qui est une technique simple à nucléariser, semble un outil précieux pour le suivi *in situ* de l'évolution de l'empilement granulaire, même si le signal n'a pas pu être quantifié. Précisons que des essais non reportés dans ce mémoire ont été réalisés en présence d'un capteur basse fréquence (10-70 kHz). Davantage de signaux sont détectés en début et fin de compaction. Ils peuvent être attribués aux frottements mais ils restent à les exploiter. Par ailleurs, une meilleure compréhension de la propagation des ondes au sein d'un milieu granulaire fragmentable en évolution est nécessaire. Pour ce faire, des techniques acoustiques actives à contraintes de compaction fixes pourraient apporter des indications sur l'effet de la fragmentation, de la taille et de la cohésion des granulés sur la propagation des ondes. Les éléments de réponse éventuels pourraient alors permettre d'adapter le traitement du signal acoustique.

Finalement, le suivi de la compaction par émission acoustique est envisageable à moyen terme, l'effort est aujourd'hui à porter sur le traitement du signal, et implicitement sur la compréhension de la propagation des ondes, et des phénomènes physiques sous-jacents, au sein d'un milieu granulaire fragile et en évolution continue.



# Table des figures

1.1	Illustration de la compacité au sein d'un matériau granulaire. . . . .	7
1.2	Patin sur un plan solide et forces normales et tangentielles associées à son mouvement. . . . .	8
1.3	Modèle Stick-Slip [11]. . . . .	9
1.4	Mesures simultanées du déplacement et de la vitesse de déplacement d'un morceau d'antenne (plectrum) contre un morceau de carapace et des signaux acoustiques induits, lors du mouvement « collé-glissé » [12]. . . . .	9
1.5	Réseaux de forces au sein de milieux granulaires sous charge : a) observation expérimentale des chaînes de force, formées suite à l'application d'une force de 200 N sur des billes de verre de 3 mm de diamètre, et révélées par biréfringence [18], b) mise en évidence des chaînes de forces normales de compression (en rouge) et des forces de traction (en bleu) au sein d'un échantillon numérique composé de particules consolidées non convexes, simulées par la méthode de dynamique des contacts [22]. . . . .	10
1.6	Modes de rupture. . . . .	11
1.7	Schéma de la rupture de la cohésion entre deux solides. . . . .	12
1.8	Schéma d'un essai brésilien et répartition des contraintes. . . . .	14
1.9	Particule cisailée par méthode DEM prenant en considération les frottements entre les particules élémentaires et les interactions particules-parois [39]. . . . .	15
1.10	Illustration des ruptures à la force $F_r$ de particules numérisées : a) particule sphérique non confinée ( $F_r = 1481$ N), b) particule irrégulière non confinée ( $F_r = 1176$ N), c) particule irrégulière confinée [38]. . . . .	15
1.11	Cisaillement d'une seule particule sphérique de $(Th,U)O_2$ obtenue par le procédé sol-gel [41]. . . . .	16
1.12	Illustration des étapes de compaction uniaxiale. . . . .	17
1.13	Types de rupture d'une particule élémentaire [58]. . . . .	20

1.14	Mise en évidence des modes de rupture d'agglomérats par simulation numérique [39] : a) fragmentation partielle, b) fragmentation en grands morceaux, c) fragmentation totale (Le niveau de teinte représente le degré de dégradation : foncé = le moins endommagé, clair = le plus endommagé) [39]. . . . .	21
1.15	Modélisation de la compaction de particules fragmentables de quelques centaines de micromètres : a) proportion des particules fragmentées $P_b$ en fonction de la contrainte normalisée pour différentes contraintes de cohésion interne $\sigma_c$ , b) compacité en fonction de la contrainte normalisée pour différentes contraintes de cohésion [39]. . . . .	22
1.16	a) Evolution du nombre de contacts avec l'application de la force $f/f_0$ , b) distribution des contacts glissants (un contact est un point noir) à la force $f/f_0 = 2, 15$ , c'est-à-dire juste avant le début de la fragmentation des particules [8]. . . . .	23
1.17	Forces appliquées et transmises lors de la compaction d'un lit de poudre. . . . .	25
1.18	Gradients de densité dans un comprimé numérisé [83]. . . . .	25
1.19	Principaux défauts observés suite au pressage uniaxial de matériaux granulaires : (a) décalottage en forme de disque ( <i>end capping</i> ), (b) cassure des angles, (c) délamination, (d) fentes verticales [83]. . . . .	26
1.20	Evolution de la densité relative au cours des étapes de densification en condition isotherme [91]. . . . .	26
1.21	Illustration de la formation de ponts et du comblement des espaces libres par les plus petites particules [51]. . . . .	28
1.22	Micrographies MEB d'une pastille frittée constituée de sphères de $(\text{Th,U})\text{O}_2$ fabriquées par le procédé sol-gel et calcinées à 650°C [41]. . . . .	29
1.23	Types d'émission acoustique [116]. . . . .	34
1.24	Principaux paramètres mesurés en temps réel sur une salve d'EA. . . . .	35
1.25	Signal ultrasonore ayant traversé des billes de verres de taille 400-800 $\mu\text{m}$ contraintes à 0,75 MPa dans un cylindre de diamètre interne 30 mm et de hauteur 35 mm : a) amplitude (en Volts) en fonction du temps, b) spectre fréquentiel des signaux (E), (S) et du signal source [106]. . . . .	37
1.26	Fonction de transfert acoustique au sein d'un empilement sous contrainte de billes de verres de 700 $\mu\text{m}$ de diamètre – Mise en évidence de trois bandes de fréquences associées respectivement aux billes, au fluide et à la diffusion multiple des ondes [110]. . . . .	38
1.27	Frittage d'un empilement de billes de PMMA sous contrainte statique $P \approx 500$ kPa : a) évolution de la célérité de l'onde de compression $C_P$ en fonction du retrait $\delta h$ au cours des stades I, II et III ( <i>cf.</i> §1.2.4, p.26), b) signaux des ondes propageant dans l'empilement (a) avant frittage, (b) après frittage [121]. . . . .	40



1.28	Essai de flexion 3 points sur un barreau de verre poreux fritté dont la taille moyenne des grains est de 45 $\mu\text{m}$ : a) courbe charge-déplacement (load-deflection) corrélée au nombre d'évènements d'EA par seconde, b) micrographie MEB de la surface de rupture de l'éprouvette mettant en évidence les stades d'avancement de la fissuration [140]. . . . .	41
1.29	Signal discret émis par une rupture [143]. . . . .	42
1.30	Réarrangements de deux couches de billes de verre par cisaillement d'une plaque à vitesse constante et acquisition d'EA : a) dispositif expérimental, b) corrélation des micro-glissements avec l'EA : (haut) contrainte de cisaillement imposée par la plaque en fonction du temps, (bas) taux de micro-glissements ( <i>microslips event rate</i> ) et taux d'EA due aux évènements précurseurs ( <i>AE precursor event rate</i> ) [152].	43
1.31	EA représentée en tension efficace $V_{rms}$ lors de la compression jusqu'à 400 MPa d'une poudre d' $\text{UO}_2$ (voie humide) [161]. . . . .	45
1.32	Compaction de grains de sable cohésifs de taille 600-850 $\mu\text{m}$ : évolution de la contrainte et du facteur de fragmentation d'Hardin [173] (haut), de l'amplitude normalisée du signal EA (milieu), et du nombre de coups cumulés (bas), en fonction du temps (figure modifiée) [171]. . . . .	47
1.33	Densité spectrale de puissance d'un signal d'EA enregistré lors de la compaction de grains de sable : a) les plus cohésifs, b) les moins cohésifs [171]. . . . .	47
1.34	Compaction de poudre d'aspirine jusqu'à 300 MPa : a) évolution du nombre cumulé de coups, b) évolution de la surface spécifique apparente. . . . .	48
1.35	Compression de grains de sable arrondis de taille 500-560 $\mu\text{m}$ jusqu'à environ 10 MPa et nombre de coups en fonction du temps [96]. . . . .	49
2.1	Illustration de la formation des pores au sein de pastilles d' $\text{UO}_2$ : (a) présence d'espaces vides entre les particules, (b) légère expansion des pores due à la densification initiale des particules sur elles-mêmes, (c) densification des particules entre elles, (d) présence des pores lamellaires (interconnectés) [193]. . . . .	53
2.2	Diagramme de phase binaire O-U ( $1,9 < \text{O/U} < 2,4$ ) proposé par Higgs et al. [201].	56
2.3	Structure type fluorine du dioxyde d'uranium $\text{UO}_2$ . . . . .	56
2.4	Morphologie des poudres d' $\text{UO}_2$ . . . . .	59
2.5	Figure 41 - Granulés d' $\text{UO}_2$ (160-500 $\mu\text{m}$ , $\sigma_g = 600$ MPa). . . . .	60
2.6	Distribution granulométrique d'un lot de granulés G0-1000 $\mu$ déterminée par tamisage ( $d_{50} = 600$ $\mu\text{m}$ ). . . . .	61
2.7	Distribution granulométrique des granulés G160-500 $\mu$ mesurée par granulométrie laser ( $d_{50} = 340$ $\mu\text{m}$ ). . . . .	61

2.8	Micrographie de la surface de granulés : a) consolidés à 1200°C, b) non consolidés thermiquement. . . . .	62
2.9	a) Evolution de la masse volumique des granulés consolidés thermiquement en fonction de la température réelle de traitement, b) évolution de la surface spécifique apparente des granulés consolidés thermiquement. . . . .	63
2.10	Schéma de la presse uniaxiale instrumentée. . . . .	64
2.11	Compliance de la presse uniaxiale – Evolution de la déformation en fonction de la contrainte appliquée à la chaîne de mesure (bleu) et courbe de tendance (rouge pointillé). . . . .	65
2.12	Cycle de compression uniaxiale des granulés. . . . .	66
2.13	Evolution des contraintes appliquée, transmise et moyenne lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ avec une hauteur de chambre de 12 mm. . . . .	67
2.14	a) Dispositif de micro-compression de granulé d'UO <sub>2</sub> et fixation du capteur d'émission acoustique, b) fragmentation d'un granulé G160-500 $\mu$ . . . . .	68
2.15	Photo et schéma du dispositif de cisaillement d'un comprimé lors d'un essai brésilien. . . . .	68
2.16	Schéma de la chaîne d'émission acoustique. . . . .	69
2.17	Principe du capteur piézoélectrique $\mu$ 30 (Mistras®) de diamètre 10 mm. . . . .	69
2.18	Localisations possibles du capteur EA sur la presse uniaxiale. . . . .	70
2.19	Méthode de vérification du couplage. . . . .	71
2.20	Exemple de deux fenêtres d'échantillonnage a) salve plus courte que la fenêtre d'échantillonnage, b) salve plus longue que la fenêtre d'échantillonnage. . . . .	73
2.21	Pré-déclenchement de 50 $\mu$ s de la salve de la Figure 2.20a. . . . .	74
2.22	Fenêtres temporelles glissantes : PDT, HDT, HLT. . . . .	74
2.23	Choix des paramètres temporels appliqués aux signaux émis au cours de la compaction de granulés d'UO <sub>2</sub> . . . . .	75
2.24	Cassé de mine sur la surface du capteur EA. . . . .	76
2.25	Influence de la durée de la fenêtre d'échantillonnage $d_f$ sur les caractéristiques du signal d'un cassé de mine : a,b) $d_f = 1000 \mu$ s, c,d) $d_f = 100 \mu$ s. . . . .	77
2.26	Salve caractéristique d'un cassé de mine sur le poinçon supérieur, le capteur EA étant fixé sur le poinçon supérieur $\phi 10$ . . . . .	77
2.27	Bruit de fond enregistré avec un seuil de détection de 15 dB. . . . .	78
2.28	Schéma des éléments influençant la propagation des ondes depuis la source (fragmentation/réarrangement) jusqu'au système d'acquisition des données. . . . .	78

