



**HAL**  
open science

# Étude du lien entre les caractéristiques physico-chimiques des poudres et leur comportement lors des phases de transfert

Élodie Beaunac

► **To cite this version:**

Élodie Beaunac. Étude du lien entre les caractéristiques physico-chimiques des poudres et leur comportement lors des phases de transfert. Génie des procédés. Université de Technologie de Compiègne, 2021. Français. NNT : 2021COMP2650 . tel-03643316

**HAL Id: tel-03643316**

**<https://theses.hal.science/tel-03643316>**

Submitted on 15 Apr 2022

**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.

Par **Élodie BEAUNAC**

*Étude du lien entre les caractéristiques physico-chimiques des poudres et leur comportement lors des phases de transfert*

Thèse présentée  
pour l'obtention du grade  
de Docteur de l'UTC



Soutenue le 3 décembre 2021

**Spécialité :** Génie des Procédés et Développement Durable :  
Transformations intégrées de la matière renouvelable (EA-4297)

D2650

Université de Technologie de Compiègne

# **ÉTUDE DU LIEN ENTRE LES CARACTÉRISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUES DES POUDRES ET LEUR COMPORTEMENT LORS DES PHASES DE TRANSFERT**

THÈSE

Soutenue le 3 décembre 2021  
pour l'obtention du

**Doctorat en Sciences de l'Ingénieur**

*Spécialité : Génie des Procédés Industriels et développement durable*

par

**Elodie BEAUNAC**

## **Composition du jury**

**Alain DE RYCK**

École des mines d'Albi-Carmaux

**Rapporteur**

**Olivier BONNEFOY**

École des mines de Saint-Etienne

**Rapporteur**

**Abibatou NDIAYE**

Orano MELOX

**Examineur**

**Guillaume BERNARD-GRANGER**

CEA Marcoule

**Examineur**

**Christophe PROUST**

Université de Technologie de Compiègne

**Examineur**

**Khashayar SALEH**

Université de Technologie de Compiègne

**Directeur de thèse**

**Mikel LETURIA**

Université de Technologie de Compiègne

**Co-directeur de thèse**

**Anne-Charlotte ROBISSON**

CEA Cadarache

**Encadrant**

**Carine ABLITZER**

CEA Cadarache

**Encadrant/Invité**

**Laboratoire de Génie des Procédés Industriels - EA TIMR 4297**



## REMERCIEMENTS

---

Voilà le moment de rédiger les remerciements, qui marquent pour moi la fin de ces trois belles années de thèse. C'est donc avec une certaine nostalgie que je m'apprête à rédiger ces quelques mots.

Ce manuscrit est le résultat d'un travail de thèse qui s'est déroulé au Commissariat de l'Energie Atomique à Cadarache dans le Département d'Étude du Combustible (DEC) et plus précisément au sein du Laboratoire des Combustibles Uranium (LCU), en collaboration avec le laboratoire Transformations Intégrées de la Matière Renouvelable (TIMR) de l'Université de Technologie de Compiègne (UTC), co-financé par Orano et EDF.

Tout d'abord, je remercie Alain DE RYCK et Olivier BONNEFOY qui ont accepté de rapporter ce travail ainsi que les examinateurs Abibatou NDIAYE, Guillaume BERNARD-GRANGER et Christophe PROUST.

Je tiens à remercier mes directeurs de thèse, Khashayar et Mikel, et mes encadrantes, Anne-Charlotte et Carine, pour m'avoir fait confiance et m'avoir permis de réaliser ces travaux de thèse. Vous m'avez toujours conseillé et laissé la liberté dans les choix d'orientation de ces travaux de thèse. Plus précisément, je remercie Khashayar pour avoir partagé son expertise dans le domaine des milieux divisés ; Mikel, pour toutes nos heures passées au téléphone ou sur Zoom, pour tous tes conseils avisés, que ce soit sur les expériences, les analyses de résultats et la rédaction mais aussi pour ta présence et ton soutien pendant le confinement ; Anne-Charlotte pour m'avoir toujours poussé à aller plus loin ainsi que pour tes conseils, ta confiance et ton soutien, tu es celle qui a eu le plus à me supporter pendant ces trois ans et pour moi, c'était un plaisir de travailler avec toi ; Carine, toujours présente pour moi, merci pour tes conseils et ton soutien sans faille. Une pensée particulière pour Pierre, avec qui j'ai débuté ces travaux pendant mon stage précédant la thèse, toujours avec le sourire, avec toi il n'y a pas de problèmes, que des solutions.

Je remercie également les personnes m'ayant apporté leur aide sur la simulation DEM, Jean-Mathieu et Elias, pour m'avoir formé à la programmation et au logiciel de simulation LIGGGHTS. Un grand merci à Farheez, stagiaire pendant 6 mois, pour son travail remarquable sur la partie DEM.

Je remercie Maité BERTAUX, chef du LCU, pour ton implication et ton soutien.

Merci à tous les ingénieurs avec qui j'ai pu travailler de près ou de loin durant cette thèse : Xavière ILTIS, Christelle DUGUAY, Olivier FIQUET, Joel RAYNAL, Philippe SORNAY, Dominique MOULINIER, Christophe ROUBAUD et Stéphane VAUDEZ. Une pensée particulière pour Philippe GARCIA, avec qui j'ai partagé le local Calci, tu me faisais bien rire entre tes joies lorsque tes manip fonctionnaient et tes colères lorsque ce n'était pas le cas.

Un grand merci également aux techniciens qui m'ont apporté leur aide durant ces travaux de thèse : Franck pour m'avoir formé au travail en BaG et avec qui nous avons réalisé les préparations du milieu granulaire sur le lot GrC ; Florent pour les fabrications et analyses de pastilles, le tamisage/forçage, et surtout pour avoir toujours pris le temps de répondre à mes nombreuses questions et de t'être toujours rendu disponible de suite dès que j'avais besoin d'aide pour des sorties BaG ou

autres, tout comme Olivier, l'expert BaG ; Sid, intérimaire pendant ma thèse, pour le broyage du lot FaC qui ne nous aura pas simplifier la vie, avec les analyses BET et les pastilles créées ; à l'équipe MEB, Nicolas et Josselin, pour les différentes observations réalisées pendant la thèse ; Andréa, pour ton aide avec les problèmes du granulo, les recalibrations du FT4 et les différentes observations des pastilles et poudres au microscope ; Clarisse, l'experte de changement de gants, pour les différentes analyses au poro ; Justine pour ton aide lorsque j'avais des questions et les préparations pour le transport de poudre ; Mathias pour les analyses BET. Je remercie également Corinne, secrétaire du LCU, toujours disponible avec le sourire pour chaque demande.

Un grand merci à Ahmed, qui a réalisé une thèse sur la rhéologie des poudres d'UO<sub>2</sub> avant ma thèse et qui m'a formé au FT4. Merci également à Solène, en post-doc durant ma thèse, pour ton aide sur l'analyse morphologique des agglomérats, on y aura passé du temps. Merci également aux autres thésards, Antoine, JB et Julien, mon co-bureau, pour vos conseils et à Antoine pour nos problèmes de granulo, nos sorties BaG en Calci et nos moments passés dans ce local. Merci aussi à King-Wo, pour nos différentes discussions après manger, ton calme et tes conseils m'ont beaucoup aidé. Enfin, merci aux stagiaires avec qui j'ai pu travailler pendant la thèse (Edouard, Lina et Farheez).

Merci à mon cher FT4, avec qui j'ai passé une grande majorité de mon temps et qui ne m'a pas lâché pendant toutes les analyses que j'ai pu lui faire faire. Au revoir au local Calci et local Pate côté est, dans lequel il fallait chercher si l'on me cherchait la plupart du temps.

Voilà pour le travail, mais ces trois années de thèse ne se résument pas qu'aux travaux présentés dans ce manuscrit, mais aussi aux différents moments de plaisir partagés avec le 315 : les sorties à Aix, au ski, à Esparron, les restaurants et les repas de labo, les après-midi barbec/piscine, les soirées et les apéros en visio pendant le confinement, vous m'avez permis de me sentir moins seule pendant ces 4 mois enfermée dans mon appartement. C'est grâce à vous que ces trois ans de thèse resteront pour moi un des meilleurs moments de ma vie. Vous resterez pour moi la famille du 315, je ne vous oublierai jamais.

Merci également à mes amies, extérieures au labo, qui m'ont soutenu pendant ces trois ans de thèse, Sarah et Anaïs.

Je remercie également mon chat pour m'avoir supporté. Pour finir, le plus important pour moi, un immense merci à ma famille, et particulièrement à mes parents, sans qui je n'en serais pas là aujourd'hui.

Merci à tous, grâce à vous, cette thèse fut une merveilleuse expérience, autant professionnellement qu'humainement.

## RÉSUMÉ

---

Dans l'objectif d'une optimisation des ressources en uranium via notamment le multi-recyclage du plutonium, le déploiement de réacteurs à neutrons rapides (RNR) est envisagé. Ils permettraient une économie des ressources ainsi qu'une réduction des déchets nucléaires. En France, le combustible envisagé pour les futurs RNR refroidis au sodium (RNR-Na) est un combustible MOX (Mélange d'Oxydes), composé d'oxyde d'uranium  $UO_2$  et d'oxyde de plutonium  $PuO_2$  jusqu'à 35% massique. Son procédé de fabrication devra permettre la mise en œuvre de plutonium multi-recyclé, ce qui entraînera une augmentation de l'activité radiologique des matières premières mises en œuvre. Ce procédé doit donc minimiser la génération de poussières et limiter les opérations de maintenance grâce à une bonne coulabilité des poudres, tout en permettant d'obtenir des pastilles répondant aux différentes spécifications. Pour ce faire, l'étape de préparation du milieu granulaire est une étape clé du procédé de fabrication, dans la mesure où elle conduit à la formation d'agglomérats dont les caractéristiques doivent améliorer la coulabilité de la poudre initiale.

Dans cette thèse, l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques, mécaniques et rhéologiques des poudres a été étudié afin d'établir un lien entre caractéristiques physiques et comportement rhéologique. De plus, une approche par modélisation par DEM a été initiée dans l'optique de simuler le comportement rhéologique des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle. Ainsi, deux méthodes de préparation du milieu granulaire ont été étudiées afin de déterminer les conditions qui permettent d'améliorer la coulabilité d'une même poudre initiale broyée : une voie utilisant un mélangeur en V et une voie utilisant un moulin oscillant et rotatif (Frewitt). Préalablement à cette étude, la mise en place d'une méthodologie de caractérisation s'est avérée nécessaire afin de pouvoir effectuer un maximum de mesures avec un minimum de poudre. La méthode permettant une amélioration marquée de la coulabilité correspond à la voie Frewitt avec un tamis de 250  $\mu m$ , suivie d'une étape de brassage et de lubrification. L'étude de l'impact de cette méthode sur des poudres possédant des caractéristiques initiales différentes a montré une certaine robustesse de cette voie de préparation du milieu granulaire. Une étude par régression linéaire multiple a permis de mettre en évidence l'importance relative des caractéristiques physiques et mécaniques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques. Pour finir, une méthode optimisée de calibration des paramètres de simulation par LHS-Krigeage-EGO a été mise en place.

*Mots-clés : rhéologie des poudres, caractéristiques physiques et mécaniques, métallurgie des poudres, oxyde d'uranium, rhéomètre à poudre FT4, simulation DEM.*

## ABSTRACT

---

The development of the future fast nuclear reactors is being considered with the goal of optimizing uranium resources, in particular through the multi-recycling of plutonium. These reactors are expected to save resources and reduce nuclear wastes. In France, the nuclear fuel for future sodium-cooled fast nuclear reactors is called MOX fuel (Mixed OXides). It is composed of uranium oxide  $\text{UO}_2$  and plutonium oxide  $\text{PuO}_2$  up to 35% wt. The manufacturing process should allow the use of multi-recycled plutonium, which would lead to an increase in the radiological activity of the raw materials used. This process must then minimize the generation of dust and limit equipment maintenance operations, thanks to a good flowability of powders, while obtaining pellets fulfilling the various specifications. To this end, the conditioning method is a key step of the manufacturing process in order to produce agglomerates with appropriate characteristics, which should lead to an improvement of the flowability of the initial powder.

In this thesis, the impact of the conditioning method on the physical, mechanical and rheological characteristics of powders was studied in order to establish a link between physical characteristics and rheological behaviour. Also, a modelling approach (DEM) was initiated in order to simulate the rheological behaviour of powders during the transfer operations of the industrial process. Two conditioning methods were investigated to determine the conditions that improve the flowability of the same initial ground powder: one method using a V-blender and another method using a Frewitt oscillating and rotating mill. Beforehand, the establishment of a characterization methodology was necessary in order to be able to perform a maximum number of measurements with a minimum amount of powder. The conditioning method leading to the best flowability improvement was the Frewitt conditioning method with a 250  $\mu\text{m}$  sieve, followed by stirring and lubrication steps. The study of the impact of this conditioning method on powders with different initial characteristics showed a certain robustness of this method. Also, a study by multiple linear regression highlighted the relative importance of the powders physical and mechanical characteristics on their rheological properties. Finally, an optimized calibration method of the simulation parameters by LHS-Krigeage-EGO was implemented.

*Keywords: powder rheology, physical and mechanical characteristics, powder metallurgy, uranium oxide, FT4 rheometer, DEM.*

# TABLE DES MATIÈRES

---

<b>REMERCIEMENTS</b> .....	<b>I</b>
<b>RÉSUMÉ</b> .....	<b>III</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>IV</b>
<b>TABLE DES MATIÈRES</b> .....	<b>V</b>
<b>LISTE DES FIGURES</b> .....	<b>IX</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX</b> .....	<b>XV</b>
<b>NOMENCLATURE</b> .....	<b>XVII</b>
<b>INTRODUCTION GÉNÉRALE</b> .....	<b>1</b>
<b>CHAPITRE I : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE</b> .....	<b>7</b>
1. <b>CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES</b> .....	<b>8</b>
1. 1. <i>Caractéristiques physiques des poudres</i> .....	<b>8</b>
1. 1. 1. Taille et distribution granulométrique .....	8
1. 1. 2. Morphologie et rugosité de surface.....	8
1. 1. 3. Porosités et masses volumiques .....	10
1. 1. 4. Surface spécifique .....	10
1. 2. <i>Caractéristiques mécaniques des particules</i> .....	<b>10</b>
1. 2. 1. Description des contraintes et déformations subies par les particules .....	11
1. 2. 2. Description des mécanismes de destruction des particules .....	11
1. 2. 3. Propriétés mécaniques des particules .....	12
1. 2. 4. Mesure des propriétés mécaniques des particules.....	14
2. <b>COMPORTEMENT DES POUDRES</b> .....	<b>16</b>
2. 1. <i>Forces interparticulaires</i> .....	<b>16</b>
2. 1. 1. Généralités .....	16
2. 1. 2. Description des forces subies par une particule .....	16
2. 1. 3. Importance relative des différentes forces .....	18
2. 1. 4. Quantification des forces de cohésion .....	21
2. 2. <i>Quantification de la coulabilité</i> .....	<b>23</b>
2. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	24
2. 2. 2. Écoulement dynamique .....	30
2. 2. 3. Propriétés du lit de poudre .....	32
2. 2. 4. Caractérisation de l'écoulement de poudres dans un procédé de fabrication .....	35
3. <b>LIEN ENTRE LES ÉTAPES DES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE ET LE COMPORTEMENT DES POUDRES</b> .....	<b>37</b>
3. 1. <i>Différentes méthodes de préparation du milieu granulaire et leur impact sur les caractéristiques des poudres</i> .....	<b>37</b>
3. 1. 1. Méthodes de préparation du milieu granulaire et leur impact sur les caractéristiques des poudres.....	37
3. 1. 2. Impact de certaines étapes de transfert sur le comportement de la poudre .....	41