3.1	Evolution des contraintes appliquées et transmises et du déplacement du poinçon supérieur lors d'un essai complet de mise en forme (granulés G160-500 $\mu$ ). . . . .	83
3.2	Micrographie de comprimés de granulés G160-500 $\mu$ compactés à : a) 5 MPa, b) 300 MPa. . . . .	83
3.3	Emission acoustique acquise lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés G160-500 $\mu$ . . . . .	84
3.4	Cisaillement par essai brésilien d'un granulé G160-500 $\mu$ : a) formation d'une seule fissure, b) formation de plusieurs fissures en simultané. . . . .	85
3.5	Cisaillement de granulés G160-500 $\mu$ : a) évolution de la charge en fonction du déplacement du poinçon supérieur, b) valeurs des charges et déplacements pour les 20 écrasements. . . . .	86
3.6	Essais brésiliens sur des comprimés équivalents à des granulés G160-500 $\mu$ : a) évolution de la charge en fonction du déplacement du poinçon supérieur, b) valeurs des charges et déplacements pour les 10 essais. . . . .	87
3.7	Comprimé de poudre mis en forme à 600 MPa et cisailé lors d'un essai brésilien : a) photo de la division du comprimé en trois morceaux, b)c) faciès de rupture à différentes échelles. . . . .	87
3.8	Représentation schématique du parcours des ondes élastiques depuis la source (fragmentation du granulé) jusqu'au capteur EA au sein du dispositif de micro-compression. . . . .	89
3.9	Salve acquise au moment de la rupture du granulé n° 8 avec le dispositif de micro-compression. . . . .	89
3.10	Représentations fréquentielles de la salve acquise au moment de la rupture du granulé n° 8 avec le dispositif de micro-compression : a) Transformée de Fourier Rapide, b) représentation temps-fréquence. . . . .	90
3.11	Salves acquises au moment de la multi-fissuration du granulé n° 4 sur le dispositif de micro-compression. . . . .	90
3.12	Schéma du dispositif de la presse uni-axiale lors d'un essai brésilien sur un granulé et du cheminement de l'onde. . . . .	91
3.13	Courbe de charge lors d'un essai brésilien d'un granulé réalisé sur la presse uniaxiale. . . . .	91
3.14	Salves caractéristiques enregistrées au moment de la rupture d'un granulé à l'aide de : a) la presse uniaxiale, b) la machine de micro-compression. . . . .	92
3.15	Capteur EA fixé sur un comprimé pendant un essai brésilien à 0,01 mm/s. . . . .	92
3.16	Schéma du dispositif d'essai brésilien sur les comprimés et positionnement du capteur EA sur le poinçon (gauche) et sur le comprimé (droite). . . . .	93

3.17	Courbes de charge-déplacement de deux comprimés de granulés G160-500 $\mu$ mis en forme à 300 MPa : pour l'un le capteur est placé sur le poinçon supérieur, pour l'autre le capteur est directement placé au contact du comprimé. . . . .	93
3.18	Salves lors de la rupture d'un comprimé pendant un essai brésilien : a) capteur EA placé sur le poinçon supérieur, b) capteur EA fixé sur le comprimé. . . . .	94
3.19	Dispersion des valeurs d'amplitude maximale et de temps de montée des salves acquises au moment de la rupture par essais brésiliens des granulés G160-500 $\mu$ . . . . .	94
3.20	Essais brésiliens des granulés G160-500 $\mu$ : a) évolution de l'amplitude maximale des salves en fonction de la charge à rupture du granulé, b) évolution de l'énergie absolue des salves en fonction de la charge à rupture. . . . .	95
3.21	Essais brésiliens des granulés G160-500 $\mu$ sur la machine de micro-compression : a) fréquences identifiées par analyse temps-fréquence des salves émises lors de la rupture des granulés (essais n°1 à n°19), b) variation de la position et du couplage du capteur EA. . . . .	96
3.22	Signaux continus bruts acquis lors : a,c) de la compression de granulés G160-500 $\mu$ , b,d) d'un essai de compliance. . . . .	97
3.23	Signal acquis lors de la descente du poinçon supérieur en dehors de la matrice puis le long des parois de la matrice. . . . .	98
3.24	Signal acquis lors d'un essai de compliance en matrice $\phi 10$ . . . . .	99
3.25	Exemple du signal acquis lors de la compaction en l'absence de lubrification des parois de la matrice. Pour cet exemple, la pression appliquée est d'environ 65 MPa.100	
3.26	Signal acquis au début de la compaction des granulés « zone 1 ». . . . .	101
3.27	Distributions granulométriques des granulés 45-160 $\mu$ compactés de 0 à 16,4 MPa en matrice $\phi 25$ . . . . .	102
3.28	Micrographies de granulés G45-160 $\mu$ : a) non compactés, b)c)d) compactés. . . . .	102
3.29	Emission acoustique des réarrangements de granulés G45-160 $\mu$ compactés jusqu'à 0,05 MPa à la vitesse de 0,01 mm/s et contrainte appliquée en fonction du temps et de la densité du lit de granulés. . . . .	103
3.30	Exemple de signal acquis au moment de la diminution nette de la contrainte à la densité 0,288. . . . .	104
3.31	Salve assimilée à un signal continu tronqué, observée lors de la compaction des granulés G45-160 $\mu$ jusqu'à 0,05 MPa. . . . .	104
3.32	Signal acquis lors de la compaction des granulés jusqu'à 180 MPa (zone 2). . . . .	105
3.33	Zoom sur les zones « a », « b » et « c » de la Figure 3.32. . . . .	105
3.34	Signal acquis lors de la compaction des granulés au-delà de 180 MPa (zone 3). . . . .	106

3.35	a) Signal issu de la Figure 3.33b représenté entre 5,923 et 5,930 s, b) Signal de la rupture du granulé n°8 avec le dispositif de micro-compression ( <i>cf.</i> §2.3.2.1, p.67).	107
3.36	Signaux représentés dans l'espace temps-amplitude lors de la compression de granulés G160-500 $\mu$ : a) déplacement du poinçon supérieur et zones définies entre A et E, b) contrainte appliquée et salves identifiées par des marqueurs verts. . . . .	107
3.37	Forme d'onde des salves acquises lors de la compression des granulés G160-500 $\mu$ et identifiées sur la Figure 3.36b. . . . .	108
3.38	Salves acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ représentées en : a) durée, b) énergie absolue, c) nombre de coups, d) fréquence centroïde. . . . .	110
3.39	Nombre cumulé de coups des salves acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ . . . . .	111
3.40	Influences de la géométrie de la matrice de diamètre $\phi$ sur l'EA : évolution du nombre de salves acquis lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ jusqu'à la densité $\rho$ : a) en fonction de la masse de granulés, b) en fonction de la surface de l'interface entre le lit de granulés et les parois de la matrice, pour $\rho=0,4$ . . . . .	112
3.41	a) Schéma de la presse uniaxiale précisant les positions du capteur EA et les hauteurs des comprimés ayant atteint une densité de 0,4 puis 0,6, b) évolution du nombre de salves en fonction de la masse de granulés versés dans la matrice $\phi 10$ de hauteur de chambre $h$ pour 3 positions différentes du capteur EA. . . . .	113
3.42	Influence de la vitesse de compression sur l'émission acoustique : évolution du nombre de salves acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ jusqu'à la densité $\rho$ . . . . .	114
3.43	Signaux assimilés à une seule salve lors de la compaction des granulés G160-500 $\mu$ pour une vitesse de compression de : a) 1 mm/s, b) 0,05 mm/s. . . . .	115
3.44	Evolution du nombre de salves moyen par seconde en fonction de la vitesse de compression de granulés G160-500 $\mu$ . . . . .	115
3.45	Familles de salves déduites de l'analyse en composantes principales des données d'EA acquises lors de la compaction de granulés G160-500 $\mu$ à la vitesse de compression 0,1 mm/s : a) représentation 3D dans un espace non physique, b) représentation des salves en amplitude au cours de la compaction. . . . .	116
4.1	Compaction de granulés G160-500 $\mu$ : a) évolution de la contrainte appliquée en fonction de la masse volumique à la fin du palier et après éjection des comprimés, b) relation entre le rebond volumique et la contrainte de mise en forme. . . . .	121

4.2	Evolution de la porosité en fonction de la contrainte appliquée - La porosité globale est calculée à partir de la masse volumique du compact par rapport à la masse volumique théorique de l'UO <sub>2</sub> (10,96 g/cm <sup>3</sup> ), et la porosité entre les granulés est calculée à partir de la masse volumique du compact par rapport à la masse volumique des granulés (6,49 g/cm <sup>3</sup> ), <i>i.e.</i> en faisant l'hypothèse que les granulés sont incompressibles. . . . .	121
4.3	Porosimétrie mercure des comprimés de granulés G160-500 $\mu$ mis en forme à 20, 60, 100, 200, 400 et 600 MPa : a) mesure du volume total de mercure intrus dans les pores, b) calcul de la différence entre le volume total intrus et le volume intrus pour un diamètre donné. . . . .	122
4.4	Micrographies de comprimés crus de granulés G160-500 $\mu$ compactés à : a) 5 MPa, b) 20 MPa, c) 60 MPa, d) 100 MPa, e) 300 MPa, f) 600 MPa. . . . .	123
4.5	Evolution du nombre de granulés par mm <sup>2</sup> en fonction de leur taille à deux pressions de mise en forme (5 et 60 MPa). . . . .	124
4.6	Pastille frittée de granulés obtenus à une pression de granulation de 400 MPa et mis en forme à 600 MPa : observation d'un granulé non ou peu fragmenté. . . . .	124
4.7	Tenue mécanique déterminée par essais brésiliens de comprimés de granulés G160-500 $\mu$ : a) contrainte à rupture de tous les essais et valeur moyenne obtenue par statistique de Weibull, b) évolution de la contrainte à rupture moyenne obtenue par statistique de Weibull des comprimés en fonction de leur contrainte de mise en forme ( $m$ : module de Weibull). . . . .	125
4.8	Comprimés cisailés par essais brésiliens : a) formation d'un méplat menant à la rupture du comprimé en 3 morceaux, b) fissure nette du comprimé dans le sens de l'application de la charge. . . . .	125
4.9	Evolution de la porosité ouverte de pastilles de granulés G160-500 $\mu$ en fonction de leur contrainte de mise en forme. . . . .	126
4.10	Micrographies de coupes de pastilles à porosité ouverte $\varepsilon$ composées de granulés G160-500 $\mu$ - Influence de la contrainte de mise en forme. . . . .	126
4.11	Densification jusqu'à 600 MPa de quatre lots de granulés de distribution granulométrique différente (les croix correspondent aux masses volumiques de remplissage).127	
4.12	Emission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés de distribution granulométrique : a) 45-160 $\mu$ m, b) 160-500 $\mu$ m, c) 0-1000 $\mu$ m, d) 800-1000 $\mu$ m. . . . .	129
4.13	Evolution de la contrainte et de la densité de fin des EA en fonction du diamètre moyen des lots de granulés. . . . .	130