3. 2. Influence des caractéristiques des poudres sur leur comportement .....	42
3. 2. 1. Influence de la distribution granulométrique .....	42
3. 2. 2. Influence de la morphologie et de la rugosité de surface .....	43
3. 2. 3. Influence de l'humidité .....	43
3. 2. 4. Influence de la température .....	43
<b>4. SIMULATION POUR L'ÉTUDE À L'ÉCHELLE INDUSTRIELLE .....</b>	<b>43</b>
4. 1. Présentation de la méthode des éléments discrets .....	44
4. 1. 1. Principes de la DEM.....	44
4. 1. 2. Présentation des modèles de contact.....	45
4. 2. Calibration des paramètres de simulation.....	47
4. 2. 1. Échantillonnage par Hypercube Latin (LHS) .....	48
4. 2. 2. Krigeage .....	48
4. 2. 3. Efficient Global Optimization (EGO).....	49
<b>5. BILAN.....</b>	<b>51</b>
<b>CHAPITRE II : MATÉRIEL ET MÉTHODES.....</b>	<b>55</b>
1. MANIPULATION DE L'UO <sub>2</sub> AU SEIN D'UNE ICPE.....	56
2. ÉTAPES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE .....	56
2. 1. Broyage.....	56
2. 2. Préparation du milieu granulaire.....	58
2. 2. 1. Mélangeur en V.....	60
2. 2. 2. Association du Frewitt et du Turbula (voie Frewitt).....	61
2. 2. 3. Synoptique de fabrication .....	62
3. CARACTÉRISATIONS PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES .....	64
3. 1. Caractérisations physiques des poudres.....	64
3. 1. 1. Granulométrie en voie sèche .....	64
3. 1. 2. Morphologie.....	64
3. 1. 3. Porosités externe et interne .....	65
3. 1. 4. Surface spécifique .....	66
3. 1. 5. Observations de la structure des agglomérats.....	66
3. 2. Caractérisations mécaniques des poudres .....	66
3. 2. 1. Tests d'écrasement .....	66
3. 2. 2. Test d'abrasion .....	68
4. CARACTÉRISATIONS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....	68
4. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	68
4. 1. 1. Test de cisaillement.....	68
4. 1. 2. Écoulement à travers un orifice .....	70
4. 1. 3. Frottements aux parois (wall friction).....	70
4. 2. Écoulement dynamique (Variable Flow Rate VFR) .....	71
4. 3. Propriétés du lit de poudre .....	74
4. 3. 1. Test de perméabilité .....	74
4. 3. 2. Test de tassement .....	74
4. 3. 3. Test de compressibilité .....	74
4. 3. 4. Angle de repos .....	75
5. ANALYSE DES PASTILLES EN GÉOMÉTRIE CYLINDRIQUE.....	76
5. 1. Fabrication des pastilles .....	76
5. 2. Caractérisation des pastilles.....	76
5. 2. 1. Densité et porosités des pastilles frittées .....	76
5. 2. 2. Observation de la microstructure .....	77
6. ÉTABLISSEMENT D'UNE MÉTHODOLOGIE POUR UNE OPTIMISATION DES QUANTITÉS DE POUDRE UTILISÉES .....	77
6. 1. Méthodologie des caractérisations hors FT4.....	78
6. 1. 1. Caractérisations ne nécessitant pas d'étude de destructivité.....	78
6. 1. 2. Caractérisations nécessitant une étude de destructivité .....	79
6. 1. 3. Méthodologie globale retenue .....	80

6. 2. <i>Méthodologie pour les tests FT4</i> .....	82
6. 2. 1. Étude de destructivité de chaque test FT4.....	82
6. 2. 2. Détermination d'une méthode de vérification rapide de la destructivité .....	85
6. 2. 3. Méthodologie retenue .....	86
6. 2. 4. Comparaison entre les tests uniques et les tests en série .....	86
7. BILAN .....	89
<b>CHAPITRE III : IMPACT DES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE SUR LES CARACTÉRISTIQUES ET LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....</b>	<b>93</b>
1. DÉMARCHE .....	94
2. VOIE MÉLANGEUR EN V .....	95
2. 1. <i>Impact sur les caractéristiques physiques et mécaniques des poudres</i> .....	95
2. 1. 1. Caractéristiques physiques des poudres .....	95
2. 1. 2. Caractéristiques mécaniques des poudres.....	101
2. 1. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques après mélangeur en V.....	102
2. 2. <i>Impact sur les propriétés rhéologiques des poudres</i> .....	103
2. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	104
2. 2. 2. Écoulement dynamique (test VFR).....	106
2. 2. 3. Propriétés du lit de poudre .....	106
2. 2. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques après mélangeur en V .....	109
2. 3. <i>Fabrication des pastilles</i> .....	110
3. VOIE FREWITT .....	111
3. 1. <i>Impact sur les caractéristiques physiques et mécaniques des poudres</i> .....	111
3. 1. 1. Caractéristiques physiques des poudres .....	111
3. 1. 2. Caractéristiques mécaniques des poudres.....	116
3. 1. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques après la voie Frewitt .....	117
3. 2. <i>Impact sur les propriétés rhéologiques des poudres</i> .....	119
3. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	119
3. 2. 2. Écoulement dynamique (test VFR).....	121
3. 2. 3. Propriétés du lit de poudre .....	122
3. 2. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques après la voie Frewitt .....	124
3. 3. <i>Fabrication des pastilles</i> .....	125
4. SYNTHÈSE.....	127
5. BILAN .....	128
<b>CHAPITRE IV : ÉTUDE DE DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE ET DU LIEN ENTRE CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT .....</b>	<b>133</b>
1. IMPACT DE LA VOIE FREWITT SUR DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE.....	134
1. 1. <i>Démarche et présentation des deux lots de poudre broyée</i> .....	134
1. 2. <i>Impact de la voie Frewitt sur les caractéristiques physiques et mécaniques des poudres</i> .....	136
1. 2. 1. Impact sur les caractéristiques physiques des poudres .....	136
1. 2. 2. Impact sur les caractéristiques mécaniques des poudres .....	144
1. 2. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques pour les deux lots de poudre .....	145
1. 3. <i>Impact sur les propriétés rhéologiques des poudres</i> .....	147
1. 3. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	147
1. 3. 2. Écoulement dynamique (test VFR).....	151
1. 3. 3. Propriétés du lit de poudre .....	153
1. 3. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques pour les deux lots de poudre .....	156
1. 4. <i>Fabrication des pastilles</i> .....	156
1. 5. <i>Conclusion</i> .....	159
2. LIEN ENTRE LES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET LEURS PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT .....	160
2. 1. <i>Définitions et notations</i> .....	160
2. 2. <i>Démarche</i> .....	162

2. 3. <i>Analyse par régression linéaire multiple</i> .....	163
2. 3. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique) .....	163
2. 3. 2. Écoulement dynamique .....	166
2. 3. 3. Propriétés du lit de poudre .....	168
2. 4. <i>Conclusion</i> .....	172
3. <b>BILAN</b> .....	173
<b>CHAPITRE V : CALIBRATION DES PARAMÈTRES DE SIMULATION PAR LHS-KRIGEAGE-EGO POUR DES SIMULATIONS DEM</b> .....	<b>179</b>
1. <b>MATÉRIEL ET MÉTHODE</b> .....	180
1. 1. <i>LIGGGHTS</i> .....	180
1. 2. <i>Paraview</i> .....	180
1. 3. <i>Onshape</i> .....	180
1. 4. <i>Package Python Surrogate Modeling Toolbox</i> .....	180
2. <b>ESSAIS POUR CALIBRER LES PARAMÈTRES DE SIMULATION</b> .....	180
2. 1. <i>Angle de repos</i> .....	181
2. 2. <i>Test de tassement</i> .....	184
3. <b>CALIBRATION DES PARAMÈTRES PAR LHS-KRIGEAGE-EGO</b> .....	186
3. 1. <i>Paramètres de simulation</i> .....	186
3. 1. 1. Paramètres à calibrer .....	186
3. 1. 2. Caractéristiques des particules, modèle de contact et pas de temps .....	187
3. 1. 3. Géométrie .....	187
3. 1. 4. Énergie cinétique limite .....	187
3. 1. 5. Valeurs expérimentales et fonction objectif .....	188
3. 1. 6. Récapitulatif .....	188
3. 2. <i>Algorithme de simulation</i> .....	189
3. 3. <i>Application de la méthode de calibration</i> .....	190
4. <b>BILAN</b> .....	191
<b>CONCLUSION GÉNÉRALE</b> .....	<b>197</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b> .....	<b>203</b>
<b>ANNEXES</b> .....	<b>213</b>

## LISTE DES FIGURES

---

Figure 1 : Pastille annulaire.....	1
Figure 2 : Schéma des deux principaux procédés de fabrication utilisés par le passé.....	2
Figure 3 : Schéma récapitulatif des principaux axes d'étude de le thèse .....	4
Figure I.1 : Présentation de la forme (1), l'angularité (2) et la texture de surface (3) [ISO 2008] .....	9
Figure I.2 : Représentation schématique des différentes contraintes [Vaidya and Pathak 2019].....	11
Figure I.3 : Différents phénomènes de destruction des agglomérats : la fragmentation (a), l'attrition (b) et l'abrasion (c) [Daouadji and Hicher 2010].....	12
Figure I.4 : Schéma du test d'écrasement [Kahrizsangi et al. 2016] .....	14
Figure I.5 : Courbe de force - déplacement obtenus lors d'un test d'écrasement [Antonyuk et al. 2005] .....	15
Figure I.6 : Pont liquide entre deux sphères séparées de la distance a [Seville et al. 2000].....	18
Figure I.7 : Influence de la distance a entre une particule sphérique et une paroi sur les forces d'adhésion $F_H$ [Schulze 2008] (1) pont liquide, (2) force électrostatique pour un matériau conducteur, (3) force électrostatique pour un matériau isolant, (4) force de Van der Waals.....	19
Figure I.8 : Influence de la taille des particules (a) sur les forces d'adhésion $F_H$ [Schulze 2008] et (b) sur les forces de cohésion [Seville et al. 2000].....	20
Figure I.9 : Influence de la rugosité r de surface sur les forces d'adhésion $F_H$ entre une particule et une paroi [Schulze 2008] .....	21
Figure I.10 : Schéma pour le calcul des forces de cohésion.....	22
Figure I.11 : Niveau de contraintes appliquées aux poudres selon les étapes procédé [Leturia et al. 2014].....	24
Figure I.12 : Présentation des étapes du test de compression uniaxiale [Schulze 2008].....	24
Figure I.13 : Graphique de la fonction d'écoulement et de la classification de Jenike [Schulze 2008]	25
Figure I.14 : Présentation des étapes du test de cisaillement [Schulze 2008] .....	26
Figure I.15 : Evolution de la contrainte de cisaillement en fonction du temps (à gauche), représentation de la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale (à droite) [Schulze 2008] ..	26
Figure I.16 : Tracé des cercles de Mohr [Schulze 2008].....	27
Figure I.17 : Analyse des cercles de Mohr [Schulze 2008].....	28
Figure I.18 : Schéma du test d'écoulement à travers un orifice [Schulze 2008] .....	29
Figure I.19 : schéma de test de frottement poudre-paroi [Schulze 2008].....	29
Figure I.20 : graphique du lieu d'écoulement à la paroi [Schulze 2008] .....	30
Figure I.21 : Présentation du test VFR [Freeman 2007].....	30
Figure I.22 : Variation de l'énergie de flux en fonction de la vitesse de l'air lors d'un test d'aération [Leturia et al. 2014].....	31
Figure I.23 : Classification de Geldart [Leturia and Saleh 2014].....	32
Figure I.24 : Schéma du test de compressibilité [Schulze 2008].....	34

---

Figure I.25 : Présentation d'une mesure d'angle de repos [Schulze 2008] .....	34
Figure I.26 : Angle de repos pour les poudres cohésives [Schulze 2008].....	34
Figure I.27 : Différents modes d'écoulement dans un silo [Saleh and Guigon 2012].....	35
Figure I.28 : Mécanismes de broyage [Seiss 1995].....	38
Figure I.29 : Image du mélangeur en V du DEC/SA3E placé en BâG (a) et de sa turbine située le long de son axe de rotation (b) .....	39
Figure I.30 : Image de l'OscilloWitt-Lab (de la marque Frewitt) du DEC/SA3E placé en BâG.....	39
Figure I.31 : étapes effectuées lors de la simulation par DEM [Parant 2016].....	44
Figure I.32 : Enchevêtrement interparticulaire.....	46
Figure I.33 : Répartition des variables A et B après LHS .....	48
Figure I.34 : Exemple de la méthode EGO [Bouhlef et al. 2019] .....	50
Figure II.1 : Images de la BâG Mélangeur en V (a), Frewitt (b) et du granulomètre laser en voie sèche et du rhéomètre FT4 (c) .....	56
Figure II.2 : Images des agglomérats (a) et des agrégats d'une poudre $UO_2$ (b) et de la chamotte d' $UO_2$ (c) (microscope électronique à balayage).....	57
Figure II.3 : Exemple d'essai réalisé avec la voie mélangeur en V.....	60
Figure II.4 : Étapes du traitement d'images .....	65
Figure II.5 : Photographies de la presse Instron (a) et des agglomérats placés sur le support (b).....	67
Figure II.6 : Exemples de détermination du diamètre et de la force à la rupture de deux agglomérats	67
Figure II.7 : Photo de la pale à la fin du conditionnement au rhéomètre FT4 [Freeman et al. 2009] ...	68
Figure II.8 : Photo de la cellule de cisaillement du rhéomètre FT4 [Freeman et al. 2009] .....	69
Figure II.9 : Photographie de la réglette perforée en géométrie annulaire .....	70
Figure II.10 : Dispositif utilisé pour les mesures du frottement poudre-paroi dans le rhéomètre FT4 .	71
Figure II.11 : Détermination de l'angle de frottement poudre-paroi .....	71
Figure II.12 : Protocole de mesure du test VFR .....	72
Figure II.13 : Zones de transmission des contraintes pendant le test VFR dans le cas d'une poudre cohésive (a) et d'une poudre à écoulement libre (b) .....	73
Figure II.14 : Compressibilité d'une poudre cohésives (a) et d'une poudre non cohésive (b).....	75
Figure II.15 : Dispositif mis en place pour réaliser les mesures de l'angle de repos .....	75
Figure II.16 : Photographie de pastilles frittées.....	76
Figure II.17 : Photographie d'une pastille découpée pour les observations de la microstructure .....	77
Figure II.18 : Diamètres équivalents avant/après la mesure de l'écoulement à travers un orifice .....	79
Figure II.19 : Diamètres équivalents avant/après le test de l'angle de repos .....	80
Figure II.20 : Diamètres équivalents avant/après le test de tassement .....	80
Figure II.21 : Protocole de mesure optimisé dans le cadre de poudre disponible en quantité limitée...	81
Figure II.22 : Diamètres équivalents avant/après le test de perméabilité.....	82
Figure II.23 : Diamètres équivalents avant/après le test de compressibilité.....	83
Figure II.24 : Diamètres équivalents avant/après le test de frottement poudre-paroi.....	83
Figure II.25 : Diamètres équivalents avant/après le test de cisaillement.....	84
Figure II.26 : Diamètres équivalents avant/après le test VFR .....	84
Figure II.27 : évolution de la perméabilité en fonction du pourcentage massique de fines .....	85
Figure II.28 : Enchaînement des tests réalisés au rhéomètre FT4 (test en série).....	86
Figure II.29 : Comparaison des résultats du test de cisaillement à 15 kPa entre une poudre n'ayant rien subi (test unique) et une poudre ayant subi un enchaînement de tests au FT4 (test en série) .....	88
Figure II.30 : Comparaison des résultats du test VFR entre une poudre n'ayant rien subi (test unique) et une poudre ayant subi un enchaînement de tests au FT4 (test en série).....	89
Figure III.1 : Récapitulatif des échantillons étudiés.....	94
Figure III.2 : Présentation des différents phénomènes [Sastry and Fuerstenau 1973] .....	95

Figure III.3 : Distributions granulométriques après le mélangeur en V avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min <sup>-1</sup> .....	96
Figure III.4 : Distributions granulométriques après le mélangeur en V avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min <sup>-1</sup> .....	96
Figure III.5 : Valeurs du span des distributions granulométriques après mélangeur en V.....	97
Figure III.6 : Fréquence cumulée en volume de l'élongation pour le mélangeur en V à 2000 tours.min <sup>-1</sup> .....	98
Figure III.7 : Fréquence cumulée en volume de la circularité pour le mélangeur en V à 2000 tours.min <sup>-1</sup> .....	99
Figure III.8 : Fréquence cumulée en volume de l'élongation pour le mélangeur en V à 4000 tours.min <sup>-1</sup> .....	99
Figure III.9 : Fréquence cumulée en volume de la circularité pour le mélangeur en V à 4000 tours.min <sup>-1</sup> .....	100
Figure III.10 : Valeurs du taux d'abrasion après le mélangeur en V.....	102
Figure III.11 : Valeurs de la fonction d'écoulement après mélangeur en V.....	104
Figure III.12 : Valeurs du diamètre d'écoulement spontané après mélangeur en V (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette).....	105
Figure III.13 : Valeurs du FRI et du BFE après mélangeur en V.....	106
Figure III.14 : Valeurs de la perméabilité après mélangeur en V.....	107
Figure III.15 : Valeurs de la compressibilité après mélangeur en V.....	108
Figure III.16 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées (a) GrC-PB-L, (b) GrC-MeV2000-BL et (c) GrC-MeV4000-BL (microscopie optique).....	110
Figure III.17 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités ouvertes et fermées des pastilles après mélangeur en V.....	111
Figure III.18 : Distributions granulométriques après la voie Frewitt avec un tamis de 250 µm.....	112
Figure III.19 : Distributions granulométriques après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm.....	112
Figure III.20 : Valeurs du span des distributions granulométriques après la voie Frewitt.....	113
Figure III.21 : Élongation après la voie Frewitt avec un tamis de 250 µm.....	114
Figure III.22 : Circularité après la voie Frewitt avec un tamis de 250 µm.....	114
Figure III.23 : Élongation après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm.....	115
Figure III.24 : Circularité après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm.....	115
Figure III.25 : Valeurs du taux d'abrasion après la voie Frewitt.....	117
Figure III.26 : Valeurs de la fonction d'écoulement après la voie Frewitt.....	120
Figure III.27 : Valeurs du diamètre d'écoulement spontané après la voie Frewitt (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette).....	121
Figure III.28 : Valeurs du FRI et du BFE après la voie Frewitt.....	121
Figure III.29 : Valeurs de la perméabilité après la voie Frewitt.....	122
Figure III.30 : Valeurs de la compressibilité après la voie Frewitt.....	124
Figure III.31 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées (a) GrC-PB-L, (b) GrC-Frew250-BL et (c) GrC-Frew500-BL (microscopie optique).....	126
Figure III.32 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités des pastilles après la voie Frewitt.....	127
Figure IV.1 : Application de la voie Frewitt aux lots GrC et FaC.....	134
Figure IV.2 : Distributions granulométriques des poudres broyées des lots GrC et FaC.....	135
Figure IV.3 : Élongation (a) et circularité (b) des poudres broyées des lots GrC et FaC.....	135
Figure IV.4 : Distributions granulométriques des poudres issues du lot GrC.....	136
Figure IV.5 : Distributions granulométriques des poudres issues du lot FaC.....	137
Figure IV.6 : Valeurs du Span pour les poudres issues des lots GrC et FaC.....	137

Figure IV.7 : Élongation après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot GrC.....	139
Figure IV.8 : Circularité après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot GrC .....	140
Figure IV.9 : Élongation après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot FaC.....	140
Figure IV.10 : Circularité après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot FaC .....	141
Figure IV.11 : Micrographie MEB de la structure des agglomérats (FaC-PB) (a), zoom sur une partie dense (b) et micrographie MEB de la chamotte (c) (microscopie électronique à balayage).	
Remarque : les zones qui apparaissent plus claires ont des densités plus élevées. ....	143
Figure IV.12 : Valeurs du taux d'abrasion pour le lot GrC et le lot FaC .....	145
Figure IV.13 : Fonction d'écoulement des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour le lot GrC (a) et le lot FaC (b) .....	148
Figure IV.14 : Valeurs du diamètre d'écoulement des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette).....	150
Figure IV.15 : Valeurs des angles de frottement poudre-paroi pour le lot FaC .....	151
Figure IV.16 : Valeurs du FRI et du BFE des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots de poudres .....	152
Figure IV.17 : Valeurs de la perméabilité des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots de poudres .....	153
Figure IV.18 : Valeurs de la compressibilité des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés.....	155
Figure IV.19 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées (a) GrC-PB-L, (b) GrC-Frew250-BL, (c) FaC-PB-L et (d) FaC-Frew250-BL (microscopie optique).....	158
Figure IV.20 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités des pastilles frittées pour les poudres lubrifiées .....	159
Figure IV.21 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le $ffc$ à 3 kPa .....	164
Figure IV.22 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le AIF à 3 kPa .....	165
Figure IV.23 : Valeurs calculées par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et variation de l'AIF à 3 kPa en fonction du taux d'abrasion (à droite).....	166
Figure IV.24 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le FRI .....	167
Figure IV.25 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour la perméabilité .....	169
Figure IV.26 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour l'indice de Carr .....	171
Figure IV.27 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour la compressibilité à 15 kPa .....	172
Figure V.1 : Entonnoir rempli par des particules .....	181
Figure V.2 : Vidange de l'entonnoir et formation d'un talus sur le plateau.....	182
Figure V.3 : Talus formé par la poudre .....	182
Figure V.4 : Calcul de l'angle de repos.....	182
Figure V.5 : Comparaison de l'angle de repos calculé avec l'angle réel. En jaune : l'angle de repos calculé. En vert : l'angle de repos réel calculé en traçant une droite de tendance. ....	183
Figure V.6 : Algorithme de simulation de l'angle de repos .....	183
Figure V.7 : Éprouvette remplie de particules.....	184
Figure V.8 : Fermeture de l'éprouvette .....	185
Figure V.9 : Particules tassées dans l'éprouvette .....	185

Figure V.10 : Algorithme du remplissage de l'éprouvette (à gauche) et du tassement (à droite) .....	186
Figure V.11 : Algorithme de calibration .....	189



## LISTE DES TABLEAUX

---

Tableau I.1 : Paramètres permettant de caractériser la morphologie des particules [ISO 2008].....	9
Tableau I.2 : Présentation du rapport d’Hausner et de l’indice de Carr .....	33
Tableau I.3 : Influence des opérations étudiées sur les caractéristiques physiques des poudres.....	40
Tableau II.1 : Comparaison des conditions de broyage des deux lots étudiés et des chamottes correspondantes .....	58
Tableau II.2 : Récapitulatif des appareils utilisés.....	59
Tableau II.3 : Paramètres utilisés pour les essais au mélangeur en V .....	61
Tableau II.4 : Paramètres utilisés pour les essais de la voie Frewitt .....	62
Tableau II.5 : Valeurs des contraintes normales appliquées lors du test de cisaillement au rhéomètre FT4.....	69
Tableau II.6 : Dimensions des réglottes perforées.....	70
Tableau II.7 : Récapitulatif des tests destructifs/non destructifs et de la quantité de poudre nécessaire pour caractériser les échantillons .....	81
Tableau II.8 : Comparaison des tests d’écrasement entre une poudre n’ayant subi aucun test et une poudre ayant subi un test de tassement .....	82
Tableau III.1 : Valeurs de la surface spécifique après mélangeur en V .....	101
Tableau III.2 : Valeurs des constantes et modules de Weibull après mélangeur en V .....	101
Tableau III.3 : Modification des caractéristiques physiques et mécaniques après mélangeur en V....	103
Tableau III.4 : Indice de coulabilité $ffc$ , cohésion et angle de frottement interne AIF après mélangeur en V .....	104
Tableau III.5 : Valeurs des indices de Carr et rapports d’Hausner après mélangeur en V .....	107
Tableau III.6 : Modification des propriétés rhéologiques après mélangeur en V .....	109
Tableau III.7 : Valeurs de la surface spécifique après la voie Frewitt .....	116
Tableau III.8 : Valeurs des constantes et modules de Weibull après la voie Frewitt .....	117
Tableau III.9 : Modification des caractéristiques physiques et mécaniques après la voie Frewitt.....	119
Tableau III.10 : Indice de coulabilité $ffc$ , cohésion et angle de frottement interne AIF après la voie Frewitt.....	120
Tableau III.11 : Valeurs des indices de Carr et rapports d’Hausner après la voie Frewitt .....	123
Tableau III.12 : Modification des propriétés rhéologiques après la voie Frewitt.....	125
Tableau III.13 : Récapitulatif des différentes caractéristiques et propriétés étudiées .....	128
Tableau IV.1 : Valeurs des $d_{10}$ , $d_{50}$ , $d_{90}$ , $d_{3,2}$ et du Span pour les échantillons des 2 lots de poudre....	138
Tableau IV.2 : Valeurs de surface spécifique pour le lot GrC et le lot FaC.....	142

---

Tableau IV.3 : Valeurs des compacités des agglomérats pour le lot FaC .....	143
Tableau IV.4 : Valeurs des constantes et modules de Weibull pour le lot GrC et le lot FaC.....	144
Tableau IV.5 : Points communs et différences entre les poudres du lot GrC et FaC après chaque étape de préparation du milieu granulaire .....	146
Tableau IV.6 : Indice de coulabilité $ffc$ , cohésion et angle de frottement interne AIF des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les 2 lots étudiés.....	148
Tableau IV.7 : Valeurs des indices de Carr et rapports d’Hausner des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les 2 lots étudiés .....	154
Tableau IV.8 : Régression linéaire multiple pour le $ffc$ à 3 kPa.....	163
Tableau IV.9 : Régression linéaire multiple pour l’AIF à 3 kPa.....	164
Tableau IV.10 : Régression linéaire multiple pour le FRI .....	167
Tableau IV.11 : Régression linéaire multiple pour la perméabilité.....	168
Tableau IV.12 : Régression linéaire multiple pour l’indice de Carr.....	170
Tableau IV.13 : Régression linéaire multiple pour la compressibilité à 15 kPa.....	171
Tableau V.1 : Paramètres de simulation et résultats expérimentaux .....	188
Tableau V.2 : Valeurs calibrées des quatre paramètres de simulation .....	191
Tableau V.3 : Résultats issus des expériences, du krigeage et des simulations par DEM .....	191

# NOMENCLATURE

---

## NOTATIONS

BàG : Boite à Gants	LCU : Laboratoire Combustible Uranium
CAO : Conception Assistée par Ordinateur	LHS : Latin Hypercube Sampling
DEM : Discret Element Method	MEB : Microscope Électronique à Balayage
EGO : Efficient Global Optimization	MeV : Mélangeur en V
EPSD : Elastic-Plastic Spring-Dashpot	MOX : Mélange d'OXYdes
FaC : poudre broyée dans une cuve de Faible Capacité	PB : Poudre Broyée
Frew : Frewitt	RNR-Na : Réacteurs à Neutrons Rapides refroidis au sodium
GrC : poudre broyée dans une cuve de Grande Capacité	SF : Shape Factor
ICPE : Installation Classée pour la Protection de l'Environnement	SMT : Surrogate Modeling Toolbox

## PRINCIPALES GRANDEURS UTILISÉES

AIF : Angle of Internal Friction (angle de frottement interne) (°)	$f_c$ : taux de remplissage de poudre
AoR : Angle of Repose (angle de repos) (°)	$ff_c$ : indice de coulabilité
BFE : Basic Flow Energy (J)	FRI : Flow Rate Index
CBD : Conditioned Bulk Density (g.mL <sup>-1</sup> )	HR : Hausner Ratio (Rapport d'Hausner)
CoF : Coefficient of Friction (coefficient de frottement particule-particule)	$J$ : taux de remplissage de galets (%)
CoR : Coefficient of Restitution (coefficient de restitution)	$k$ : perméabilité (cm <sup>2</sup> )
CoRF : Coefficient of Rolling Friction (coefficient de résistance au roulement)	$K$ : rapport de la masse de galets sur la masse de poudre
$d_{10}$ : diamètres correspondant à 10% de la fréquence cumulée en volume (µm)	$m$ : module de Weibull
$d_{50}$ : diamètres correspondant à 50% de la fréquence cumulée en volume (µm)	$R_{ajusté}^2$ : coefficient de détermination ajusté
$d_{90}$ : diamètres correspondant à 90% de la fréquence cumulée en volume (µm)	SF <sub>10</sub> : facteur de forme correspondant à 10% de la fréquence cumulée en volume
$d_{3,2}$ : diamètre de Sauter (µm)	SF <sub>50</sub> : facteur de forme correspondant à 50% de la fréquence cumulée en volume
	SF <sub>90</sub> : facteur de forme correspondant à 90% de la fréquence cumulée en volume

$SSR$  : Sum of Squares Residuals (somme des carrés des résidus)

$SST$  : Sum of Squares Total (somme totale des carrés de la régression)

$U$  : coefficient de remplissage poudre-galets

$X_i$  : variable indépendante de la régression linéaire multiple

$Y$  : variable dépendante de la régression linéaire multiple

$\beta_i$  : coefficient de la régression linéaire multiple

$\varepsilon$  : porosité du lit de poudre

$\nu$  : coefficient de Poisson

$\sigma(X_i)$  : écart-type de la variable indépendante  $X_i$

$\sigma_0$  : constante de Weibull (Pa)

$\sigma_1$  : contrainte de consolidation majeure (Pa)

$\sigma_c$  : contrainte à la rupture (Pa)

$\tau_c$  : cohésion (Pa)

$\Psi$  : sphéricité

# **INTRODUCTION GÉNÉRALE**

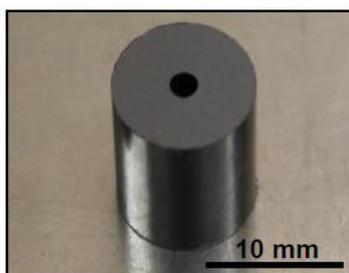


## INTRODUCTION GÉNÉRALE

---

Les réacteurs actuellement les plus présents dans le monde sont des réacteurs à eau légère, principalement des réacteurs à eau sous pression (REP) ou à eau bouillante (REB). Ces réacteurs fonctionnent avec de l'uranium enrichi c'est-à-dire de l'uranium contenant une proportion d'uranium 235 ( $^{235}\text{U}$ ) plus importante que celle contenue dans l'uranium naturel. Au terme de son irradiation, le combustible est dit « usé ». Il est composé d'environ 95% d'uranium résiduel, de 4% de produits de fission et de 1% d'éléments dits « transuraniens » (essentiellement du plutonium et des « actinides mineurs » en faible quantité) [DEN 2015]. La stratégie d'une optimisation des ressources en uranium via notamment le multi-recyclage du plutonium, conduit à envisager le déploiement de réacteurs à neutrons rapides (RNR). De par leur spectre rapide de neutrons, ces réacteurs favorisent la fission des noyaux lourds. Ainsi, les RNR favorisent la fission des isotopes du plutonium, de l'uranium 238 ( $^{238}\text{U}$ ) et des actinides mineurs (appelée transmutation), permettant ainsi de valoriser le plutonium issu des autres types de réacteurs et des RNR, d'optimiser l'utilisation de l'uranium naturel et de diminuer la quantité et la toxicité des déchets nucléaires [DEN 2015]. Cela permettrait donc une économie des ressources ainsi qu'une réduction des déchets [DEN 2017].

Il existe plusieurs filières de réacteurs RNR selon la nature physique du combustible (solide ou liquide) ou selon la nature du caloporteur (sodium, plomb, gaz). En France, le combustible envisagé pour les futurs RNR refroidis au sodium (RNR-Na), filière présentant le degré de maturité le plus avancé, est un combustible MOX (Mélange d'Oxydes) dont certaines caractéristiques diffèrent de celles des combustibles utilisés pour les REP actuels [Guérin 2008] ou pour les RNR du passé. Ainsi, ce combustible pourrait être composé d'oxyde d'uranium  $\text{UO}_2$  et d'oxyde de plutonium  $\text{PuO}_2$  jusqu'à 35% massique, et son procédé de fabrication devra permettre la mise en œuvre de plutonium multi-recyclé. Ces caractéristiques, une forte teneur en plutonium associée à une composition isotopique dégradée (incluant une forte proportion de  $^{238}\text{Pu}$ ), entraîneront une augmentation de l'activité radiologique au sein des matières premières mises en œuvre. Par ailleurs, de même que pour les combustibles RNR-Na historiques, il est envisagé une répartition homogène de l'uranium et du plutonium ainsi qu'une géométrie annulaire (Figure 1) [DEN 2017].