4.14	Densification sur l'intervalle de densités 0,30 - 0,60 de granulés de distributions granulométriques différentes : a) évolution de l'amplitude maximale de toutes les salves acquises en fonction du diamètre moyen des quatre lots de granulés, b) distribution des amplitudes de salves. . . . .	130
4.15	Porosité ouverte de pastilles réalisées à partir de différentes tranches granulométriques de granulés et mises en forme à 150, 300 ou 600 MPa. . . . .	131
4.16	Micrographies de pastilles frittées mises en forme à 300 MPa – Distribution de la porosité ouverte pour des granularités différentes. . . . .	132
4.17	Cisaillements par essai brésilien de granulés GC1000 à l'aide de la machine de micro-compression ( <i>cf.</i> §2.3.2.1, p.67) - Courbes de charge et photos des granulés fissurés : a,c) fissure visible au 3 <sup>ème</sup> saut de charge, b,d) rupture nette du granulé au 1 <sup>er</sup> saut de charge. . . . .	133
4.18	Evolution de la charge à rupture des granulés en fonction de leur température de consolidation. . . . .	133
4.19	Evolution de la contrainte à rupture des granulés en fonction de leur température de consolidation. . . . .	134
4.20	Paramètres de la salve émise au moment de la rupture en fonction de la contrainte à rupture des granulés : a) amplitude, b) durée. . . . .	135
4.21	Densification jusqu'à 600 MPa des granulés non consolidés (G160-500 $\mu$ ) et consolidés thermiquement (GC600, GC800, GC1000, GC1100) : a) masse volumique et contrainte moyenne, b) densité relative calculée en considérant la masse volumique des granulés et contrainte normalisée par rapport à la contrainte à rupture des granulés. . . . .	136
4.22	Emission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés : a) non consolidés G160-500 $\mu$ , b) GC600, c) GC800, d) GC1000, e) GC1100 . . . . .	137
4.23	Distribution des amplitudes de salves lors de la compaction de granulés non consolidés (G160-500 $\mu$ ) et consolidés thermiquement (GC800, GC1000, GC1100) sur un intervalle de densités du compact comprises entre 0,27 et 0,50. . . . .	138
4.24	Evolution de la contrainte moyenne de fin d'EA en fonction de la contrainte à rupture des granulés cohésifs. . . . .	139
4.25	a) Dispersion des valeurs de contrainte à rupture de comprimés mis en forme à 300 MPa et cisailés par essais brésiliens, b) évolution de la contrainte à rupture de comprimés crus constitués de granulés G160-500 $\mu$ , GC800 et GC1000, en fonction de leur contrainte de mise en forme. . . . .	139

4.26	Pastilles de granulés G160-500 $\mu$ et GC1000 : a) évolution de la porosité ouverte en fonction de leur contrainte de mise en forme, b) évolution de la porosité ouverte en fonction de leur contrainte à rupture, pour 2 contraintes de mise en forme (150 et 300 MPa). . . . .	140
4.27	Micrographies de coupes de pastilles à porosité ouverte $\varepsilon$ mises en forme à 150 et 600 MPa : influence de la cohésion des granulés $\sigma_{rupt}$ . . . . .	141
4.28	Distribution, mesurée par porosimétrie mercure, de la taille des pores des pastilles de granulés G160-500 $\mu$ et GC1000, mises en forme à 150 MPa. . . . .	142
4.29	Fréquence centroïde des salves d'émission acoustique et courbe de densification lors de la compaction jusqu'à 600 MPa de granulés : a) GC1000, b) GC1100. . .	143
4.30	Contraintes de fin d'EA placées sur les courbes reliant la tenue mécanique des comprimés de granulés de cohésions différentes à leur contrainte de mise en forme. . . . .	144
4.31	Contraintes de fin d'EA placées sur les courbes reliant la porosité ouverte des comprimés de granulés de cohésions différentes à leur contrainte de mise en forme. . . . .	145
4.32	Evolution de la porosité ouverte de pastilles de granulés G160-500 $\mu$ et GC1000 en fonction de la contrainte de mise en forme : deux conditions possibles pour fabriquer une pastille présentant une porosité ouverte d'environ 10%. . . . .	146
4.33	Evolution de la porosité ouverte de pastilles mises en forme à 150 et 600 MPa, en fonction de la contrainte à rupture $\sigma_{rupt}$ des granulés. . . . .	146
4.34	Porosité ouverte de pastilles de granulés GC1000 de distribution granulométrique différente, mises en forme à 150, 300 et 600 MPa. . . . .	147
A.1	Représentation de l'équation de Heckel [231]. . . . .	165
B.1	Allure du profil de pression $P$ dans un milieu granulaire en fonction de sa hauteur $Z$ [232]. . . . .	167
B.2	Notation du modèle de Janssen. . . . .	168
D.1	Valeurs expérimentales de contrainte à rupture de comprimés d'UO <sub>2</sub> : a) Détermination du module de Weibull $m$ qui correspond à la pente de la droite, b) Loi de Weibull . . . . .	171
F.1	Etapes de la classification non supervisée . . . . .	175



# Liste des tableaux

1.1	VITESSE DE PROPAGATION DES ONDES DE COMPRESSION DANS DES MILIEUX DE MASSES VOLUMIQUES DIFFÉRENTES [114] . . . . .	32
1.2	ETUDES RELATIVES AU SUIVI PAR EA DE LA COMPACTION DE MATÉRIAUX GRANULAIRES COHÉSIFS ET FRAGMENTABLES . . . . .	44
2.1	MODULE D'YOUNG ET VITESSE DE PROPAGATION, CALCULÉS À PARTIR DES FRÉQUENCES DE RÉSONANCE MESURÉES DANS DES DISQUES D'UO <sub>2</sub> . . . . .	58
2.2	DIAMÈTRE MOYEN ET ÉTALEMENT DES LOTS DE GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES . . . . .	62
2.3	MASSE VOLUMIQUE DES GRANULÉS CONSOLIDÉS THERMIQUEMENT . . . . .	63
2.4	CARACTÉRISTIQUES DES CAPTEURS DE FORCE KISTLER® . . . . .	65
2.5	VALEURS TYPES DES PARAMÈTRES TEMPORELS POUR DES TESTS GÉNÉRAUX [220] . . . . .	75
3.1	COMPARATIF DES RÉSULTATS ENTRE LES ESSAIS BRÉSILIENS EFFECTUÉS SUR DES GRANULÉS ET LES COMPRIMÉS ASSIMILÉS À DES GRANULÉS MACROSCOPIQUES (MOYENNES ET ÉCARTS-TYPES) . . . . .	88
3.2	SOURCES DES ÉMISSIONS POTENTIELLES, AUTRES QUE LA COMPACTION DES GRANULÉS . . . . .	98
4.1	DENSITÉS MESURÉES LORS DE LA COMPACTION DE GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES . . . . .	127
4.2	DENSITÉS ET CONTRAINTE DE DÉBUT ET DE FIN D'ACQUISITION DES ÉMISSIONS ACOUSTIQUES POUR DES GRANULÉS DE DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DIFFÉRENTES . . . . .	128
4.3	DENSITÉS MESURÉES LORS DE LA COMPACTION DE GRANULÉS DE COHÉSIONS DIFFÉRENTES . . . . .	135



## Annexe A

# Lois empiriques de compressibilité

Les lois empiriques qui décrivent le procédé de compaction relient la fraction volumique  $\phi$  à la pression  $p$  imposée. La loi de Heckel [231] est couramment utilisée pour modéliser les données de compression. Elle stipule que la compressibilité est proportionnelle à la porosité du matériau, soit la place libre qu'il reste à l'empilement granulaire pour se compacter, avec  $K$  le coefficient empirique de Heckel (en  $MPa^{-1}$ ), dépendant de la poudre.

$$\frac{d\phi}{dP} = K(1 - \phi) \quad (\text{A.1})$$

L'intégration de cette expression donne la loi de densification de Heckel, avec  $A$  la constante d'intégration, liée à la densité du lit de poudre en fin de réarrangements :

$$\ln\left(\frac{1}{1 - \phi}\right) = KP + A \quad (\text{A.2})$$

Le modèle de Heckel permet une bonne représentation du comportement aux fortes pressions (au-delà de 200 MPa) mais ne permet pas de décrire les faibles pressions appliquées. Le tracé de  $\ln\left(\frac{1}{1 - \phi}\right)$  en fonction de la pression est illustré sur la Figure B.1.

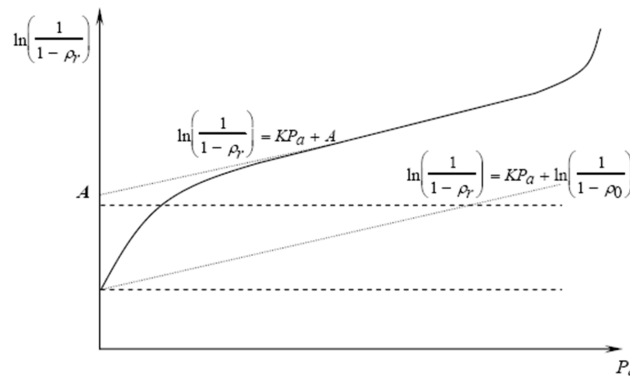


Figure A.1 – Représentation de l'équation de Heckel [231].

Heckel a proposé que la première partie non linéaire de la courbe, aux faibles pressions, soit attribuée au réarrangement des particules avant qu'elles aient des liaisons interparticulaires. La

partie linéaire de la courbe observée pour une gamme de pressions intermédiaires a été attribuée aux déformations plastiques. Un écart avec la loi de Heckel est également observé lorsqu'on s'approche de la compaction maximale.

Du même type d'équation que celle de Heckel, l'équation de Kawakita [233] est souvent utilisée pour caractériser les milieux granulaires contraints à de faibles pressions et possédant de grandes porosités. Elle est donc souvent appliquée dans le cas de tassement et de densification par vibration (porosité importante).

## Annexe B

# Description des modèles de Janssen et de Thompson

### Modèle de Janssen

Une distribution hétérogène des contraintes a été observée par Janssen en 1895 à partir du remplissage de maïs dans un silo. Il a observé que, contrairement à ce qui se passe pour un liquide, la pression sature lorsqu'une masse de plus en plus grande de maïs est versée dans le silo : la pression mesurée au fond ne dépend pas de la hauteur du remplissage.

Plus récemment, Restagno [232] a suivi le poids d'une colonne de bille de verre dans un tube en plastique, et a également noté cette saturation de pression (Figure 146) : à partir d'une certaine quantité de billes ajoutées, le poids de la colonne reste le même. La saturation observée provient de l'effet d'écrantage induit par les frottements aux parois. Une partie du poids du milieu granulaire n'est pas supportée par le fond mais par les parois latérales.

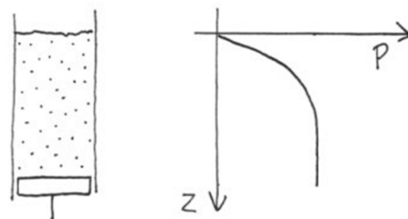


Figure B.1 – Allure du profil de pression  $P$  dans un milieu granulaire en fonction de sa hauteur  $Z$  [232].

Observant la propension marquée des milieux granulaires à rediriger les contraintes verticales vers les parois latérales et dans l'esprit du modèle simple évoqué ci-dessus, Janssen a proposé de traiter le milieu granulaire par tranches, en considérant des contraintes moyennes s'exerçant sur l'ensemble d'une couche d'altitude  $z$  donnée (Figure B.2). Précisons que le milieu granulaire, constitué de particules non cohésives, est considéré comme un milieu continu.