*Figure 1 : Pastille annulaire*

Les deux principaux procédés utilisés par le passé pour la fabrication de combustible RNR-Na sont le procédé COCA (Cobroyage Cadarache) [Nigon and Bastard 2003; Haas et al. 1994] et le procédé RNR [Bailly 1982] (Figure 2). Ces deux procédés sont basés sur une préparation par métallurgie des poudres incluant dans un premier temps une étape de broyage et d'homogénéisation des oxydes d'uranium et de plutonium dans un broyeur à boulets. Après cette opération, une étape de préparation du milieu granulaire est réalisée : une granulation mécanique suivie d'une sélection granulométrique pour le procédé RNR et une étape de tamisage/forçage pour le procédé COCA. Ainsi, seule l'étape de préparation du milieu granulaire diffère pour ces deux procédés. Un lubrifiant est ensuite ajouté au mélange obtenu après l'étape de préparation du milieu granulaire. Les poudres sont enfin compactées puis les pastilles sont frittées.

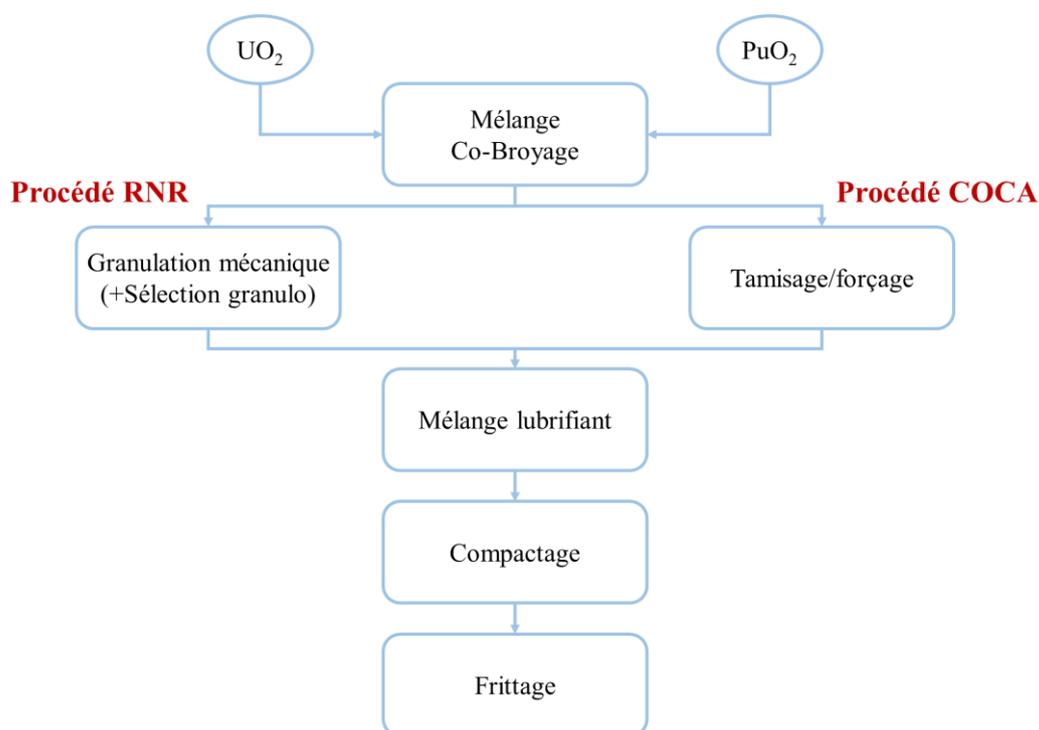


Figure 2 : Schéma des deux principaux procédés de fabrication utilisés par le passé

Pour le procédé de fabrication des futurs combustibles RNR-Na, l'utilisation de plutonium multi-recyclé impose un regain d'attention, notamment envers les étapes intermédiaires qui :

- peuvent entraîner la génération de poussières, telles que la granulation mécanique ou le tamisage/forçage,
- nécessitent régulièrement des opérations de maintenance.

En effet, d'un point de vue radiologique, la présence de poussières radioactives et la durée des opérations de maintenance sont susceptibles d'entraîner des doses supplémentaires pour les travailleurs,

notamment dans le cas de fortes teneurs en plutonium et de la mise en œuvre de plutonium d'isotopie dégradée. Ainsi, le procédé de fabrication de combustible pour les RNR-Na de quatrième génération devra permettre de :

- minimiser la génération de poussières par une préparation optimisée du milieu granulaire,
- limiter les opérations de maintenance via un bon écoulement des poudres tout au long du procédé et un nombre réduit d'étapes intermédiaires,
- conduire à l'obtention de pastilles répondant aux spécifications généralement requises pour du MOX (densité  $> 94\% m_v$ , répartition cationique homogène, contraintes dimensionnelles respectées).

La préparation du milieu granulaire est donc une étape clé du procédé dans la mesure où elle doit permettre d'atteindre ces objectifs, d'une part en minimisant la production de poussières, d'autre part en améliorant la coulabilité des poudres, et enfin en produisant des agglomérats de caractéristiques compatibles avec l'obtention d'une microstructure dense et homogène. L'enjeu de cette étape est donc d'améliorer la coulabilité de la poudre via la modification de la taille et de la morphologie des agglomérats qui la constituent. D'un point de vue mécanique, les agglomérats ainsi obtenus doivent être suffisamment solides pour ne pas être modifiés (attrition, fragmentation, etc.) lors des transferts/transports de poudre, mais suffisamment fragiles pour être détruits lors de l'étape de pressage (afin d'obtenir une microstructure homogène après frittage).

Dans ce contexte, une première thèse sur l'influence des caractéristiques physiques des poudres d' $UO_2$  sur leurs propriétés rhéologiques a été effectuée par Ahmed Madian au sein du DEC/SA3E/LCU du CEA Cadarache, en collaboration avec l'UTC [Madian 2019]. Ces travaux ont permis de mettre en évidence l'influence de la granulométrie et de la rugosité de surface des agglomérats d' $UO_2$  sur les propriétés d'écoulement.

Ce travail de thèse, réalisé au sein de IRESNE/DEC/SA3E/LCU en collaboration avec l'Université de Technologie de Compiègne (UTC), s'inscrit dans la continuité des travaux précédents avec deux objectifs principaux : d'une part, étudier l'effet du procédé de fabrication sur l'évolution des caractéristiques physiques des poudres, et d'autre part, comprendre l'effet de ces caractéristiques sur les propriétés d'écoulement des poudres. De même que la précédente étude, ce travail a été réalisé sur des poudres d' $UO_2$ , composé majoritaire des mélanges réels  $UO_2$ - $PuO_2$ , et permettant de diminuer de façon notable les contraintes expérimentales qui auraient été liées à la mise en œuvre de plutonium.

Pour répondre à ces deux objectifs, différents axes sont étudiés au cours de ce travail, selon une approche couplée expérimentation et simulation (Figure 3) :

- l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques des poudres,
- l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire sur le comportement rhéologique des poudres à échelle laboratoire,
- le lien entre les caractéristiques physiques des poudres et leur comportement rhéologique à échelle laboratoire,
- l'évolution des caractéristiques physiques des poudres lors des étapes de transfert,
- le comportement rhéologique des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle.

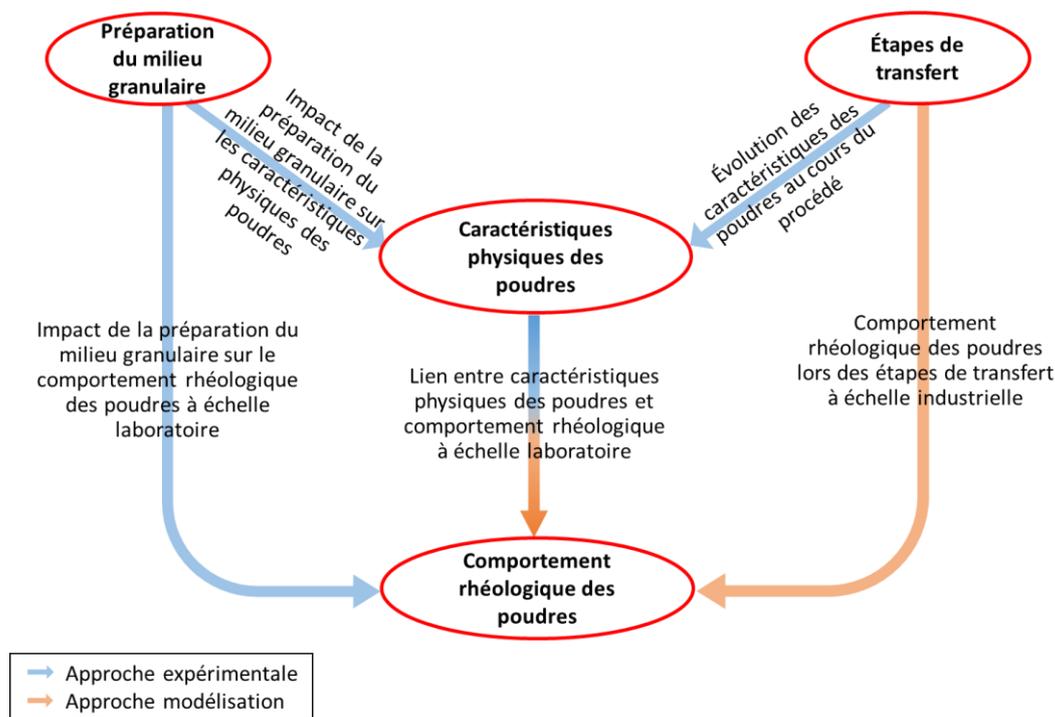


Figure 3 : Schéma récapitulatif des principaux axes d'étude de la thèse

Ce manuscrit est structuré en 5 chapitres et rapporte les principaux résultats obtenus au cours de ce travail de thèse, en lien avec les axes d'étude décrits en Figure 3.

Le chapitre 1 propose un état de l'art : les principales caractéristiques physiques et mécaniques des poudres sont présentées, ainsi que les propriétés comportementales des poudres, en termes de coulabilité et de ségrégation. Les données disponibles permettant d'établir un lien entre les étapes des méthodes de préparation du milieu granulaire utilisées dans ce travail et le comportement de la poudre sont décrites. Enfin, la simulation par la méthode des éléments discrets (DEM) est présentée.

Le chapitre 2 détaille les différentes étapes de préparation du milieu granulaire utilisées au cours de ces travaux, ainsi que les méthodes expérimentales de caractérisation mises en œuvre. Ce chapitre décrit également la mise en place d'une méthodologie permettant d'optimiser les caractérisations lorsque la quantité de poudre disponible est limitée.

Le chapitre 3 étudie l'impact de deux méthodes de préparation du milieu granulaire (mélangeur en V et moulin oscillant et rotatif Frewitt) sur les caractéristiques physiques, mécaniques et les propriétés rhéologiques des poudres. Ces deux méthodes sont comparées afin de déterminer celle qui conduit aux meilleures propriétés rhéologiques.

Le chapitre 4 a un double objectif. Le premier est d'étudier l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt sur les caractéristiques physiques, mécaniques et les propriétés rhéologiques des poudres sur deux lots de poudre broyée de caractéristiques différentes. Le second objectif est d'établir un lien mathématique (modèle) entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés rhéologiques.

Le chapitre 5 détaille la mise en place d'une méthode de calibration des paramètres de simulation pour la réalisation de simulations DEM, afin de simuler le comportement des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle. L'application de cette méthode sur une poudre modèle est ensuite présentée.

# **CHAPITRE I : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE**



# CHAPITRE I : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

---

*Ce premier chapitre présente un état de l'art. Dans un premier temps, les différentes caractéristiques physiques et mécaniques des poudres sont synthétisées. Un état de l'art sur le comportement des poudres, en termes de coulabilité et de ségrégation, est ensuite présenté. Une présentation du lien entre les étapes des méthodes de préparation du milieu granulaire utilisées dans ce travail et le comportement de la poudre est réalisée. Pour finir, la simulation par la méthode des éléments discrets est présentée.*

<b>1. CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES .....</b>	<b>8</b>
1. 1. CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES DES POUDRES .....	8
1. 2. CARACTÉRISTIQUES MÉCANIQUES DES PARTICULES .....	10
<b>2. COMPORTEMENT DES POUDRES .....</b>	<b>16</b>
2. 1. FORCES INTERPARTICULAIRES .....	16
2. 2. QUANTIFICATION DE LA COULABILITÉ .....	23
<b>3. LIEN ENTRE LES ÉTAPES DES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE ET LE COMPORTEMENT DES POUDRES .....</b>	<b>37</b>
3. 1. DIFFÉRENTES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE ET LEUR IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES .....	37
3. 2. INFLUENCE DES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES SUR LEUR COMPORTEMENT .....	42
<b>4. SIMULATION POUR L'ÉTUDE À L'ÉCHELLE INDUSTRIELLE .....</b>	<b>43</b>
4. 1. PRÉSENTATION DE LA MÉTHODE DES ÉLÉMENTS DISCRETS .....	44
4. 2. CALIBRATION DES PARAMÈTRES DE SIMULATION.....	47
<b>5. BILAN.....</b>	<b>51</b>

# 1. CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES

---

Une poudre est un assemblage de particules solides hétérogènes dispersées dans une phase continue gazeuse entre lesquelles s'exerce une multitude d'interactions [Saleh and Guigon 2009]. Les poudres possèdent des caractéristiques physiques et mécaniques dont les principales seront décrites au cours de cette section.

## 1. 1. CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES DES POUDRES

### 1. 1. 1. Taille et distribution granulométrique

Si une particule n'est pas sphérique, sa taille ne peut pas être assimilée à son diamètre. La notion de diamètre d'une sphère équivalente, appelé diamètre équivalent, a été définie de façon à ce que la sphère équivalente possède une caractéristique (surface, volume, etc.) ou un comportement (à la sédimentation par exemple) en commun avec la particule étudiée. Il existe donc de nombreux diamètres équivalents. Les plus utilisés sont les suivants [Saleh and Guigon 2009a; Allen 1988; Leturia and Saleh 2014] :

- Diamètre volumique équivalent  $d_V$  : diamètre d'une sphère ayant le même volume  $V$  que la particule,

$$V = \frac{\pi}{6} d_V^3 \quad (\text{Équation 1.1})$$

- Diamètre surfacique équivalent  $d_S$  : diamètre d'une sphère ayant la même surface externe  $S$  que la particule,

$$S = \pi d_S^2 \quad (\text{Équation 1.2})$$

- Diamètre surface-volume équivalent  $d_{SV}$  : diamètre d'une sphère ayant le même rapport surface/volume que la particule.

$$d_{SV} = \frac{d_V^3}{d_S^2} \quad (\text{Équation 1.3})$$

Afin d'obtenir une distribution granulométrique représentative de la population de particules, l'analyse de nombreuses particules est nécessaire. La distribution granulométrique est exprimée en volume, en masse, en surface ou en nombre. Différents diamètres moyens de la population de particules peuvent alors être utilisés. Le diamètre de Sauter, noté  $d_{3,2}$ , est représentatif de la surface spécifique des particules. Il est donc plus sensible aux fines particules. Les diamètres moyens  $d_{10}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{90}$  sont les diamètres correspondant à 10%, 50% et 90% de la fréquence cumulée en volume, en masse, en surface ou en nombre, respectivement.

### 1. 1. 2. Morphologie et rugosité de surface

Les particules peuvent avoir différentes formes (sphériques, cylindriques, anguleuses, etc.) et être lisses ou rugueuses. Afin de caractériser au mieux la morphologie des particules, trois propriétés de forme des particules doivent être étudiées et dépendent de l'échelle d'observation de la particule [ISO 2008] :

- La forme : elle caractérise la géométrie de la particule à échelle macroscopique,
- L'angularité : elle caractérise le rayon de courbure au bord de la particule à échelle mésoscopique,
- La rugosité de surface (texture de surface) : elle caractérise les irrégularités de surface de la particule à échelle microscopique.

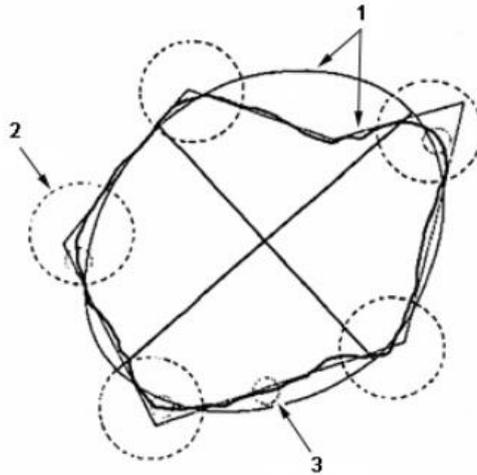


Figure I.1 : Présentation de la forme (1), l'angularité (2) et la texture de surface (3) [ISO 2008]

Pour caractériser la morphologie des particules, différents paramètres existent [Ferreira and Rasband 2012; ISO 2008]. Quatre paramètres, dont les valeurs sont comprises entre 0 et 1 (Tableau I.1), seront étudiés au cours de ce travail. Le diamètre de Feret minimal et maximal correspond à la distance minimale et maximale entre deux tangentes parallèles à la particule [ISO 2008].

Tableau I.1 : Paramètres permettant de caractériser la morphologie des particules [ISO 2008]

Paramètre	Formule	Schéma	Commentaire
Rapport d'aspect	$\frac{\text{Diamètre de Feret min}}{\text{Diamètre de Feret max}}$	 0,7    1    0,3    0,8    0,9	Caractérise la forme des particules
Élongation	$1 - \frac{\text{largeur du rectangle}^*}{\text{longueur du rectangle}^*}$	 0    0    0,7    0,2    0,1	Caractérise la forme des particules
Circularité	$4\pi \frac{\text{Aire}}{\text{Périmètre}^2}$	 0,9    1    0,7    0,4    0,5	Caractérise l'angularité des particules
Solidité	$\frac{\text{Aire}}{\text{Aire convexe}}$	 1    1    1    0,7    0,9	Caractérise l'angularité des particules

\* rectangle contenant la particule

Ces différents paramètres peuvent être obtenus par analyse d'images ou à l'aide d'un granulomorphomètre. Ils permettent de quantifier la forme et l'angularité des particules. La quantification de la rugosité de surface ne sera pas réalisée lors de cette étude.

### 1. 1. 3. Porosités et masses volumiques

Un lit de poudre est constitué de particules et de porosités. Lorsqu'une particule contient de la porosité, cette dernière est appelée porosité interne (ou intraparticulaire), notée  $\chi$  [Saleh and Guigon 2009]. Dans un lit de poudre, des porosités sont également présentes entre les particules et dépendent de l'arrangement des particules entre elles. Cette porosité est appelée porosité externe (ou interparticulaire) et est notée  $\varepsilon$  [Saleh and Guigon 2009a; Schulze 2008]. Par conséquent, il existe différentes masses volumiques [Saleh and Guigon 2009a; Schulze 2008] :

- Masse volumique vraie  $\rho_s$  : elle prend en compte uniquement le solide et ne tient pas compte des porosités interne et externe,
- Masse volumique apparente d'une particule  $\rho_p$  : elle prend en compte le solide et la porosité interne des particules,

$$\rho_p = (1 - \chi)\rho_s \quad (\text{Équation 1.4})$$

- Masse volumique en vrac d'une poudre  $\rho_a$  : elle prend en compte un lit de poudre avec les porosités interne et externe.

$$\rho_a = \frac{m_{\text{lit de poudre}}}{V_{\text{total}}} \quad (\text{Équation 1.5})$$

Selon l'état de compaction du lit de poudre, la masse volumique en vrac varie. Si la poudre est compactée, la porosité externe diminue et la masse volumique en vrac de la poudre augmente. C'est également le cas lorsque le lit de poudre est tassé. On définit alors la masse volumique tassée.

### 1. 1. 4. Surface spécifique

La surface spécifique représente la surface de l'ensemble des particules rapportée à la masse de poudre considérée, en prenant en compte la surface externe des particules et celle des porosités ouvertes [Saleh and Guigon 2009]. Plus elle est élevée, plus les interactions de la poudre avec son environnement sont importantes.

La surface spécifique est influencée par de nombreuses caractéristiques physiques des particules, telles que la taille, la morphologie, la rugosité de surface et la porosité. Plus les particules sont poreuses, de petite taille, de forme irrégulière ou de surface rugueuse, plus la surface spécifique est élevée.

## 1. 2. CARACTÉRISTIQUES MÉCANIQUES DES PARTICULES

Les caractéristiques mécaniques des particules peuvent influencer leurs caractéristiques physiques, et donc leur comportement, en fonction des contraintes qu'elles subissent.

### 1. 2. 1. Description des contraintes et déformations subies par les particules

Au cours d'un procédé ou des étapes de transport, les poudres peuvent subir différentes contraintes. Une contrainte, notée  $\sigma$  (Pa), est définie comme le rapport d'une force  $F$  (N), exercée sur une surface  $S$  (m<sup>2</sup>).

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad (\text{Équation 1.6})$$

Il existe trois types de contraintes, représentées en Figure I.2 [Vaidya and Pathak 2019] :

- Des contraintes en traction qui allongent le matériau jusqu'à la rupture,
- Des contraintes de compression qui tendent à compresser le matériau,
- Des contraintes de cisaillement qui appliquent des forces de sens opposé au matériau.

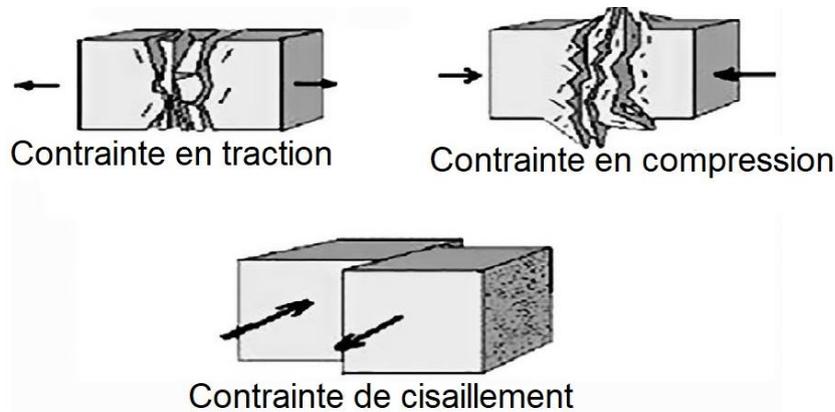


Figure I.2 : Représentation schématique des différentes contraintes [Vaidya and Pathak 2019]

Les particules d'une poudre peuvent également subir des déformations. Une déformation  $\varepsilon$  correspond à une modification de taille lorsqu'une force est appliquée au matériau.

$$\varepsilon = \frac{\Delta L}{L_0} \quad (\text{Équation 1.7})$$

où  $\Delta L$  est la variation de la longueur de l'échantillon (m) suite à la force appliquée et  $L_0$  la longueur initiale de l'échantillon (m).

Lorsqu'une particule est soumise à des contraintes ou à des déformations, son comportement dépendra de ses propriétés mécaniques, telles que la rigidité, la dureté, la ténacité et le rebond élastique.

### 1. 2. 2. Description des mécanismes de destruction des particules

Dans de nombreuses méthodes de préparation du milieu granulaire comme lors des mélanges, différents phénomènes peuvent se produire [Daouadji and Hicher 2010] : la fragmentation, l'attrition et l'abrasion (Figure I.3). Ces phénomènes sont dus aux collisions interparticulaires et aux chocs entre les particules et les parois provoquant une dégradation accidentelle des particules [Bemrose and Bridgwater 1987]. Ces phénomènes peuvent modifier l'angle de frottement interne (section 2. 2. 1. 2), la distribution granulométrique, la surface et la densité apparente.

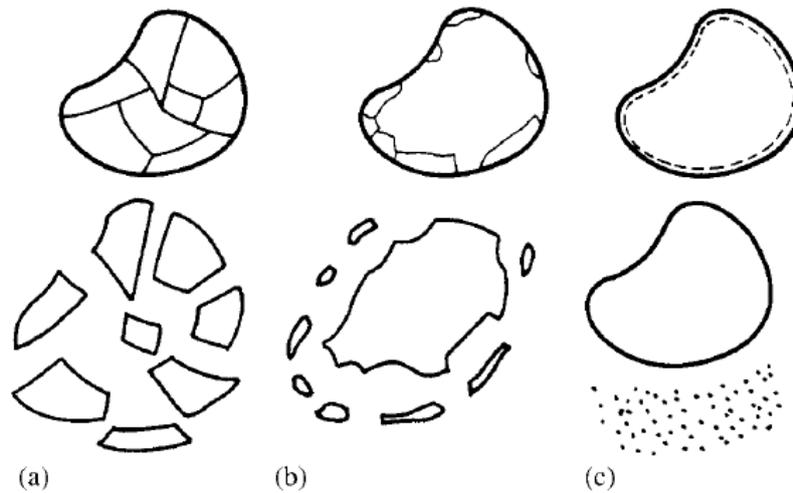


Figure 1.3 : Différents phénomènes de destruction des agglomérats : la fragmentation (a), l'attrition (b) et l'abrasion (c) [Daouadji and Hicher 2010]

### 1. 2. 2. 1. Fragmentation

La fragmentation correspond à la rupture des particules en nombreux fragments de même taille [Daouadji and Hicher 2010]. L'étendue de la distribution granulométrique est augmentée et la distribution est décalée vers les diamètres plus petits. Ce phénomène peut produire des particules plus anguleuses que la particule initiale.

### 1. 2. 2. 2. Attrition

L'attrition correspond à la rupture d'une particule en une particule de taille légèrement inférieure et de plusieurs particules plus petites [Daouadji and Hicher 2010]. Ce phénomène peut produire des particules plus anguleuses que la particule initiale.

### 1. 2. 2. 3. Abrasion

L'abrasion correspond à l'arrachement des aspérités à la surface des particules [Daouadji and Hicher 2010]. Une grande quantité de fines est générée mais la distribution granulométrique du lit de poudre est peu modifiée. Les particules sont plus rondes et plus lisses.

## 1. 2. 3. Propriétés mécaniques des particules

Différentes propriétés mécaniques caractérisent les matériaux, telles que la rigidité, le rebond élastique, la contrainte à la rupture, la dureté et la ténacité. Seuls la rigidité, le rebond élastique et la contrainte à la rupture seront décrites dans le cas de particules.

### 1. 2. 3. 1. Rigidité

La rigidité est définie comme la capacité d'un matériau à s'opposer à des déformations lorsqu'il est soumis à des sollicitations mécaniques. Elle est définie par le module d'Young, aussi appelé module d'élasticité [Vaidya and Pathak 2019]. Plus un matériau est rigide, plus le module d'Young sera élevé. Le module d'Young est noté  $E$ , et s'exprime en Pa.

$$E = \frac{\sigma}{\varepsilon} \quad (\text{Équation 1.8})$$

où  $\sigma$  est la contrainte appliquée au matériau (Pa) et  $\varepsilon$  la déformation qu'il subit (sans unité) dans le domaine élastique. Sur un graphique représentant la contrainte en fonction de la déformation, le module d'Young correspond donc à la pente de la courbe lors de la déformation élastique.

La rigidité d'un matériau est définie également par son coefficient de Poisson [Vaidya and Pathak 2019]. Au cours d'un essai de traction ou de compression, des contraintes axiales sont appliquées au matériau ce qui entraîne des déformations dans les directions axiales et latérales. Le coefficient de Poisson est défini comme le rapport de la déformation latérale sur la déformation axiale. Il est compris entre 0 et 0,5. La plupart des matériaux rigides ont un coefficient de Poisson d'environ 0,3. Plus un matériau est ductile, plus le coefficient de Poisson est élevé.

### 1. 2. 3. 2. *Rebond élastique*

Lors d'un impact entre deux particules ou entre une particule et une surface fixe, un rebond élastique est observé. Ce rebond est défini par le coefficient de restitution [Marin et al. 2019; Tabor 1948]. En prenant en compte la conservation des moments, Isaac Newton définit le coefficient de restitution  $e$  tel que :

$$|v_r| = e|v_n| \quad (\text{Équation 1.9})$$

avec  $v_n$  et  $v_r$  les vitesses relatives des 2 corps avant et après l'impact (en  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ).

Le coefficient de restitution est compris entre 0 et 1. Si  $e = 0$ , la collision est parfaitement inélastique, si  $e = 1$ , la collision est parfaitement élastique.

Dans le cas de la chute d'une particule, en considérant que l'énergie mécanique se conserve et en négligeant les forces de frottement, le coefficient de restitution devient [Marin et al. 2019; Israelachvili 2011] :

$$e = \sqrt{\frac{h_r}{h_i}} \quad (\text{Équation 1.10})$$

avec  $h_r$  la hauteur après le rebond (m) et  $h_i$  la hauteur initiale de la particule avant le lâché (m).

### 1. 2. 3. 3. *Contrainte à la rupture*

La contrainte à la rupture correspond à la contrainte maximale appliquée à la particule avant sa rupture. Il existe deux types de rupture macroscopique :

- rupture fragile : déformation principalement élastique avant la rupture, sans signe précurseur de rupture (céramiques, verres, etc.),
- rupture ductile : déformation élastique et plastique avant la rupture (métaux cubiques à faces centrées).

Pour une particule sphérique de rayon  $R$  (m) soumis à une force  $F_b$  (N) avant la rupture, la contrainte à la rupture  $\sigma_f$  (Pa), est définie telle que [Hiramatsu and Oka 1966; Shipway and Hutchings 1993] :

$$\sigma_f = \frac{0,7 F_b}{\pi R^2} \quad (\text{Équation I.11})$$

## 1. 2. 4. Mesure des propriétés mécaniques des particules

### 1. 2. 4. 1. Test d'écrasement

Pour déterminer la contrainte à la rupture d'une particule, des tests d'écrasement peuvent être réalisés (Figure I.4).

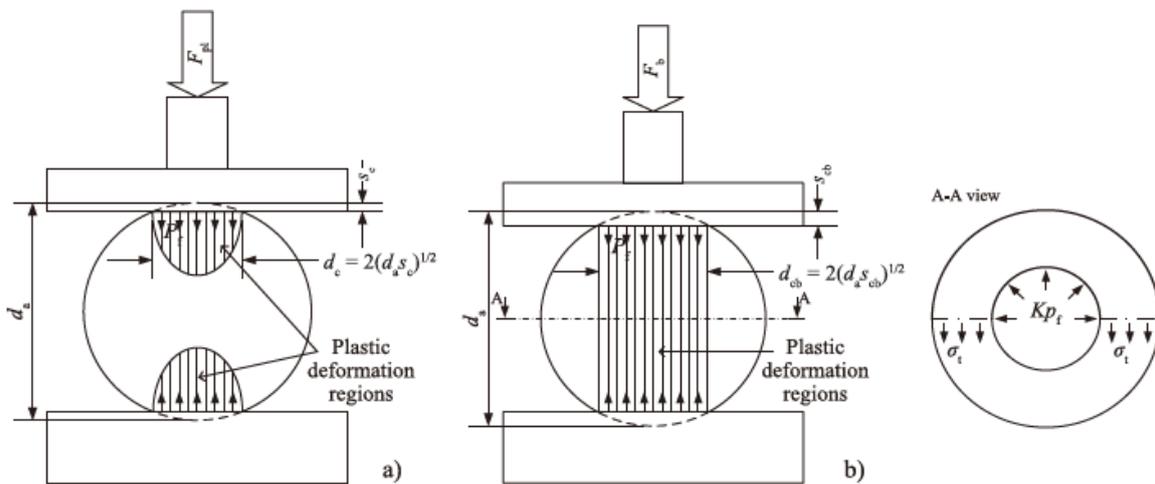


Figure I.4 : Schéma du test d'écrasement [Kahrizsangi et al. 2016]

Ces tests permettent de tracer la force appliquée en fonction du déplacement. On distingue différents domaines, présentés en Figure I.5. Les zones I et II correspondent à la déformation élastique. Cette déformation est réversible : le matériau, après avoir été déformé sous une charge, reprend sa forme initiale lorsqu'il n'est plus soumis à une charge. La zone III correspond à la déformation élasto-plastique. Cette déformation est irréversible : le matériau est déformé sous une charge et garde cette déformation lorsque la charge n'est plus appliquée. Le point B correspond à la rupture de la particule.