La contrainte axiale  $P_z$  appliquée à une hauteur  $z$  permet de mettre en évidence une transmission de l'effort exercée par la contrainte moyenne  $P_a$  appliquée le long de la paroi du moule, selon une loi exponentielle, et en fonction du coefficient de frottement  $\zeta$ , du diamètre du com-

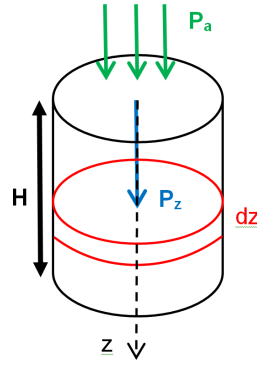


Figure B.2 – Notation du modèle de Janssen.

primé  $D$ , et du coefficient de proportionnalité  $\alpha$  entre la pression radiale  $\sigma_r$  et la pression axiale  $\sigma_a$  ( $\alpha = \sigma_r/\sigma_a$ ), appelé coefficient de transfert :

$$P_z = P_a \exp\left(-\frac{4\mu\alpha}{D} z\right) \quad (\text{B.1})$$

S'il n'y a pas de frottement au niveau de la paroi,  $\mu = 0$  et la contrainte à toute hauteur  $z$  est égale à la contrainte appliquée. Lorsque le coefficient de frottement augmente, la pression  $P_z$  diminue de manière exponentielle le long de l'axe de compression. Cette dissipation est entièrement due à la force de friction qui s'oppose aux parois de la matrice [234]. A partir de cette expression, il est alors possible de déterminer le coefficient de frottement  $\mu$ . Ce modèle de distribution des contraintes suppose qu'il n'y ait pas de variation de la contrainte dans la direction radiale, d'où le terme de « Modèle des tranches ».

### Modèle de Thompson

Thompson a développé un modèle mathématique reliant la répartition de densité aux phénomènes mis en jeu lors de la compression [235]. A partir des mesures expérimentales réalisées par Unckel [236], Thompson considère que la distribution radiale des contraintes axiales est parabolique et que la contrainte sur l'axe central du comprimé est constante. Il établit alors une équation de la contrainte axiale  $\sigma_z$  en fonction des variables radiales  $r$  et axiale  $z$ , avec  $r = R$  au niveau des parois de la matrice :

$$\sigma_z(r, z) = B\left(\frac{r^2}{R^2}\right) \exp\left(-\frac{4\mu\alpha}{D} z\right) + C\left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (\text{B.2})$$

Le premier terme de cette expression contient le même terme exponentiel que l'expression du Modèle de Janssen (Equation (B.2)). Le ratio  $\mu\alpha z/D$  influence alors ce terme exponentiel, avec  $z/D$  le rapport de la hauteur au diamètre, soit la géométrie du comprimé. Plus ce terme est élevé et plus les écarts de densité sont importants. Thompson met donc en évidence l'influence des propriétés de la poudre sur la distribution de densités dans le comprimé.

## Annexe C

# Paramètre acoustiques que le logiciel AEwin® extrait des salves

Paramètre	Unité	Définition
Amplitude	dB	Amplitude maximale atteinte par le signal
Nombre de coups	-	Nombre de franchissements du seuil de détection par le signal sur toute sa durée
Nombre de coups au pic	-	Nombre de franchissement de seuil par le signal entre le premier dépassement de seuil et l'amplitude maximale
Durée	µs	Temps qui sépare le premier et le dernier dépassement de seuil
Temps de montée	µs	Temps qui sépare le premier dépassement de seuil et l'amplitude maximale du signal
<i>Signal strength</i>	pV.s	Intensité du signal correspondant à l'intégrale du signal redressé sur la durée de la salve
Energie	V.s	Aire sous l'enveloppe du signal
Energie absolue	aJ	Energie vraie correspondant à l'intégrale du signal au carré sur la durée de la salve
Fréquence moyenne	kHz	Nombre de coups d'une salve divisé par sa durée
Fréquence centroïde	kHz	Centre de gravité fréquentiel d'une densité spectrale de puissance
Fréquence à la décroissance	kHz	Rapport entre le nombre de coups à la décroissance et la durée de décroissance ou fréquence du signal en phase d'amortissement
<i>Initiation frequency</i>		Rapport entre le nombre de coups au pic et le temps de montée ou fréquence du signal entre le premier dépassement de seuil et l'amplitude maximale
Barycentre fréquentiel	kHz	Abscisse du centre de gravité de l'aire sous la courbe donnant la densité spectrale d'amplitude
Fréquence au pic	khz	Abscisse du point maximal de la densité spectrale d'amplitude
ASL	dB	Valeur efficace de l'amplitude du signal électrique issu du capteur
RMS	V	Tension efficace linéaire





## Annexe D

# Théorie de Weibull

La distribution de Weibull [224] est souvent utilisée pour déterminer la durée de vie d'un système. Dans le cas d'essais brésiliens, nous utilisons cette loi pour calculer la probabilité de rupture d'un comprimé ou d'un granulé d'UO<sub>2</sub> en fonction de la contrainte  $\sigma$  qui leur est appliquée. La loi de probabilité continue  $f(\sigma)$  est définie à partir du seuil de contrainte  $\sigma_s$  en dessous duquel la probabilité de rupture de ces matériaux est nulle :  $f(\sigma) = (((\sigma - \sigma_s)/\sigma_u))^m$

Le module de Weibull  $m$  est un indicateur de la dispersion des valeurs de contrainte. Plus il est faible, plus cette dispersion est grande. Pour des faibles modules de Weibull, inférieurs à 20, la dispersion des contraintes à rupture est grande, alors qu'elle est faible pour des valeurs de  $m$  supérieures à 20.

En mesurant la probabilité de survie  $P_s(\sigma)$  comme le nombre d'échantillons n'ayant pas cassé sous la contrainte  $\sigma$ , la loi de Weibull  $P_s(\sigma) = \exp(-(\frac{\sigma}{\sigma_u})^m)$  est vérifiée si les points s'alignent dans le plan  $\ln(-\ln(P_s))$  vs.  $\ln(\sigma)$  sur une droite dont la pente est égale au module de Weibull  $m$  (Figure D.1a). A contrainte nulle,  $P_s=1$ , tous les échantillons survivent. Lorsque  $\sigma$  augmente,  $P_s$  diminue en tendant vers 0 pour les fortes contraintes et tous les échantillons cassent. La contrainte  $\sigma_u$  est la contrainte telle que  $P_s(\sigma_u) = 1/e \approx 0,37$ . Cela signifie qu'environ 63% des échantillons cassent.

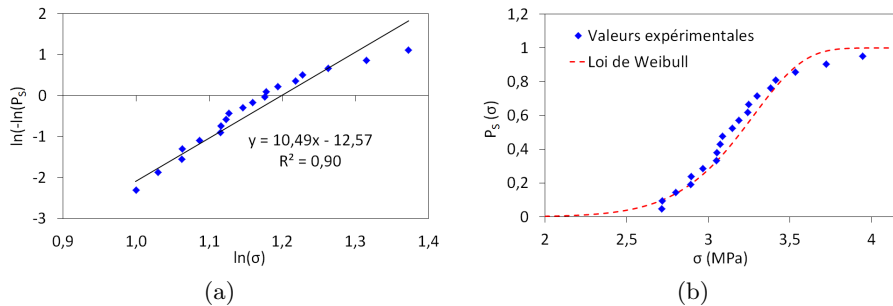


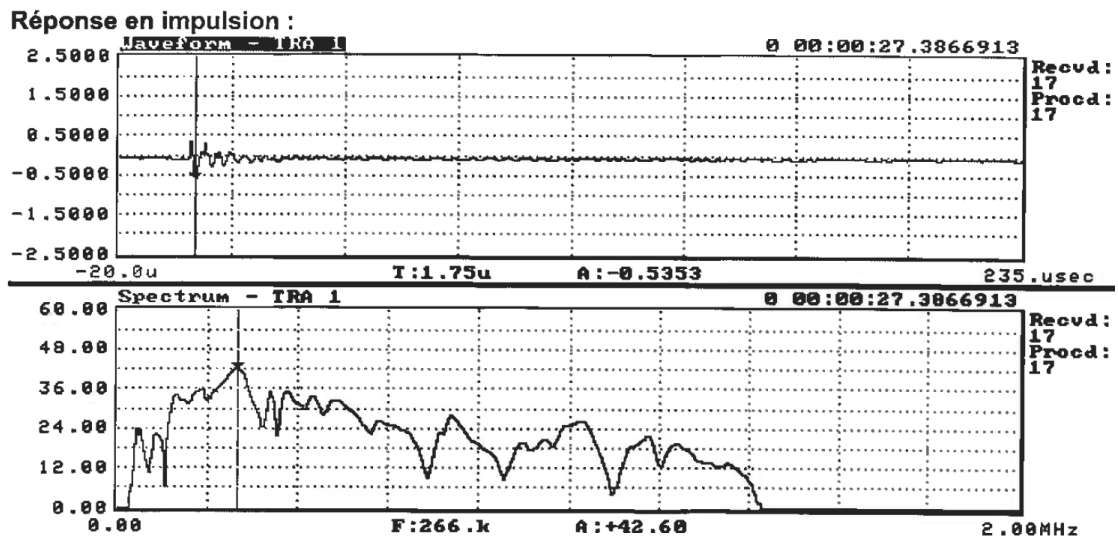
Figure D.1 – Valeurs expérimentales de contrainte à rupture de comprimés d'UO<sub>2</sub> : a) Détermination du module de Weibull  $m$  qui correspond à la pente de la droite, b) Loi de Weibull

Dans le cas des comprimés d'UO<sub>2</sub> de la Figure D.1, la contrainte ayant pour probabilité 0,63 est de 3,3 MPa (Figure D.1b). Nous remarquons une légère différence avec la moyenne arithmétique des contraintes des 20 essais, qui est de 3,2 MPa.



## Annexe E

# Réponse impulsionnelle du capteur acoustique $\mu$ 30 (Mistras®)





## Annexe F

# Analyse multiparamètres par reconnaissance de forme

Les méthodes d'analyse statistique multivariable permettent de définir les ressemblances ou les différences entre les données d'émission acoustique en prenant simultanément en compte  $n$  paramètres de salves (amplitude, durée, temps de montée, fréquence, ...). Ces paramètres sont aussi appelés descripteurs. L'utilisation de ces méthodes de classification peut apporter des informations très importantes sur la signature acoustique des différents mécanismes sources dans les matériaux.

La classification des descripteurs peut être regroupée en deux catégories : supervisée et non supervisée. Le terme de classification non supervisée signifie que les classes ne sont pas connues par l'utilisateur, ce qui est le cas dans notre étude.

L'organigramme de la Figure F.1 donne les différentes étapes de classification non supervisée.

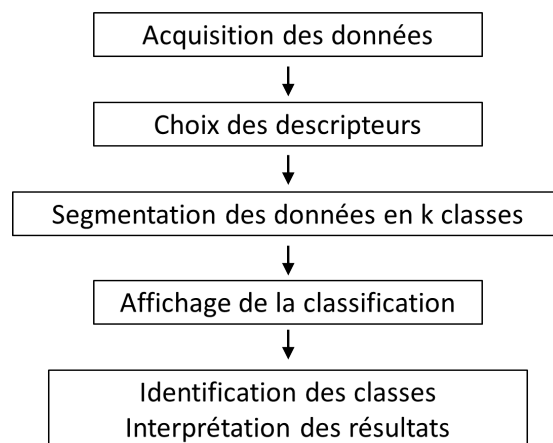


Figure F.1 – Etapes de la classification non supervisée

L'identification des classes correspond à la création de familles à l'aide de divers algorithmes tels que l'analyse en composante principale [237, 238], les k-moyennes [239, 240], la carte de Kohonen [241–244].

En particulier, l'analyse en composantes principales est la représentation des salves dans un espace « non physique » où les grandeurs sont indépendantes. Les axes créés permettent alors la projection des données avec un maximum de dispersion, soit de paramètres décorrélés. Ainsi, si la projection des données dans un des plans permet de dissocier des « paquets » de salves, cela signifie qu'il existe certainement des familles contenant des salves de caractéristiques similaires. La difficulté réside dans l'interprétation physique de ces familles de salves, autrement dit dans l'attribution d'un mécanisme de compaction à chacune de ces familles.