À partir de ces données, le module d'Young peut être déterminé : il correspond à la pente de la courbe de la contrainte en fonction de la déformation pendant la déformation élastique (zone I et II). La contrainte à la rupture peut également être calculée à partir de la force à la rupture (force au point B) avec l'Équation I.11.

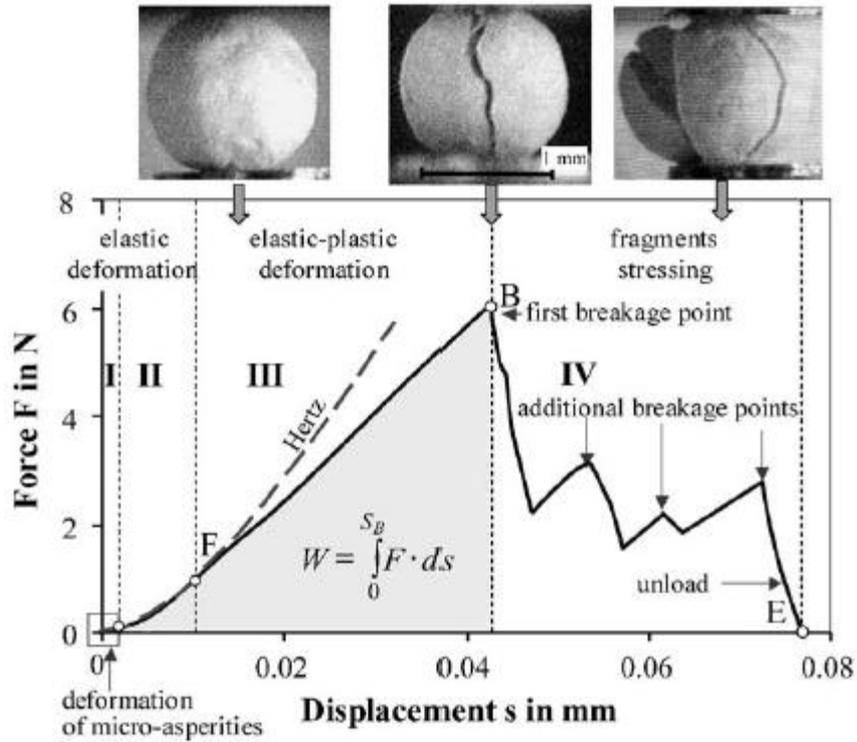


Figure 1.5 : Courbe de force - déplacement obtenus lors d'un test d'écrasement [Antonyuk et al. 2005]

Cependant, la contrainte à la rupture mesurée est variable et dépend de la taille de l'échantillon. Un traitement probabiliste comme celui proposé par Weibull est donc nécessaire. Il exprime la probabilité de survie d'un échantillon d'un volume donné à un niveau de contrainte donné. La relation de Weibull peut être exprimée par la probabilité de survie,  $P_s(\sigma)$ , d'un échantillon d'un volume donné à un niveau de contrainte  $\sigma$  [Bika et al. 2001] :

$$P_s(\sigma) = \exp \left[ - \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (\text{Équation 1.12})$$

où  $\sigma_0$  et  $m$  sont des constantes. Le module de Weibull  $m$  est une mesure de la variabilité des propriétés des défauts entre échantillons, sans unité. Lorsque le module de Weibull est élevé ( $m > 20$ ), la distribution des défauts dans les agglomérats est homogène alors que lorsque le module de Weibull est faible ( $m < 20$ ), la distribution des défauts dans les agglomérats est hétérogène. Les contraintes à rupture sont donc d'autant plus dispersées que le module de Weibull  $m$  est faible. La constante de Weibull  $\sigma_0$  est une valeur de résistance caractéristique du matériau, exprimée en Pa.

#### 1. 2. 4. 2. Mesure du taux d'abrasion et attrition

Un taux d'attrition, basé sur la production d'un matériau plus fin que  $40 \mu\text{m}$ , a été défini par Forsythe et Hertwig [Forsythe and Hertwig 1949]. Le taux d'attrition est fonction du temps et s'exprime en  $\%_m \cdot \text{h}^{-1}$ . Il est défini par :

$$\text{Taux d'attrition} = 100 \frac{\text{Augmentation du } \%_m \text{ de particules } < 40 \mu\text{m}}{\%_m \text{ de particules } > 40 \mu\text{m au temps initial}} \quad (\text{Équation 1.13})$$

Le choix de 40  $\mu\text{m}$ , valeur retenue pour cette étude, correspond à une valeur arbitraire. Le taux d'attrition augmente avec le temps, au fur et à mesure que le phénomène d'attrition se produit. Ce taux d'attrition est principalement utile pour des tests comparatifs de poudres et doit être mesuré dans des conditions similaires contrôlées.

## 2. COMPORTEMENT DES POUDRES

---

Dans ce travail, le comportement des poudres regroupe la coulabilité et la ségrégation. Le comportement des poudres est influencé par les caractéristiques des particules décrites dans la première partie.

### 2. 1. FORCES INTERPARTICULAIRES

#### 2. 1. 1. Généralités

La coulabilité d'une poudre correspond à son aptitude à s'écouler librement, de manière régulière et constante, sous forme de particules individuelles [Saleh and Guigon 2009]. Les poudres subissent différentes forces : la force gravitationnelle et des forces de cohésion interparticulaires. Lorsque la force gravitationnelle est plus importante que les interactions interparticulaires, la poudre s'écoule « librement ».

Les différentes forces interparticulaires sont :

- les forces de Van der Waals,
- les forces capillaires ou ponts liquides,
- les forces électrostatiques.

Ces forces dépendent des caractéristiques physico-chimiques de la poudre, telles que sa distribution granulométrique, la forme des particules ou les caractéristiques chimiques de la poudre [Petit et al. 2017; Condotta 2005].

La ségrégation est la tendance des particules à se séparer selon leurs caractéristiques physico-chimiques [Li et al. 2003]. Il existe différents types de ségrégation, comme des ségrégations par la taille, la forme, la densité, etc. La ségrégation se produit lorsque les particules sont en mouvement et qu'elles ont une différence de caractéristiques physico-chimiques [Saleh and Leturia 2020].

#### 2. 1. 2. Description des forces subies par une particule

Comme mentionné précédemment, une particule subit différentes forces. Dans ses travaux de thèse, les forces de cohésion seront considérées comme les forces d'attraction entre deux particules tandis que les forces d'adhésion seront considérées comme les forces d'attraction entre une particule et une paroi [Saleh and Guigon 2009c].

##### 2. 1. 2. 1. Force gravitationnelle

La force gravitationnelle correspond au poids d'une particule. Elle dépend donc de sa taille et de sa masse volumique. Pour une particule sphérique, la force gravitationnelle s'exprime :

$$F_G = \frac{\pi \rho_p g}{6} d_p^3 \quad (\text{Équation I.14})$$

où  $\rho_p$  représente la masse volumique de la particule ( $\text{kg.m}^{-3}$ ),  $g$  l'accélération de la pesanteur ( $\text{m.s}^{-2}$ ) et  $d_p$  le diamètre de la particule (m).

### 2. 1. 2. 2. Forces de Van der Waals

Les forces de Van der Waals sont basées sur les dipôles électriques entre les atomes et les molécules [Schulze 2008; Israelachvili 2011; Seville et al. 2000; Tomas and Kleinschmidt 2009]. Elles sont la combinaison de trois types d'interactions : les forces dipolaires correspondant au terme de Keesom, les forces de polarisation traduites par le terme de Debye, les forces de dispersion exprimées par le terme de London. Le terme de London est prédominant.

L'intensité des forces de Van der Waals dépend de la taille des particules, de la distance entre les particules et des interactions surfaciques, prises en compte dans la constante d'Hamaker.

Pour deux particules sphériques de même nature, les forces de Van der Waals  $F_{vdw}$  s'expriment :

$$F_{vdw} = \frac{A}{6z^2} \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right)^{-1} \quad (\text{Équation I.15})$$

avec  $A$  la constante d'Hamaker (J),  $z$  la distance entre les particules (m),  $R_1$  et  $R_2$  les rayons respectifs des particules sphériques (m). La constante d'Hamaker  $A$  s'exprime par l'équation suivante [Israelachvili 2011; Seville et al. 2000; Tomas and Kleinschmidt 2009; Capece et al. 2015] :

$$A = 24\pi D_0^2 \gamma_d \quad (\text{Équation I.16})$$

avec  $D_0$  la distance limite (prise égale à 0,165 nm) et  $\gamma_d$  l'énergie de surface dispersive ( $\text{N.m}^{-1}$ ).

Dans le cas de deux sphères de même taille, les forces de Van der Waals peuvent être exprimées selon l'équation [Seville et al. 2000 ; Tomas and Kleinschmidt 2009] :

$$F_{vdw} = \frac{AR}{12z^2} \quad (\text{Équation I.17})$$

où  $A$  est la constante d'Hamaker (J),  $R$  est le rayon d'une particule (m) et  $z$  est la distance entre les deux particules (m).

### 2. 1. 2. 3. Forces capillaires ou ponts liquides

Les forces capillaires sont dues à la présence de liquide dans la zone de contact des particules [Schulze 2008; Seville et al. 2000; Visser 1989; Leturia and Saleh 2016]. Ce phénomène entraîne la création de ponts liquides, comme présenté en Figure I.6, et se produit lorsque le taux d'humidité est important ( $\geq 65\%$ ) [Visser 1989]. Les particules sont donc attirées les unes vers les autres en raison de la tension superficielle et de la pression capillaire.

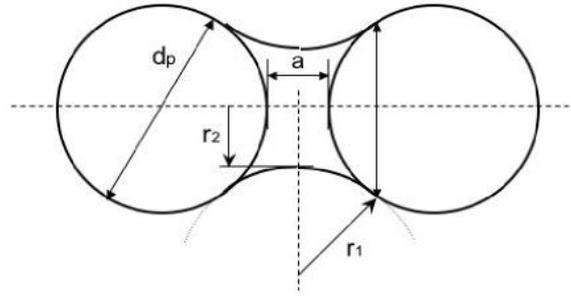


Figure I.6 : Pont liquide entre deux sphères séparées de la distance  $a$  [Seville et al. 2000]

Dans le cas de deux particules sphériques de même diamètre, les forces capillaires, notées  $F_{cap}$  (N), s'expriment selon la relation suivante [Seville et al. 2000] :

$$F_{cap} = 2\pi r_2 \gamma + \pi r_2^2 \Delta P \quad (\text{Équation I.18})$$

où  $\Delta P$  représente la différence de pression de part et d'autre du ménisque (Pa). Elle s'exprime par l'équation de Laplace-Young [Seville et al. 2000] :

$$\Delta P = \gamma \left( \frac{1}{r_1} - \frac{1}{r_2} \right) \quad (\text{Équation I.19})$$

où  $\gamma$  est la tension superficielle liquide-air ( $\text{N.m}^{-1}$ ),  $r_1$  est le rayon de courbure externe du pont liquide (m) et  $r_2$  son rayon de courbure interne (m).

#### 2. 1. 2. 4. Forces électrostatiques

Les forces électrostatiques sont dues à la différence de potentiel électrique en surface des particules [Schulze 2008; Seville et al. 1997a]. En effet, les particules accumulent des charges électriques sur leur surface conduisant à ces forces électrostatiques. Elles peuvent être attractives ou répulsives.

Pour deux particules sphériques de même taille, les forces électrostatiques  $F_e$  s'expriment selon [Seville et al. 1997] :

$$F_e = \frac{|q_1 q_2|}{4\pi \epsilon \epsilon_0 z^2} \quad (\text{Équation I.20})$$

où  $q_1$  et  $q_2$  sont les charges électriques des deux particules (C),  $\epsilon$  est la permittivité relative du milieu ( $\text{F.m}^{-1}$ ),  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide ( $\epsilon_0 = 8,854.10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$ ) et  $z$  est la distance entre les deux particules (m).

#### 2. 1. 3. Importance relative des différentes forces

Les forces interparticulaires dépendent de la distance entre deux particules ou entre une particule et une paroi, de la taille des particules, de leur rugosité de surface, de leurs propriétés physico-chimiques. Dans cette partie, l'influence des couches d'adsorption qui se forment à la surface des particules en fonction des conditions ambiantes n'est pas prise en compte.

### 2. 1. 3. 1. Influence de la distance entre les particules ou entre une particule et une paroi

Les forces de cohésion et les forces d'adhésion dépendent de la distance entre les deux particules ou de la distance particule-paroi [Schulze 2008; Seville et al. 2000].

Dans le cas d'une particule sphérique et lisse de diamètre  $x = 10 \mu\text{m}$  et d'une paroi lisse, les forces d'adhésion (notées  $F_H$ ) sont représentées en fonction de la distance particule-paroi (notée  $a$ ) sur la Figure I.7. La courbe 1 représente les forces dues aux ponts liquides (forces capillaires). Les forces électrostatiques sont représentées par les courbes 2 et 3. La courbe 2 correspond aux forces électrostatiques pour un matériau conducteur et les courbes 3a et 3b correspondent aux forces électrostatiques pour un matériau isolant. La courbe 3a représente les forces électrostatiques entre une sphère et une surface plane, et la courbe 3b correspond aux forces électrostatiques entre une sphère et une charge ponctuelle. La courbe 4 représente les forces de Van der Waals. À faible distance, les forces d'adhésion sont donc principalement dues aux forces de Van der Waals et aux ponts liquides si un liquide est présent dans le milieu granulaire. Dans ce cas, les forces électrostatiques peuvent être négligées. Si le milieu est sec, les forces de Van der Waals seules sont dominantes. À partir d'une certaine distance poudre-paroi, les forces électrostatiques deviennent prédominantes.

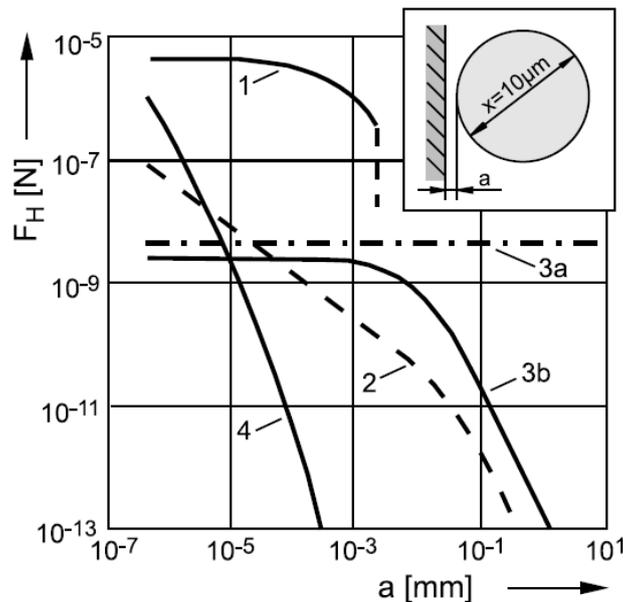


Figure I.7 : Influence de la distance  $a$  entre une particule sphérique et une paroi sur les forces d'adhésion  $F_H$  [Schulze 2008] (1) pont liquide, (2) force électrostatique pour un matériau conducteur, (3) force électrostatique pour un matériau isolant, (4) force de Van der Waals

Dans le cas où l'on considère deux particules, les forces de cohésion, et notamment les forces de Van der Waals, sont dépendantes de la distance entre ces deux particules. La Figure I.8b présente l'influence de la distance entre deux particules (notée  $a$ ) sur les forces de Van der Waals. Il apparaît que les forces de Van der Waals diminuent avec la distance.

### 2. 1. 3. 2. Influence de la taille des particules

La taille des particules a un impact sur les forces interparticulaires [Schulze 2008; Seville et al. 2000]. Cette influence est représentée sur la Figure I.8a pour des particules et paroi idéales (particules

sphériques et lisses et paroi lisse). Pour une faible distance entre une particule et une paroi (ici fixée à  $4.10^{-4} \mu\text{m}$ ), les forces d'adhésion les plus importantes sont dues aux ponts liquides, suivies des forces de Van der Waals. Les forces électrostatiques sont plus faibles que les deux forces précédentes. Contrairement aux forces d'adhésion, la force gravitationnelle augmente rapidement avec la taille des particules, puisqu'elle est proportionnelle au diamètre des particules à la puissance 3. À partir d'une certaine taille de particules, la force gravitationnelle prédomine donc par rapport aux forces d'adhésion.