# Bibliographie

- [1] E. Remy, S. Picart, S. Grandjean, T. Delahaye, N. Herlet, P. Allegri, O. Dugne, R. Podor, N. Clavier, P. Blanchart, and A. Ayrat. Calcined resin microsphere pelletization (crmp) : A novel process for sintered metallic oxide pellets. *Journal of the European Ceramic Society*, 32 :3199–3209, 2012.
- [2] H. M. Jaeger, S. R. Nagel, , and R. P. Behringer. Granular solids, liquids, and gases. *Reviews of Modern Physics*, 68 :1259–1273, 1996.
- [3] L. Vanel. *Etude expérimentale de l'équilibre mécanique d'un milieu granulaire : exemples du silo et du tas de sable*. PhD thesis, Université Paris 6, 2008.
- [4] M. Oda, M. Nemat-Nasser, and J. Konishi. Stress-induced anisotropy in granular masses. *Soils Found*, 25(3) :85–97, 1985.
- [5] J. Weber. *Recherche concernant les contraintes intergranulaires dans les milieux pulvérulents*, volume 66. Laboratoire central des ponts et chaussées, 1966.
- [6] X. Ma and D. Z. Zhang. Statistics of particle interactions in dense granular material under uniaxial compression. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 54(7) :1426–1448, juillet 2006.
- [7] Y. Y. Foo, Y. Sheng, and B. J. Briscoe. An experimental and numerical study of the compaction of alumina agglomerates. *International Journal of Solids and Structures*, 41(21) :5929–5943, octobre 2004.
- [8] P. Welker and S. McNamara. Precursors of failure and weakening in a biaxial test. *Granular Matter*, 13(1) :93–105, 2011.
- [9] H. Rumpf. The strength of granules and agglomerates. *International Symposium on Agglomeration*, pages 379–418, 1962.
- [10] J. Duran. *Sables, poudres et grains*. Eyrolles, 1997.
- [11] O. Pouliquen. *Les milieux granulaires - entre fluide et solide*, 2001.
- [12] S. N. Patek and J. E. Baio. The acoustic mechanics of stick–slip friction in the california spiny lobster (panulirus interruptus). *The Journal of Experimental Biology*, 210 :3538–3546, 2007.
- [13] J. Klein. Frictional dissipation in stick-slip sliding. *Physical Review Letters*, 98(5) :056101, 2007.
- [14] P. Dantu. Etude statistique des forces intergranulaires dans un milieu pulverulent. *Géotechnique*, 18(1) :50–55, 1968.
- [15] U. Bastolla, F. Radjai, and D. Wolf. Influence of friction on the force network in granular packings. pages 193–199, 1997.

- [16] F. Radjai, S. Roux, and J.-J. Moreau. Contact forces in a granular packing. 9(3) :544–550, 1999.
- [17] N. Estrada, A. Taboada, and F. Radjai. Shear strength and force transmission in granular media with rolling resistance. *Physical Review E*, 78, 2008.
- [18] C. Liu, S. R. Nagel, D. A. Schecter, S. N. Coppersmith, S. Majumdar, O. Narayan, and T. A. Witten. Force fluctuations in bead packs. *Science*, 269(5223) :513–515, 1995.
- [19] T. S. Majmudar and R. P. Behringer. Contact force measurements and stress-induced anisotropy in granular materials. *Nature*, 435 :1079–1082, 2005.
- [20] F. Radjai, M. Jean, J.-J. Moreau, , and S. Roux. Force distributions in dense two-dimensional granular systems. *Physical Review Letters*, 77(2), 1996.
- [21] H. A. Makse, D. L. Johnson, and L. M. Schwartz. Packing of compressible granular materials. *Physical Review Letters*, 84(4160), 2000.
- [22] B. Saint-Cyr. *Modélisation des matériaux granulaires cohésifs à particules convexes : Application à la compaction des poudres d'UO<sub>2</sub>*. PhD thesis, Université Montpellier 2, 2011.
- [23] D. Howell, B. Miller, C. O'Hern, and P. Behringer. Stress fluctuations for granular materials. *World Scientific*, pages 133–147, 1997.
- [24] P. Umbanhowar and M. van Hecke. Force dynamics in weakly vibrated granular packings. *Physical Review E*, 72 :030301(R), 2005.
- [25] E. Kolb, T. Mazozi, E. Clément, and J. Duran. Force fluctuations in a vertically pushed granular column. *European Physical Journal B*, 8 :483–491, 1999.
- [26] C.-H. Liu and S. R. Nagel. Sound in sand. *Physical Review Letters*, 15 :2301–2304, 1992.
- [27] J.-C. Charmet. *Note de cours - Mécanique du solide et des matériaux : Elasticité - Plasticité - Rupture*. ESPCI - Laboratoire d'Hydrodynamique et Mécanique Physique, 2002.
- [28] C. A. Coulomb. Essai sur une application des règles de maxims et minims à quelques problèmes de statique, relatifs à l'architecture. *Mémoires de l'Académie Royale*, pages 343–382, 1776.
- [29] K. Kendall. Agglomerate strength. *Powder Metallurgy*, 31 :28–31, 1988.
- [30] J. R. Coury and M. L. Aguiar. Rupture of dry agglomerates. *Powder Technology*, 85(1) :37–43, 1995.
- [31] M. Abdel-Ghani, J. G. Petrie, J. P. K. Seville, and R. Clift. Mechanical properties of cohesive particulate solids. *Powder Technology*, 65(1-3) :113–123, 1991.
- [32] F. Podczec. Methods for the practical determination of the mechanical strength of tablets - from empiricism to science. *International Journal of Pharmaceutics*, 436(1-2) :214–232, 2012.
- [33] J. Danroc. Evolution superficielle et aptitude au compactage des poudres de dioxyde d'uranium. Rapport cea-r-5185, Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble, 1982.
- [34] M. R. Peltier. Etude théorique de l'essai brésilien. *Rilem bulletin*, 19 :33–74, 1954.
- [35] C. Tourenq and A. Denis. La résistance à la traction des roches - etude des essais de traction directe et brésilien. *Rapport de recherche n° 4 - Ministère de l'équipement et du logement*, 1970.



- [36] R. Sahoo. Review : An investigation of single particle breakage tests for coal handling system of the gladstone port. *Powder Technology*, 161(2) :158–167, janvier 2006.
- [37] Y. Chen, A. Best, T. Haschke, W. Wiechert, and H.-J. Butt. Stress and failure at mechanical contacts of microspheres under uniaxial compression. *Journal of Applied Physics*, 101, 2007.
- [38] C. A. Tang, X. H. Xu, S. Q. Kou, P.-A. Lindqvist, and H. Y. Liu. Numerical investigation of particle breakage as applied to mechanical crushing - part i : Single-particle breakage. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 38(8) :1147–1162, 2001.
- [39] D. H. Nguyen, E. A., F. Radjai, and P. Sornay. Simulation numérique de la fragmentation des particules lors de la compaction des systèmes granulaires. In *21ème Congrès Français de Mécanique*, 2013.
- [40] H. J. Ryu and F. Saito. Single particle crushing of nonmetallic inorganic brittle materials. *Solid State Ionics*, 47(1-2) :35–50, 1991.
- [41] R. A. N. Ferreira and E. Jordao. A model for the behavior of thorium uranium mixed oxide kernels in the pelletizing process. *Journal of Nuclear Materials*, 350 :271–283, 2006.
- [42] S. Antonyuk, M. Khanal, J. Tomas, S. Heinrich, and L. Mörl. Impact breakage of spherical granules : Experimental study and dem simulation. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, 45(10) :838–856, octobre 2006.
- [43] H. S. Shin, S. K. Lee, and B. K. Lee. Aggregate and necking force in mn–zn ferrite. *Materials Letters*, 57(13-14) :1467–1470, février 2003.
- [44] J. Fourcade. *Etude de la mise en forme par pressage uni-axial des poudres de combustible nucléaire*. PhD thesis, Université Montpellier 2, 2002.
- [45] R. Condotta. *Coulabilité des poudres cohésives : mesures aux faibles contraintes, granulaires humides et application à une poudre industrielle*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2005.
- [46] A. Benedetti. *Ecoulement des milieux granulaires cohésifs soumis à des vibrations*. PhD thesis, Aix-Marseille Université, 2012.
- [47] A. Drescher, A. J. Waters, and C. A. Rhoades. Arching in hoppers : I. arching theories and bulk material flow properties. *Powder Technology*, 84(2) :165–176, aout 1995.
- [48] C. Voivret, F. Radjaï, J.-Y. Delenne, and M. S. El Youssoufi. Space-filling properties of polydisperse granular media. *Physical Review E*, 76, 2007.
- [49] C. C. Furnas. Grading aggregates, i. mathematical relations for bed of broken solids of maximum density. *Industrial and Engineering Chemistry*, 23(9) :1052–1058, 1931.
- [50] H. Y. Sohn and C. Moreland. The effect of particle size distribution on packing density. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 46(3) :162–167, 1968.
- [51] C. M. Kong and J. J. Lannutti. Effect of agglomerate size distribution on loose packing fraction. *Journal of the American Ceramic Society*, 83(9) :2183–2188, 2000.
- [52] M. Renouard. *De la particule au compact : vers une explication du phénomène de clivage des comprimés de Paracétamol*. PhD thesis, Compiègne Tech. Univ., 2001.
- [53] W. M. Long. Radial pressures in powder compaction. *Powder Metallurgy*, 6 :73–86, 1960.

- [54] G. Portal. *Analyse et optimisation du procédé de compactage de poudres utilisées dans les piles thermiques*. Sciences des matériaux, Université Paul Sabatier de Toulouse, 1999.
- [55] W. M. Long. Die design and related questions in powder compaction. In *2nd symposium of special ceramics*, pages 327–340, 1962.
- [56] J. Kikuta and N. Kitamori. Evaluation of the die wall friction during tablet ejection. *Powder Technology*, 35(2) :195–200, 1983.
- [57] B. J. Briscoe and S. L. Rough. The effects of wall friction on the ejection of pressed ceramic parts. *Powder Technology*, 99(3) :228–233, octobre 1998.
- [58] R. Pitchumania, O. Zhupanskab, G. M. H Meestersa, and B. Scarlett. Measurement and characterization of particle strength using a new robotic compression tester. *Powder Technology*, 143-144 :56–64, juin 2004.
- [59] S. Lobo-Guerrero and L. E. Vallejo. Influence of pile shape and pile interaction on the crushable behavior of granular materials around driven piles : Dem analyses. *Granular Matter*, 9 :241–250, 2007.
- [60] R. Kienzler and W. Schmitt. On single-particle comminution ; numerical analysis of compressed spheres. *Powder Technology*, 61(1) :29–38, 1990.
- [61] Z. B. Tong, R. Y. Yang, A. B. Yu, S. Adi, and H. K. Chan. Numerical modelling of the breakage of loose agglomerates of fine particles. *Powder Technology*, 196(2) :213–221, 2009.
- [62] N. Arbiter, C. C. Harris, and G. A. Stamboltzis. Single fracture of brittle spheres. *AIME Transactions*, 244 :118–131, 1969.
- [63] O. Tsoungui, D. Vallet, and J.-C. Charmet. Numerical model of crushing of grains inside two-dimensional granular materials. *Powder Technology*, 105 :190–198, 1999.
- [64] D. Vallet and J.-C. Charmet. Mechanical behaviour of brittle cement grains. *Journal of Materials Science*, 30(11) :2962–2967, 1995.
- [65] K. Kendall. The impossibility of comminuting small particles by compression. *Nature*, 272 :710 – 711, 1978.
- [66] Z. Grof, M. Kohout, and F. Stepanek. Multi-scale simulation of needle-shaped particle breakage under uniaxial compaction. *Chemical Engineering Sciences*, 62(5) :1418–1429, 2007.
- [67] D. H. Nguyen, E. Azéma, F. Radjai, and P. Sornay. Evolution of particle size distributions in crushable granular materials. 2012.
- [68] D. H. Nguyen, E. Azéma, F. Radjai, and P. Sornay. Particle breaking process in granular material. 2012.
- [69] Proceedings of the Europhysics Conference on Computational Physics Computational, editor. *Contact dynamics simulations of compacting cohesive granular systems*, volume 147 of *Modeling and Simulation of Complex Systems*, 2002.
- [70] G. Bartels, T. Unger, D. Kadau, D. E. Wolf, and J. Kertész. The effect of contact torques on porosity of cohesive powders. *Granular Matter*, 7(2-3) :139–143, 2005.
- [71] P. J Denny. Compaction equations : a comparison of the heckel and kawakita equations. *Powder Technology*, 127(2) :162–172, octobre 2002.

- [72] J.-C. Masteau and G. Thomas. Evolution and modelling of compacted binary mixture porosity. application to pharmaceutical tablets. *Journal de Chimie Physique et de Physico-Chimie Biologique*, 96(7) :1245–1268, 1999.
- [73] E.T. Ernst, F. Thümmeler, P. Beiss, R. Wähling, and V. Arnhold. Friction measurements during powder compaction. *Powder Metallurgy International*, 23(2) :77–84, 1991.
- [74] K. Liffman, D. Y. C. Chan, and B. D. Hughes. Force distribution in a two dimensional sandpile. *Powder Technology*, 72(3) :255–267, 1992.
- [75] R. Deju, P. Georgeoni, N. C. Turcanu, and I. Dobos. Influence of some factors upon forces transmission during uo2 powder compaction. *Revue Roumaine de Physique*, 24(10) :1011–1021, 1979.
- [76] H. Takeuchi, S. Nagira, H. Yamamoto, and Y. Kawashima. Die wall pressure measurement for evaluation of compaction property of pharmaceutical materials. *International Journal of Pharmaceutics*, 274(1-2) :131–138, avril 2004.
- [77] D. L. Blair, N. W. Mueggenburg, A. H. Marshall, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel. Force distributions in three-dimensional granular assemblies : Effects of packing order and inter-particle friction. *Physical Review E*, 63 :041304, 2001.
- [78] G. Lovoll, K. J. Maloy, and E. G. Flekkoy. Force measurements on static granular materials. *Physical Review E*, 60(5), 1999.
- [79] U. Klemm, D. Sobek, B. Schöne, and J. Stockmann. Friction measurements during dry compaction of silicon carbide. *Journal of the European Ceramic Society*, 17(2-3) :141–145, 1997.
- [80] D. M. Mueth, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel. Force distribution in a granular medium. *Physical Review E*, 57 :3164, 1998.
- [81] K. Yanai, S. Ishimoto, T. Kubo, K. Ito, T. Ishikawa, and H. Hayashi. Characterization of ceramic powder compacts. *Journal of Nuclear Materials*, 224(1) :79–84, 1995.
- [82] I. Aydin, B. J. Briscoe, and N. Ozkan. Modelling of powder compaction : A review. *MRS Bulletin*, 22(12) :45–51, 1997.
- [83] J.-M. Haussonne, C. Carry, P. Bowen, and J. Barton. *Traité des Matériaux - Céramiques et verres : principes et techniques d'élaboration*, volume 16. 2005.
- [84] S. Shima and M. Oyane. Plasticity theory for porous metals. *International Journal of Mechanical Sciences*, 18(6) :285–291, 1976.
- [85] B.-B. Hwang and S. Kobayashi. Deformation characterization of powdered metals in compaction. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 30(2) :309–323, 1990.
- [86] A. Michrafy, J. A. Dodds, and M. S. Kadiri. Wall friction in the compaction of pharmaceutical powders : measurement and effect on the density distribution. *Powder Technology*, 148 :53–55, 2004.
- [87] P. Pizette, C. L. Martin, G. Delette, P. Sornay, and F. Sans. Compaction of aggregated ceramic powders : From contact laws to fracture and yield surfaces. *Powder Technology*, 198 :240–250, 2010.
- [88] D. Train. Transmission of forces through a powder made during the process of pelleting. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers*, 35 :258–266, 1957.

- [89] O. Abe, S. Iwai, S. Kanzaki, M. Ohashi, and H. Tabata. Influence de la dimension et de la forme sur l'homogénéité de compacts de poudre formés par pressage isostatique froid. i. formage sous presse de cylindres épais. influence of size and shape on homogeneity of powder compacts formed by cold isostatic pressing. i. press forming of thick cylinders. *Yogyo kyokaishi*, 94(10) :1092–1098, 1986.
- [90] A. P. Bromley. Minimising density distribution in die-pressed, cylindrical compacts. *Journal of the European Ceramic Society*, 18(11) :1539–1543, 1998.
- [91] D. Bernache-Assolant and J.-P. Bonnet. Frittage : aspects physico-chimiques, partie 1 : frittage en phase solide. *Techniques de l'ingénieur, Fondamentaux en chimie*, 2005.
- [92] P. Sornay. Analyse bibliographique et réflexions sur l'élaboration d'un  $uo_2$  à gros grains obtenus sans dopants. *Note Technique LCU n° 08-007*, 2008.
- [93] D.-M. Liu, J.-T. Lin, and W. H. Tuan. Interdependence between green compact property and powder agglomeration and their relation to the sintering behaviour of zirconia powder. *Ceramics International*, 25(6) :551–559, 1999.
- [94] F. F. Lange, B. I. Davis, and I. A. Aksay. Processing-related fracture origins : differential sintering of  $zro_2$  agglomerates in  $al_2o_3/zro_2$  composite. *Journal of the American Ceramic Society*, 66(6) :407–408, 1983.
- [95] R. Y. Yang, R. P. Zou, A. B. Yu, and S. K. Choi. Characterization of interparticle forces in the packing of cohesive fine particles. *Physical Review E*, 78(3) :031302, 2008.
- [96] E. Rouèche, G. Thomas, L. Perier-Camby, and E. Serris. Fragmentation de grains de sable. suivi par emission acoustique et bilans de population. In *De la poudre au matériau massif*, juin 2003.
- [97] M. Guessasma and J. Fortin. Modélisation d'un milieu discret cohésif par l'approche dynamique des contacts : Application à la rupture d'un matériau cimentaire. In *10e colloque national en calcul des structures*, 2011.
- [98] M L Hentschel and N W Page. Elastic properties of powders during compaction. part 1 pseudo-isotropic moduli. *Journal of Materials Science*, 42(4) :1261–1268, 2007.
- [99] F. Li and V. M. Puri. Measurement of anisotropic behavior of dry cohesive and cohesionless powders using a cubical triaxial tester. *Powder Technology*, 89(3) :197–207, 1996.
- [100] H. Rumpf. Particle adhesion. *Agglomeration 77*, 1(Fundamentals - Chapter 7) :97–129, 1977.
- [101] M. A. Biot. Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid : I low frequency range. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 28 :168–178, 1956.
- [102] M. A. Biot. Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid : II higher-frequency range. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 28 :179–191, 1956.
- [103] V. E. Nazarov, L. A. Ostrovsky, I. A. Soustova, and A. M. Sutin. Nonlinear acoustics of micro-inhomogeneous media. *Physics of the Earth and Planetary Interiors*, 50(1) :65–73, 1988.
- [104] V. Gusev, W. Lauriks, and J. Thoen. Dispersion of nonlinearity, nonlinear dispersion, and absorption of sound in micro-inhomogeneous materials. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 103 :3216, 1998.

- [105] R. A. Guyer and P. A. Johnson. Nonlinear mesoscopic elasticity : Evidence for a new class of materials. *Physics Today*, 52 :30, 1999.
- [106] X. Jia, C. Caroli, and B. Velicky. Ultrasound propagation in externally stressed granular media. *Physical Review Letters*, 82(9) :1863–1866, 1999.
- [107] S. Job, F. Santibanez, F. Tapia, and F. Melo. Nonlinear waves in dry and wet hertzian granular chains. *Ultrasonics*, 48(6-7) :506–514, 2008.
- [108] S. Griffiths, A. Rescaglio, and F. Melo. Ultrasound propagation in wet and airless non-consolidated granular materials. *Ultrasonics*, 50(2) :139–144, 2010.
- [109] J. Laurent. *Etude d'un matériau granulaire ses par ondes ultrasonores : effet non linéaire, atténuation et diffusion*. PhD thesis, Université Paris-Est, 2011.
- [110] 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. *Journal of the Acoustical Society of America*, 131(6) :4292–4303, 2012.
- [111] P. Filippi, D. Habault, J.-P. Lefebvre, and A. Bergassoli. *Acoustics : Basic Physics, Theory and Methods*. Academic Press, 1999.
- [112] K. Aki and P. G. Richards. *Quantitative Seismology, 2<sup>nd</sup> Edition*. University Science Books, 2002.
- [113] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Course of theoretical physics, Theory of Elasticity*, volume 7. Pergamon Press, 3 edition, 1970.
- [114] J. Roget. *L'émission acoustique. Essais non destructif, Mise en oeuvre et applications*. 1988.
- [115] D. L. Johnson, H. A. Makse, N. Gland, and L. Schwartz. Nonlinear elasticity of granular media. *Physica B*, 279 :134–138, 2000.
- [116] AFNOR. Essais non-destructifs - terminologie - partie 9 : Termes utilisés en contrôle par émission acoustique. (NF EN1330-9), 2009.
- [117] J. Roget. Emission acoustique. pages R3200 1–10, 1990.
- [118] M. Johnson. Waveform based clustering and classification of ae transients in composite laminates using principal component analysis. *NDT & E International*, 35(6) :367–376, 2002.
- [119] S. Huguet. Application de classificateurs aux données d'émission acoustique : identification de la signature acoustique des mécanismes d'endommagement dans les composites à matrice polymère. Thèse, INSA Lyon, 2002.
- [120] X. Jia and P. Mills. Sound propagation in dense granular materials. In *Powders & Grains*, 2001.
- [121] V. Langlois and X. Jia. Ultrasonic monitoring of the elastic properties of pmma bead packings and their rearrangement during pressure sintering. *Powder Technology*, 208(2) :509–514, 2011.
- [122] M. Naas, N. Sebaa, S. Derible, Z. El Abiddine Fellah, E. Ogam, and C. L. Depollier. Modèle de biot modifié : pour une description plus réaliste de la propagation des ondes ultra-sonores dans l'os trabéculaire. In *10ème Congrès Français d'Acoustique*, 2010.