La Figure I.8b présente l'évolution des forces de cohésion entre deux particules de même taille en contact (traits continus). L'évolution des forces de cohésion est identique à celle entre une particule et une paroi, décrite précédemment. Les fines particules ont donc une influence importante sur l'écoulement. Les « fines » sont souvent définies comme les particules inférieures à  $100 \mu\text{m}$  [Castellanos 2005; Liu et al. 2015; Madian et al. 2020].

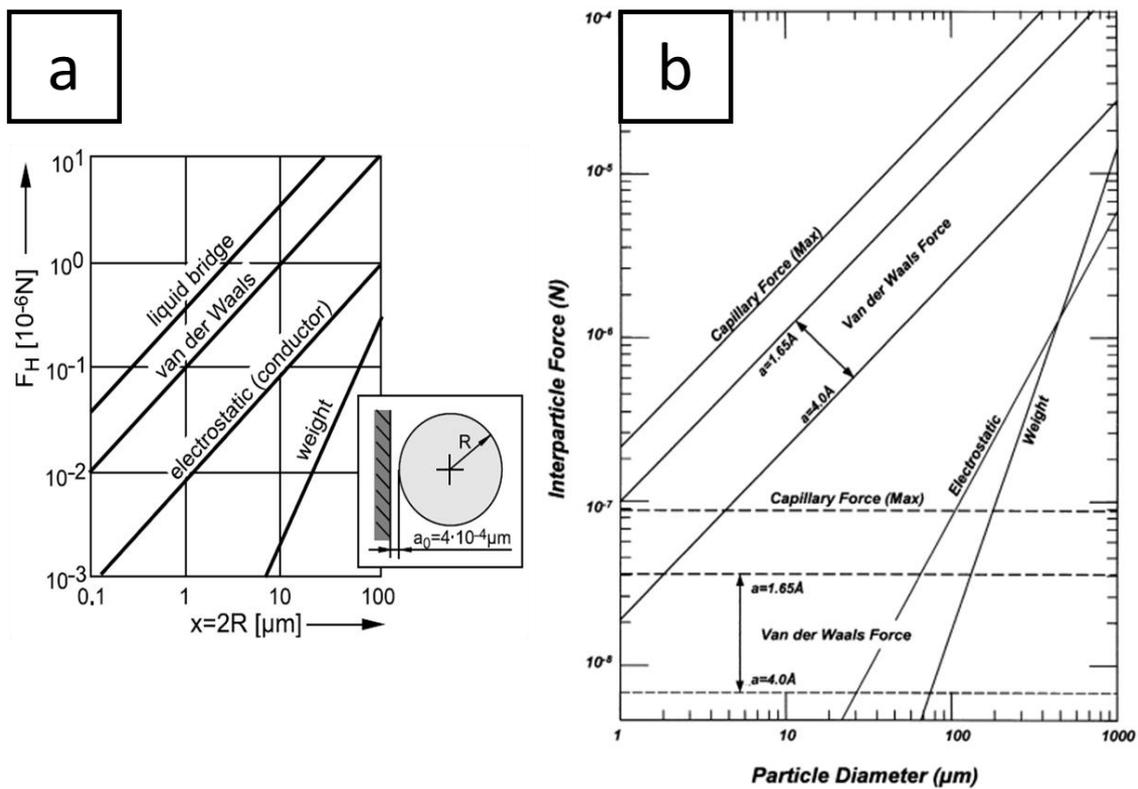


Figure I.8 : Influence de la taille des particules (a) sur les forces d'adhésion  $F_H$  [Schulze 2008] et (b) sur les forces de cohésion [Seville et al. 2000]

### 2. 1. 3. 3. Influence de la rugosité de surface

Les rugosités de surface des particules impactent également les forces interparticulaires [Schulze 2008; Seville et al. 2000]. La Figure I.8b (traits en pointillés) montre l'impact d'une rugosité de surface de  $0,1 \mu\text{m}$  sur les forces capillaires et les forces de Van der Waals, pour un contact particule-paroi. Elles sont constantes quel que soit le diamètre de la particule.

La Figure I.9 présente l'impact de la rugosité sur les forces d'adhésion, dans le cas de particules sphériques de rayon  $R$  et d'une rugosité de rayon  $r$ . La distance entre la paroi et le sommet de la rugosité est de  $4.10^{-4} \mu\text{m}$ .

Comme vu précédemment, les forces d'adhésion diminuent avec la distance entre la particule et la paroi. Lorsque la rugosité  $r$  est faible, les forces d'adhésion entre la particule et la paroi prédominent devant les forces d'adhésion entre la rugosité et la paroi. Ces forces d'adhésion entre la particule et la paroi diminuent avec l'augmentation de la distance entre la particule sphérique et la paroi, soit avec l'augmentation de la taille de la rugosité. Cependant, à partir d'une certaine taille de rugosité, les forces d'adhésion entre la rugosité et la paroi prédominent, entraînant une augmentation des forces d'adhésion.

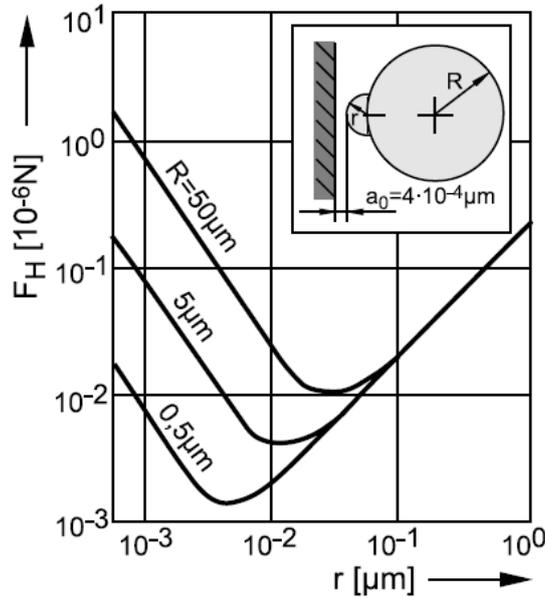


Figure I.9 : Influence de la rugosité  $r$  de surface sur les forces d'adhésion  $F_H$  entre une particule et une paroi [Schulze 2008]

#### 2. 1. 4. Quantification des forces de cohésion

Le modèle de Rumpf prend en compte les forces d'attraction entre une sphère et une surface rugueuse plane [Chen et al. 2008]. Il représente le contact d'une seule aspérité centrée sur la surface rugueuse plane, avec une sphère beaucoup plus grande par rapport à l'aspérité. Lorsque la taille de la particule est très importante devant la taille de l'aspérité, celle-ci est assimilée à une surface plane. Les forces de cohésion entre deux particules ayant des aspérités de petite taille peuvent alors être calculées. En effet, d'après le modèle de Rumpf lorsque seules les forces de Van der Waals sont prises en compte, la force de cohésion  $F_{cohesion}$  entre deux particules sphériques de même diamètre (N), représentée en Figure I.10, s'exprime selon l'expression [Capece et al. 2015] :

$$F_{cohesion} = \frac{A}{12z_0^2} \left( \frac{d_p}{2 \left( \frac{H_0}{z_0} \right)^2} + \frac{3d_{asp}d_p}{d_{asp} + d_p} \right) \quad (\text{Équation I.21})$$

avec  $A$  la constante d'Hamaker (J),  $d_p$  le diamètre des particules (m),  $d_{asp}$  le diamètre des aspérités (m),  $H_0 = z_0 + d_{asp}/2$  (approximation pour des aspérités supposées demi-sphériques) (m) et  $z_0$  la distance de séparation entre les deux particules (m).

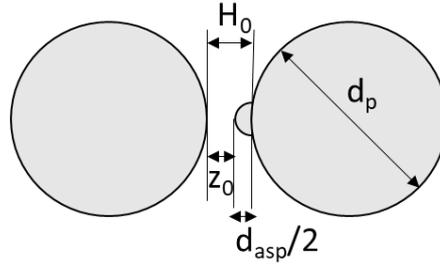


Figure I.10 : Schéma pour le calcul des forces de cohésion

Le premier terme décrit la force « sans contact » entre deux particules sphériques à une distance  $H_0$ . Elle est négligeable si la distance  $H_0$  est supérieure à 20 nm. Le second terme représente l'interaction d'une particule sphérique en contact avec l'aspérité d'une autre particule.

Afin de quantifier l'importance des forces interparticulaires, le nombre de Bond  $Bo_g$  a été défini comme le rapport entre les forces cohésives  $F_{cohesion}$  (N) et le poids de la particule  $W_g$  (N), il est sans unité [Capece et al. 2015; Giraud et al. 2020] :

$$Bo_g = \frac{F_{cohesion}}{W_g} \quad (\text{Équation I.22})$$

Si le nombre de Bond est supérieur à 1, les forces de cohésion prédominent donc les particules sont cohésives, ce qui dégrade les propriétés d'écoulement. Si le nombre de Bond est inférieur à 1, le poids des particules prédomine donc les particules ne sont pas cohésives, ce qui favorise un écoulement « libre ».

Lors d'un mélange de différentes poudres, le nombre de Bond doit prendre en compte les interactions présentes entre particules de même nature et particules de matériaux différents. En effet, la composition d'un mélange affecte les interactions interparticulaires et donc le nombre de Bond. Il est important de pondérer ces interactions lors du calcul. La pondération s'effectue grâce au coefficient  $\omega_{ij}$  :

$$\omega_{ij} = f_{SA,i} f_{SA,j} \quad (\text{Équation I.23})$$

où  $f_{SA,i}$  et  $f_{SA,j}$  est la fraction surfacique des particules i et des particules j, respectivement, présentes dans le mélange ( $\omega_{ij}$  donne la probabilité que deux matériaux entrent en contact). Elle peut être calculée grâce au diamètre de Sauter [Capece et al. 2015; Giraud et al. 2020].

Cette relation peut être utilisée dans le cas où seules les forces de Van der Waals sont prises en compte, dans le cas d'un milieu sec et d'un contact proche entre les particules.

Dans ces conditions, le nombre de Bond pour un mélange, noté  $Bo_{g,Mix}$ , devient :

$$Bo_{g,Mix} = \left( \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{ij}}{Bo_{g,ij}} \right)^{-1} \quad (\text{Équation I.24})$$

Ceci prend en compte les interactions entre chaque matériau présent dans le mélange grâce au terme  $B_{o_{g,ij}}$ . Il est défini comme :

$$B_{o_{g,ij}} = \frac{F_{cohesion,ij}}{W_{g,ij}} \quad (\text{Équation I.25})$$

Afin de calculer les forces de cohésion dans le cas d'un mélange (Équation I.21) où seules les forces de Van der Waals sont prises en compte, il est nécessaire de calculer pour le mélange  $i/j$  la constante d'Hamaker, le diamètre des particules et des aspérités, et le poids des particules pour des matériaux différents. Lorsque deux matériaux différents sont en contact, ces grandeurs se calculent selon les formules suivantes [Capece et al. 2015] :

$$A = \sqrt{A_i A_j} \quad (\text{Équation I.26})$$

$$d_p = \frac{2d_{p,i}d_{p,j}}{d_{p,i} + d_{p,j}} \quad (\text{Équation I.27})$$

$$d_{asp} = \frac{2d_{asp,i}d_{asp,j}}{d_{asp,i} + d_{asp,j}} \quad (\text{Équation I.28})$$

$$W_{ij} = \frac{2W_i W_j}{W_i + W_j} \quad (\text{Équation I.29})$$

avec  $A$  : constante d'Hamaker moyenne (J) avec  $A_i$  et  $A_j$  les constantes d'Hamaker des matériaux  $i$  et  $j$  respectivement

$d_p$  : diamètre moyen des particules (m) avec  $d_{p,i}$  et  $d_{p,j}$  les diamètres des particules des matériaux  $i$  et  $j$  respectivement

$d_{asp}$  : diamètre moyen des aspérités (m) avec  $d_{asp,i}$  et  $d_{asp,j}$  les diamètres des aspérités des matériaux  $i$  et  $j$  respectivement

$W_{ij}$  : poids moyen des particules  $i$  et  $j$  (N) avec  $W_i$  et  $W_j$  les poids des matériaux  $i$  et  $j$  respectivement

Grâce au nombre de Bond, la cohésion, et donc la coulabilité de la poudre, peuvent être évaluées. Cependant, certains paramètres ne sont pas pris en compte dans ce modèle, comme la forme des particules, ses propriétés mécaniques et les phénomènes d'agglomération.

## 2. 2. QUANTIFICATION DE LA COULABILITÉ

Différentes méthodes existent pour quantifier la coulabilité d'une poudre selon différents niveaux de contraintes (Figure I.11). Il est donc primordial d'adapter les tests à réaliser en fonction des états dans lesquels nous souhaitons caractériser la coulabilité de la poudre [Schulze 2008].

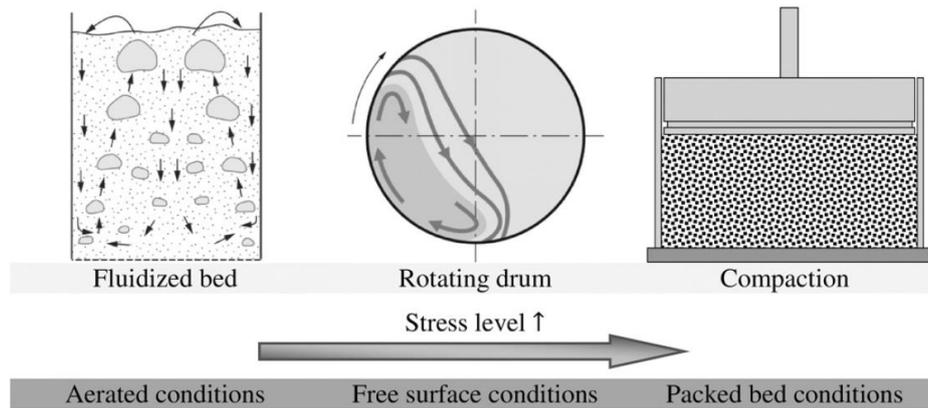


Figure I.11 : Niveau de contraintes appliquées aux poudres selon les étapes procédé [Leturia et al. 2014]

De plus, différents états permettent de caractériser la coulabilité :

- la mise en écoulement (transition statique-dynamique), qui permet de caractériser la poudre lorsque celle-ci se met à s'écouler,
- l'écoulement dynamique, qui caractérise la coulabilité de la poudre lorsque celle-ci s'écoule,
- les propriétés du lit de poudre telles que la perméabilité et l'arrangement des agglomérats.

## 2. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique)

### 2. 2. 1. 1. Compression uniaxiale

Le test de compression uniaxiale permet de caractériser la mise en écoulement de la poudre [Schulze 2008], lorsque celle-ci se trouve dans un état consolidé. Les différentes étapes de ce test sont présentées sur la Figure I.12.

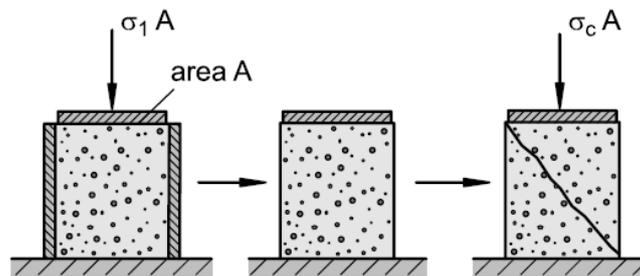


Figure I.12 : Présentation des étapes du test de compression uniaxiale [Schulze 2008]

L'échantillon de poudre, placé dans une cellule cylindrique, est consolidé sous une contrainte normale  $\sigma_1$ , appelée contrainte de consolidation majeure. Plus le volume de poudre diminue, plus la poudre est compressible. L'échantillon de poudre consolidé est ensuite sorti de la cellule cylindrique et subit une contrainte uniaxiale jusqu'à rupture de celui-ci. Cette contrainte est appelée contrainte de rupture  $\sigma_c$ . À la rupture, l'échantillon de poudre consolidé commence à s'écouler (transition statique-dynamique). Sous la contrainte, les particules situées au niveau de la surface de rupture s'écartent, entraînant ainsi l'écoulement.