- [123] V. Tournat, V. E. Gusev, and B. Castagnède. Subharmonics and noise excitation in transmission of acoustic wave through unconsolidated granular medium. *Physics Letters A*, 326 :340–348, 2004.
- [124] A. Moussatov, B. Castagnède, and V. Gusev. Observation of nonlinear interaction of acoustic waves in granular materials : demodulation process. *Physics Letters A*, 283 :216–223, 2001.
- [125] B. Chen and J. Liu. Investigation of effects of aggregate size on the fracture behavior of high performance concrete by acoustic emission. *Construction and Building Materials*, 2006.
- [126] S. A. Papargyri-Mpeni, D. A. Papargyris, X. Spiliotis, and A. D. Papargyris. Comparison of acoustic emission produced during bending of various ceramic and short fiber oxide ceramic matrix composites. *Journal of Acoustic Emission*, 28 :246, 2010.
- [127] S. Bouhedja. *Etude de la vitesse des ondes de surface et de l'atténuation du mode de Rayleigh via un capteur fonctionnant en champ noir*. PhD thesis, Université Mentouri, 2006.
- [128] M. Chekroun. *Caractérisation mécanique des premiers centimètres du béton avec des ondes de surface*. PhD thesis, Ecole Centrale de Nantes, 2008.
- [129] M. Janecek, R. Krala, P. Dobroma, F. Chmelika, V. Supikb, and F. Holländerb. Mechanisms of plastic deformation in az31 magnesium alloy investigated by acoustic emission and transmission electron microscopy. *Materials Science and Engineering A*, 462(1-2) :311–315, juillet 2006.
- [130] K. Mathis, F. Chmelik, Z. Trojanova, and P. Lukac. Investigation of some magnesium alloys by use of the acoustic emission technique. *Materials Science and Engineering : A*, 387 :331–335, 2004.
- [131] M. Surgeon, E. Vanswijgenhoven, M. Wevers, and O. Van Der Biest. Acoustic emission during tensile testing of sic-fibre-reinforced bmas glass-ceramic composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 28(5) :473–480, 1997.
- [132] C. Santulli, I.M. De Rosa, and F. Sarasini. Acoustic emission for monitoring the mechanical behaviour of natural fibre composites : A literature review. *Composites Part A : Applied science and Manufacturing*, 40(9) :1456–1469, 2009.
- [133] N. Godin, M. R'Mili, P. Reynaud, G. Fantozzi, and J. Lamon. *Identification of Damage Modes in Ceramic Matrix Composites by Acoustic Emission Signal Pattern Recognition*, volume 32. Dileep Singh, Jonathan Salem andSujanto Widjaja, 2011.
- [134] M. Ohtsu. The history and development of acoustic emission in concrete engineering. *Magazine of Concrete Research*, 48(177) :321–330, 1996.
- [135] L. Baillon. *Applications des techniques d'émissions acoustiques au suivi de la fissuration dans le béton*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2002.
- [136] T. Watanabe, S. Nishibata, C. Hashimoto, and M. Ohtsu. Compressive failure in concrete of recycled aggregate by acoustic emission. *Construction and Building Materials*, 21(3) :470–476, mars 2007.
- [137] K. Ohno and M. Ohtsu. Crack classification in concrete based on acoustic emission. *Construction and Building Materials*, 24(12) :1339–2346, 2010.

- [138] H. L. Dunegan, D. O. Harris, and C. A. Tatro. Fracture analysis by use of acoustic emission. *Engineering Fracture Mechanics*, 1(1) :105–110, 1968.
- [139] A. Hakonen and E. Laine. Acoustic characterization of a microcrystalline cellulose powder during and after its compression. *Drug development and industrial pharmacy*, 21(13) :1573–1582, 1995.
- [140] R. Knehans, R. Steinbrech, and W. Schaarwächter. Quantitative correlation of acoustic emission to the brittle fracture of porous sintered glass. *Materials Science and Engineering*, 61(1) :17–22, 1983.
- [141] P. Baud, E. Klein, and T.-F. Wong. Compaction localization in porous sandstones : spatial evolution of damage and acoustic emission activity. *Journal of Structural Geology*, 26(4) :603–624, avril 2004.
- [142] J. S. Chester, S. C. Lenz, F. M. Chester, and R. A. Lang. Mechanisms of compaction of quartz sand at diagenetic conditions. *Earth and Planetary Science Letters*, 220(3-4) :435–451, avril 2004.
- [143] S. Bouras, I. Zerizer, F. Gheldane, M. T. Bouazza, and B. Bouzabata. Study of the resistance to crack propagation in alumina by acoustic emission. *Ceramics International*, 34(8) :1857–1865, 2008.
- [144] S. Eissa. *Condition monitoring of pharmaceutical powder compression during tableting using acoustic emission*. PhD thesis, Brunel University, 2003.
- [145] E. Rouèche, E. Serris, G. Thomas, and L. Périer-Camby. Influence of temperature on the compaction of an organic powder and the mechanical strength of tablets. *Powder Technology*, 162(2) :138–144, mars 2006.
- [146] J. C. Radon and A. A. Pollock. Acoustic emissions and energy transfer during crack propagation. *Engineering Fracture Mechanics*, 4(2) :295–310, 1972.
- [147] F. Radjai, P. Evesque, D. Bideau, and S. Roux. Stick-slip dynamics of a one-dimensional array of particles. *Physical Review E*, 52(5) :5555–5564, 1995.
- [148] Y. Yabe. Evolution of source characteristics of ae events during frictional sliding. *Earth, Planets and Space*, 60 :e5–e8, 2008.
- [149] G. C. McLaskey and S. D. Glaser. Micromechanics of asperity rupture during laboratory stick-slip experiments. *Geophysical Research Letters*, 38, 2011.
- [150] C.L. Jiaa and D.A. Dornfeld. Experimental studies of sliding friction and wear via acoustic emission signal analysis. *Wear*, 139(2) :403–424, 1990.
- [151] Y. Yabe. Effect of sliding rate on the activity of acoustic emission during stable sliding. *Pure and Applied Geophysics*, 160(7) :1163–1189, 2003.
- [152] P. A. Johnson, B. Ferdowsi, B. M. Kaproth, M. Scuderi, M. Griffa, J. Carmeliet, R. A. Guyer, P.-Y. Le Bas, D. T. Trugman, and C. Marone. Acoustic emission and microslip precursors to stick-slip failure in sheared granular material. *Geophysical Research Letters*, 40(21) :5627–5631, 2013.
- [153] C. Henrique, M. A. Aguirre, A. Calvo, I. Ippolito, and D. Bideau. Experimental acoustic technique in granular flows. *Powder Technology*, 94 :85–89, 1997.

- [154] G. Carson, A. J. Mulholland, A. Nordon, M. Tramontana, A. Gachagan, and G. Hayward. Particle sizing using passive ultrasonic measurement of particle-wall impact vibrations. *Journal of Sound and Vibration*, 317(1) :142–157, 2008.
- [155] S. Job, F. Melo, A. Sokolow, and S. Sen. How hertzian solitary waves interact with boundaries in a 1-d granular medium. *Physical Review Letters*, 94(17), 2005.
- [156] F. Rioual, A. Valance, and D. Bideau. Experimental study of the collision process of a grain on a two-dimensional granular bed. *Physical Review E*, 62(2) :2450–2459, 2000.
- [157] R. C. Hidalgo, C. U. Grosse, F. Kun, H. W. Reinhardt, and H. J. Herrmann. Evolution of percolating force chains in compressed granular media. *Physical Review Letters*, 89(20), 2002.
- [158] P. J. Digby. The effective elastic moduli of porous granular rocks. *Journal of Applied Mechanics*, 48 :803–808, 1981.
- [159] M. Bensouda. *Contribution a l'analyse par emission acoustique de l'endommagement dans le beton*. PhD thesis, Université du Maine, 1989.
- [160] N. Parida, B. B. Pani, and B. R. Kumar. Acoustic emission assisted compaction studies on iron, iron-aluminium and iron-cast iron powders. *Scripta Materialia*, 37(11) :1659–1663, décembre 1997.
- [161] G. Kerboul. Etude de l'endommagement des produits céramiques crus par emission acoustique. Thèse, INSA Lyon, GEMPPM, CEA Cadarache, 1992.
- [162] T. Kathrina and R.D. Rawlings. Acoustic studies of the effect of sic particle reinforcement on the compaction of alumina powder. *Journal of the European Ceramic Society*, 17(9) :1157–1166, 1997.
- [163] S. L. Karner, F. C. Chester, A. K. Kronenberg, and J. S. Chester. Subcritical compaction and yielding of granular quartz sand. *Tectonophysics*, 377(3-4) :357–381, décembre 2003.
- [164] A. Hakanen, E. Laine, H. Jalonen, K. Linsaari, and L. Jokinen. Acoustic emission during powder compaction and its frequency spectral analysis. *Drug development and industrial pharmacy*, 19(19) :2539–2560, 1993.
- [165] E. Serris, L. Perier-Camby, G. Thomas, M. Desfontaines, and G. Fantozzi. Acoustic emission of pharmaceutical powders during compaction. *Powder Technology*, 128(2-3) :296–299, décembre 2002.
- [166] J. Salonen, K. Salmi, A. Hakanen, E. Laine, and K. Linsaari. Monitoring the acoustic activity of a pharmaceutical powder during roller compaction. *International Journal of Pharmaceutics*, 153 :257–261, 1997.
- [167] P. Reynaud, J. Dubois, D. Rouby, G. Fantozzi, and E. Weynant. Acoustic emission monitoring of uniaxial pressing of ceramic powders. *Ceramics International*, 18 :391–397, 1992.
- [168] Y. H. J. Au, S. Eissa, and B. E. Jones. Receiver operating characteristic analysis for the selection of threshold values for detection of capping in powder compression. *Ultrasonics*, 42(1-9) :149–153, 2004.
- [169] M. J. Waring, M. H. Rubinstein, and J. R. Howard. Acoustic emission of pharmaceutical materials during compression. *International Journal of Pharmaceutics*, 36(1) :29–36, 1987.



- [170] G. R. B. Down. Localized particle fracture during compression of materials expected to undergo plastic deformation. *Powder Technology*, 35(2) :167–169, 1983.
- [171] F. Fernandes, A. I. Syahrial, and J. R. Valdes. Monitoring the oedometric compression of sands with acoustic emissions. *Geotechnical Testing Journal*, 33(5) :410–415, 2010.
- [172] T. W. Lambe and R. V. Whitman. *Soil Mechanics*. 1969.
- [173] B. O. Hardin. Crushing of soil particles. *Journal of Geotechnical Engineering*, 111(10) :1177–1192, 1985.
- [174] A. G. Evans and L. J. Graham. A model for crack propagation in polycrystalline ceramics. *Acta Metallurgica*, 23 :1303–1312, 1975.
- [175] O. Y. Andreykiv, M. V. Lysak, O. M. Serhiyenko, and V. R. Skalsky. Analysis of acoustic emission caused by internal cracks. *Engineering Fracture Mechanics*, 68(11) :1317–1333, juillet 2001.
- [176] E. Serris. *Influence des conditions de compression sur les propriétés physico - chimiques des comprimés issus de poudres organiques*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de St-Etienne, 2002.
- [177] I. A. Aksay and B. Sonuparlak. Procédé permettant de produire des céramiques poreuses à base de microsphères polymères décomposables et produit qui en résulte, 1990.
- [178] A. R. Studart, U. T. Gonzenbach, E. Tervoort, and L. J. Gauckler. Processing routes to macroporous ceramics : A review. *Journal of the American Ceramic Society*, 89(6) :1771–1789, 2006.
- [179] R. Faure, F. Rossignol, T. Chartier, C. Bonhomme, A. Maître, G. Etchegoyen, P. Del Gallo, and D. Gary. Alumina foam catalyst supports for industrial steam reforming processes. *Journal of the European Ceramic Society*, 31 :303–312, 2011.
- [180] P. Del-Gallo, M. Cornillac, F. Rossignol, R. Faure, T. Chartier, and D. Gary. Mousse céramique à gradient de porosité dans la catalyse hétérogène, 2011.
- [181] C. Tardivat, E. Mercier, C. His, and F. Villiermaux. Procédé d'obtention de céramiques poreuses, 2013.
- [182] H. Zahouani and F. Sidoroff. Rough surfaces and elasto-plastic contacts. 2001.
- [183] B. Jiang, N.Q. Zhao, C.S. Shi, X.W. Du, J.J Li, and H.C. Man. A novel method for making open cell aluminium foams by powder sintering process. *Materials Letters*, 59 :3333–3336, 2005.
- [184] A. Kalemtaş, G. Topates, H. Özcoban, H. Mandal, F. Kara, and R. Janssen. Mechanical characterization of highly porous  $\beta$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  ceramics fabricated via partial sintering & starch addition. *Journal of the European Ceramic Society*, 33 :1507–1515, 2013.
- [185] Y. Jing, X. Deng, J. Lia, C. Bai, and W. Jiang. Fabrication and properties of sic/mullite composite porous ceramics. *Ceramics International*, 40 :1329–1334, 2014.
- [186] S.-Y. Shan, J.-F. Yang, J.-Q. Gao, W.-H. Zhang, Z.-H. Jin, R. Janssen, and T. Ohji. Porous silicon nitride ceramics prepared by reduction–nitridation of silica. *Journal of the American Ceramic Society*, 88(9) :2594–2596, 2005.
- [187] S. Mopoung, N. Sriprang, and J. Namahoot. Sintered filter materials with controlled porosity for water purification prepared from mixtures with optimal ratio of zeolite, bentonite, kaolinite, and charcoal. *Applied Clay Science*, 2013.

- [188] D. Chakravarty, H. Ramesh, and T. N. Rao. High strength porous alumina by spark plasma sintering. *Journal of the European Ceramic Society*, 29 :1361–1369, 2009.
- [189] N. Kondo, Y. Inagaki, Y. Suzuki, and T. Ohji. Fabrication of porous anisotropic silicon nitride by using partial sinter-forging technique. *Materials Science and Engineering*, A335 :26–31, 2002.
- [190] J.-F. Yang, G.-J. Zhang, and T. Ohji. Porosity and microstructure control of porous ceramics by partial hot pressing. *Journal of Materials Research*, 16(7) :1916–1918, 2001.
- [191] J.-F. Yang, Z.-Y. Deng, and T. Ohji. Fabrication and characterisation of porous silicon nitride ceramics using  $\text{yb}_2\text{o}_3$  as sintering additive. *Journal of the European Ceramic Society*, 23 :371–378, 2003.
- [192] J. W. Morris. The influence of grain size on the mechanical properties of steel. *Technical Report*, 2001.
- [193] K. W. Song, K. S. Kim, Y. M. Kim, K. W. Kang, and Y. H. Jung. Reduction of the open porosity of  $\text{UO}_2$  pellets through pore structure control. *Journal of Nuclear Materials*, 279 :253–258, 2000.
- [194] K. W. Song and D.-S. Sohn. Effects of sintering processes on the duplex grain structure of  $\text{UO}_2$ . *Journal of Nuclear Materials*, 200(1) :41–49, 1993.
- [195] Y. W. Lee and M. S. Yang. Characterization of  $\text{UO}_2$  fuel pellets fabricated using  $\text{UO}_2$  powders from different conversion processes. *Journal of Nuclear Materials*, 22 :217–226, 1991.
- [196] Y. A. Dzenis and J. Qian. Analysis of microdamage evolution histories in composite. *International Journal of Solids and Structures*, 38 :1831–1854, 2001.
- [197] R. Berbaoui. Identification et analyse de l'endommagement par fatigue des matériaux granulaires à base polymère. Thèse, Université du Maine, 2010.
- [198] S. E. Hamdi. *Contribution au traitement du signal pour le contrôle de santé in situ de structures composites : Application au suivi de température et à l'analyse des signaux d'émission acoustique*. PhD thesis, Université du Maine, 2012.
- [199] E. Gardel, E. Sitaridou, K. Facto, E. Keene, K. Hattam, N. Easwar, and N. Menon. Dynamical fluctuations in dense granular flows. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 367 :5109–5121, 2009.
- [200] M. D. Read, M. R. Ayling, P. G. Meredith, and S. A. F. Murrell. Microcracking during triaxial deformation of porous rocks monitored by changes in rock physical properties, ii. pore volumetry and acoustic emission measurements on water-saturated rocks. *Tectonophysics*, 245 :223–235, 1995.
- [201] J. D. Higgs, W. T. Thompson, B. J. Lewis, and S. C. Vogel. Kinetics of precipitation of  $\text{U}_4\text{O}_9$  from hyperstoichiometric  $\text{UO}_{2+x}$ . *Journal of Nuclear Materials*, 366 :297–305, 2007.
- [202] J. C. Taylor. The structure of the alpha form of uranyl hydroxide. *Acta Crystallography*, 1088(B27), 1971.
- [203] R. J. Forlano, A. W. Allen, and R. J. Beals. Elasticity and anelasticity of uranium oxides at room temperature : I, stoichiometric oxide. *Journal of the American Ceramic Society*, 50(2) :93–96, 1967.

- [204] A. Padel and Ch. De Novion. Constantes elastiques des carbures, nitrures et oxydes d'uranium et de plutonium. *Journal of Nuclear Materials*, 33(1) :40–51, 1969.
- [205] J. M. Gatt, Y. Monerie, D. Laux, and D. Baron. Elastic behavior of porous ceramics : application to nuclear fuel materials. *Journal of Nuclear Materials*, 336(2-3) :145–155, 2005.
- [206] D. G. Martin. The elastic constants of polycrystalline  $UO_2$  and (u, pu) mixed oxides : a review and recommendations. *High Temperatures. High Pressures*, 21(1) :13–24, 1989.
- [207] ASTM. Standard test method for dynamic young's modulus, shear modulus, and poisson's ratio for advanced ceramics by impulse excitation of vibration. (ASTM Designation : 1259-08e1), 2009.
- [208] ASTM. Standard test method for dynamic young's modulus, shear modulus, and poisson's ratio by sonic resonance. *American Society for Testing and Materials*, (ASTM-E-1875–08) :9, 2009.
- [209] ASTM. Standard test method for dynamic young's modulus, shear modulus, and poisson's ratio by impulse excitation of vibration. (ASTM E1876 - 09), 2009.
- [210] B. A. Auld. *Acoustic Fields and Waves in Solids, Vol. 2*. Krieger Pub Co, 1990.
- [211] J. M. Heintz, F. Weill, and J. C. Bernier. Characterization of agglomerates by ceramic powder compaction. *Materials Science and Engineering : A*, 109 :271–277, 1989.
- [212] T. Kennedy, S. Hampshire, and Y. Yaginuma. A study of the compaction mechanism of granulated materials. *Journal of the European Ceramic Society*, 17(2,3) :133–139, 1997.
- [213] M. D. Tousey. The granulation process 101 - basic technologies for tablet making. *Pharmaceutical Technology - Tableting and Granulation*, pages 8–13, 2002.
- [214] H. K. Solanki, T. Basuri, J. H. Thakkar, and C. A. Patel. Recent advances in granulation technology. *International Journal of Pharmaceutical Sciences Review and Research*, 5(3) :48–54, 2010.
- [215] C. Voivret. *Texture et comportement des matériaux granulaires à grande polydispersité*. Thèse de doctorat, Université des sciences et techniques de Montpellier 2, 2008.
- [216] J. D. Hansen, R. P. Rusin, M.-H. Teng, and D. L. Johnson. Combined-stage sintering model. *Journal of the American Ceramic Society*, 75(5) :1129–1135, 1992.
- [217] A. Frachon. *Modélisation et simulation numérique de la compression en matrice de poudres métalliques*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2002.
- [218] ASTM. Standard method for primary calibration of ae sensors, 2002.
- [219] ASTM. Standard guide for determining the reproducibility of ae sensor response. (ASTM Designation : E976-84), 1984.
- [220] Mistras. Stage : Technologie de l'émission acoustique, 2011.
- [221] P. Antonaci, P. Bocca, and D. Masera. Fatigue crack propagation monitoring by acoustic emission signal analysis. *Engineering Fracture Mechanics*, 81 :26–32, 2012.
- [222] D. G. Eitzen and H. N. G. Wadley. Acoustic emission : Establishing the fundamentals. *Journal of Research of the National Bureau of Standards*, 89(1) :75–100, January-February 1984.
- [223] D. Rouby. Emission acoustique, 1982.

- [224] W. Weibull. A statistical distribution function of wide applicability. *ASME Journal of Applied Mechanics, Transactions of the American Society of Mechanical Engineers*, pages 293–297, 1951.
- [225] L. Hegron, P. Sornay, and N. Favretto-Cristini. Compaction of a bed of fragmentatable  $uO_2$  particles and associated acoustic emission. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 61(4) :2175–2181, 2014.
- [226] M. S. Kadiri. Compression de poudres pharmaceutiques et interaction avec l’outillage. analyse expérimentale et modélisation numérique. Master’s thesis, Mine d’Albi, 2004.
- [227] N. Godin, S. Huguet, R. Gaertner, and L. Salmon. Clustering of emission acoustic signals collected during tensile tests on unidirectional glass/polyester composite using supervised and unsupervised classifiers. *NDT & E international : independent nondestructive testing and evaluation*, 37(4) :253–265, 2004.
- [228] H. Nechad. Evaluation de l’endommagement et de la rupture de matériaux hétérogènes par ultrasons et émission acoustique : Estimation de la durée de vie restante. Thèse, INSA Lyon, 2004.
- [229] J. G. Berryman. Random close packing of hard-spheres and disks. *Physical Review A*, 27(2) :1053–1061, 1983.
- [230] D. H. Nguyen. *Microstructure et comportement mécanique des milieux granulaires polydisperses fragmentables*. PhD thesis, Université de Montpellier, 2014.
- [231] R. W. Heckel. Density pressure relationship in powder compaction. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 221 :671, 1961.
- [232] F. Restagno. Hydrostatique d’un matériau granulaire ou la physique d’une colonne de sable, 2009.
- [233] K. Kawakita and K.-H. Lüdde. Some considerations on powder compression equations. *Powder Technology*, 4(2) :61–68, janvier 1971.
- [234] F. M. Mahoney and M. J. Readey. Applied mechanics modeling of granulated ceramic powder compaction. 1995.
- [235] R. A. Thompson. Mechanics of powder pressing : I. model for powder densification. *American Ceramic Society Bulletin*, 60(2) :237–243, 1981.
- [236] H. Unckel. *Archiv für das eisenhüttenwesen*. 55, 1984.
- [237] C.-C. Chang, Y.-W. Chen, and D. J. Buehrer. A two-dimensional shape recognition scheme based on principal component analysis. *International Journal of Pattern Recognition and Artificial Intelligence*, 8(4) :859–875, 1994.
- [238] J. Karhunen and J. Joutsensalo. Representation and separation of signals using nonlinear pca type learning. *Neural Networks*, 7(1) :113–127, 1994.
- [239] A. Likas, N. Vlassis, and J. Verbeek. The global k-means clustering algorithm. *Pattern Recognition*, article in press, 2002.
- [240] M. K. Ng. A note on constrained k-means algorithms. *Pattern Recognition*, 33(3) :515–519, 2000.
- [241] T. Kohonen. *Self-organization and associative memory*, volume 8. Berlin : Springer-Verlag, 1984.

- [242] N. B. Venkateswarlu and P. S. V. S. K. Raju. Fast isodata clustering algorithms. *Pattern Recognition*, 25(3) :335–342, 1992.
- [243] K. Hattori and M. Takahashi. A new nearest-neighbor rule in the pattern classification problem. *Pattern Recognition*, 32(3) :425–432, 1999.
- [244] K. Wagstaf, C. Cardie, S. Rogers, and S. Schroedl. Constrained k-means clustering with background knowledge. In *Proceedings of the Eighteenth International Conference on Machine Learning*, page 577–584, 2001.