Ce test est réalisé à différentes contraintes de consolidation majeure. Différents couples  $(\sigma_1, \sigma_c)$  sont alors obtenus. En traçant la courbe de la contrainte à la rupture  $\sigma_c$  en fonction de la contrainte de consolidation majeure  $\sigma_1$ , la fonction d'écoulement est obtenue. Elle est représentée sur la Figure I.13. L'écoulement est caractérisé par l'indice de coulabilité  $ff_c$  (sans unité) :

$$ff_c = \frac{\sigma_1}{\sigma_c} \quad (\text{Équation I.30})$$

D'après la classification de Jenike [Jenike 1964; Schulze 2008] :

- $ff_c < 1$  : pas d'écoulement,
- $1 < ff_c < 2$  : écoulement très cohésif,
- $2 < ff_c < 4$  : écoulement cohésif,
- $4 < ff_c < 10$  : écoulement facile,
- $10 < ff_c$  : écoulement libre.

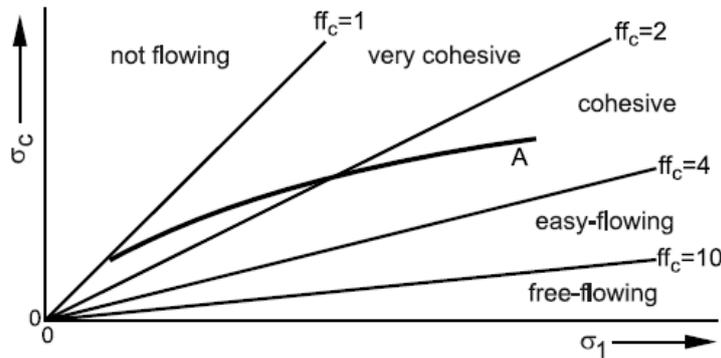


Figure I.13 : Graphique de la fonction d'écoulement et de la classification de Jenike [Schulze 2008]

L'indice de coulabilité dépend de l'état de consolidation et doit donc être défini en fonction de la contrainte de consolidation  $\sigma_1$  appliquée. Il est également possible de relier l'indice de coulabilité au nombre de Bond [Capece et al. 2015] :

$$ff_c = \alpha (Bo_g)^{-\beta} \quad (\text{Équation I.31})$$

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont deux paramètres d'ajustement. Le coefficient  $\alpha$  correspond à la valeur du facteur d'écoulement  $ff_c$  pour lequel les forces de cohésion et le poids se compensent ( $Bo_g = 1$ ).

### 2. 2. 1. 2. Test de cisaillement

Le test de cisaillement caractérise la mise en écoulement de la poudre. Il se déroule en deux étapes [Schulze 2008], présentées en Figure I.14. L'échantillon de poudre est initialement placé dans une cellule et se trouve généralement dans un état sous-consolidé. Les particules peuvent donc facilement se déplacer les unes par rapport aux autres et les forces de friction sont faibles. Pour réaliser les tests de cisaillement, une étape de pré-consolidation est nécessaire. Pour ce faire, l'échantillon subit une contrainte normale de pré-consolidation notée  $\sigma_{pré}$ , puis il est cisailé en mesurant la contrainte de

cisaillement  $\tau$ . Au début du cisaillement, cette contrainte de cisaillement augmente puisque les particules se rapprochent, les forces de friction augmentent et la densité apparente de la poudre augmente. À partir d'un certain stade, appelé régime critique, la contrainte de cisaillement se stabilise et devient constante. Cette contrainte correspond à la contrainte de cisaillement de pré-consolidation notée  $\tau_{pre}$ . L'échantillon est donc consolidé, les forces de friction sont maximales entre les particules et sa densité apparente est constante. La poudre atteint donc un « état critique consolidé par rapport à la contrainte normale  $\sigma_{pre}$  ». Cet état de consolidation est reproductible. Sur un graphique représentant la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale, le point  $(\sigma_{pre}, \tau_{pre})$  est appelé point de pré-consolidation.

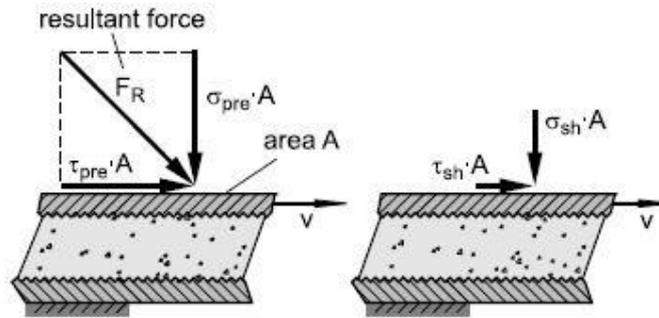


Figure I.14 : Présentation des étapes du test de cisaillement [Schulze 2008]

Une fois l'étape de pré-consolidation terminée, l'étape de cisaillement à la rupture est réalisée. L'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du temps est présentée en Figure I.15. L'échantillon subit une contrainte normale  $\sigma_{sh}$  qui est inférieure à la contrainte de pré-consolidation  $\sigma_{pre}$ . Il est ensuite de nouveau cisailé, en mesurant la contrainte de cisaillement  $\tau$ . La contrainte de cisaillement maximale  $\tau_{sh}$ , obtenue à la rupture du lit de poudre, caractérise la mise en écoulement. Plus les forces interparticulaires sont élevées, plus la contrainte de cisaillement à la rupture est élevée.

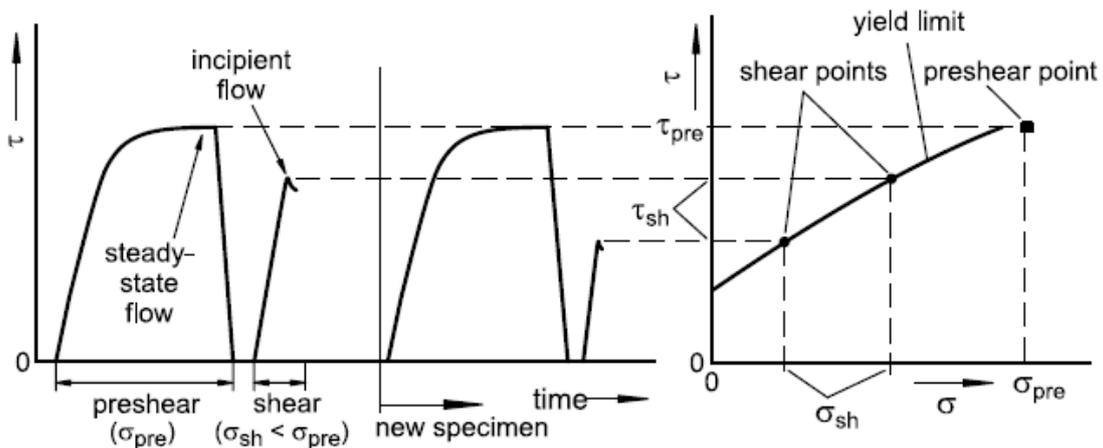


Figure I.15 : Évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du temps (à gauche), représentation de la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale (à droite) [Schulze 2008]

Sur le graphique « contrainte de cisaillement vs. contrainte normale », le point  $(\sigma_{sh}, \tau_{sh})$  est appelé « point de cisaillement » ou « point de mise en écoulement ». Il appartient à la courbe appelée « lieu d'écoulement ». L'obtention du lieu d'écoulement d'une poudre permet de remonter à différents

paramètres caractérisant l'écoulement [Jenike 1964; Schulze 2008]. Pour ce faire, une analyse de cercles de Mohr est nécessaire. Ils sont présentés en Figure I.16. Le petit cercle de Mohr est tangent au lieu d'écoulement et passe par l'origine. Le grand cercle de Mohr est tangent au lieu d'écoulement et passe par le point de pré-consolidation.

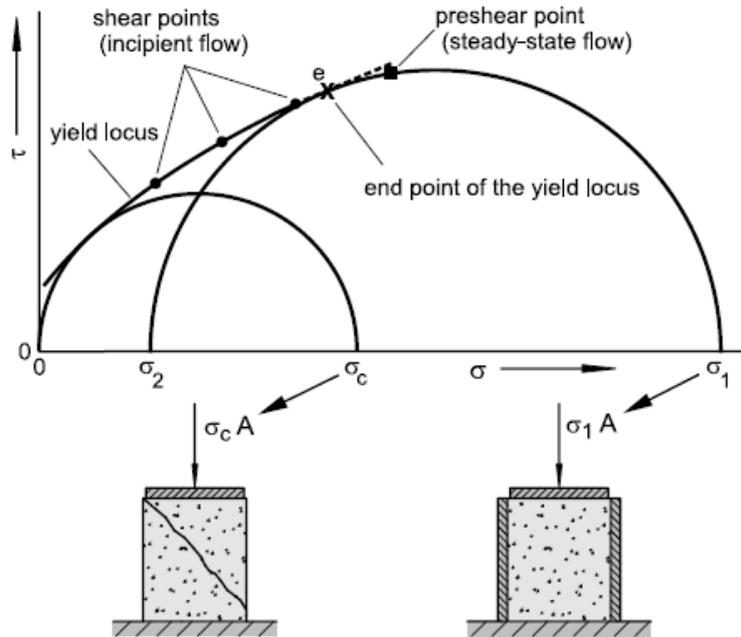


Figure I.16 : Tracé des cercles de Mohr [Schulze 2008]

L'analyse de ces cercles de Mohr, présentée en Figure I.17, permet de déterminer les paramètres suivants :

- la contrainte à la rupture  $\sigma_c$  (Pa) : elle est obtenue grâce au petit cercle de Mohr. Elle caractérise la contrainte normale pour laquelle a lieu la rupture d'un lit de poudre soumis à une compression uniaxiale,
- la contrainte de consolidation majeure  $\sigma_1$  (Pa) : elle est obtenue grâce au grand cercle de Mohr. Elle caractérise la contrainte normale maximale appliquée à la poudre,
- la contrainte principale mineure  $\sigma_2$  (Pa) : elle est obtenue grâce au grand cercle de Mohr. Elle caractérise la contrainte latérale appliquée à la poudre,
- l'angle de frottement interne  $\varphi_{lin}$  (°) : il correspond à l'angle du lieu d'écoulement par rapport à l'axe des abscisses,
- le coefficient de frottement interne  $\mu$  (frottement poudre-poudre) : il s'agit de la tangente de l'angle de frottement interne,

$$\mu = \tan(\varphi_{lin}) \quad (\text{Équation I.32})$$

- l'angle effectif de frottement interne  $\varphi_e$  (°) : il correspond à l'angle de la droite passant par l'origine et tangent au grand cercle de Mohr par rapport à l'axe des abscisses,

$$\sin \varphi_e = \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{\sigma_1 + \sigma_2} \quad (\text{Équation I.33})$$

- l'angle de frottement interne en écoulement stable  $\varphi_{sf}$  (°) : il correspond à l'angle de la droite passant par l'origine et le point de pré-consolidation par rapport à l'axe des abscisses,

$$\varphi_{sf} = \arctan\left(\frac{\tau_{pré}}{\sigma_{pré}}\right) \quad (\text{Équation I.34})$$

- la cohésion  $\tau_c$  : elle correspond à l'ordonnée à l'origine du lieu d'écoulement. Elle caractérise la cohésion de la poudre,
- la résistance à la traction uniaxiale  $\sigma_t$  (Pa) : elle correspond à l'intersection du lieu d'écoulement avec l'axe des abscisses. Elle caractérise la contrainte normale nécessaire pour rompre l'échantillon de poudre sans appliquer de contrainte de cisaillement.

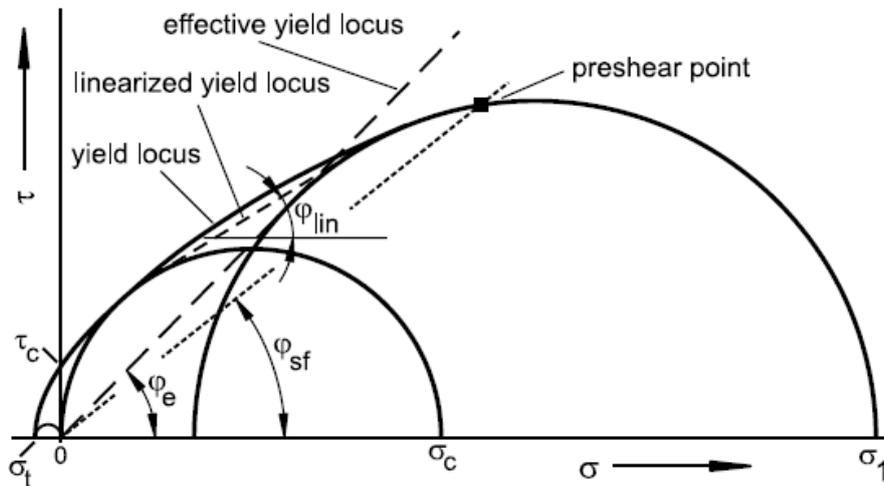


Figure I.17 : Analyse des cercles de Mohr [Schulze 2008]

Cette procédure est réalisée à différentes contraintes normales de pré-consolidation  $\sigma_{pré}$  afin d'obtenir différents couples  $(\sigma_1, \sigma_c)$ . La fonction d'écoulement peut être tracée (Figure I.13).

### 2. 2. 1. 3. Écoulement à travers un orifice

Le test d'écoulement à travers un orifice, schématisé sur la Figure I.18, caractérise la mise en écoulement de la poudre. La poudre est introduite dans un entonnoir avec différents diamètres de sortie. La mesure d'écoulement est la taille minimale du diamètre de sortie,  $d_M$ , pour lequel l'écoulement se produit [Schulze 2008].

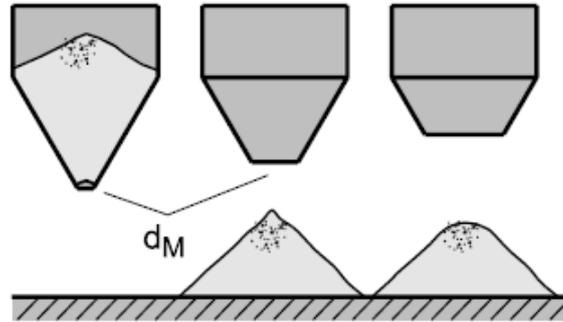


Figure I.18 : Schéma du test d'écoulement à travers un orifice [Schulze 2008]

Ce test est un test comparatif, aucun indice d'écoulement ne peut être obtenu. Il est également opérateur-dépendant (dépend du remplissage de l'entonnoir) et est influencé par la perméabilité du lit de poudre [Schulze 2008].

#### 2. 2. 1. 4. Frottement poudre-paroi

Le frottement aux parois, ou frottement poudre-paroi, correspond aux frottements entre la poudre et une surface solide, telle que les parois d'une trémie ou d'un silo [Jenike 1964; Schulze 2008]. Lorsqu'une poudre est en contact avec une paroi, elle subit une contrainte normale à la paroi  $\sigma_w$ . En déplaçant la poudre le long de la paroi à vitesse constante, la poudre subit une contrainte de cisaillement à la paroi, notée  $\tau_w$ . Cette contrainte augmente jusqu'à se stabiliser. Un couple  $(\sigma_w, \tau_w)$  est alors obtenu et dépend de la contrainte normale à la paroi  $\sigma_w$ . La Figure I.19 propose une représentation schématique de ce test.

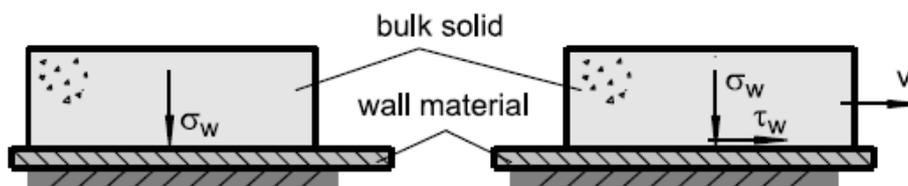


Figure I.19 : Schéma de test de frottement poudre-paroi [Schulze 2008]

En effectuant ces essais à différentes contraintes normales  $\sigma_w$ , différents couples  $(\sigma_w, \tau_w)$  sont obtenus. La courbe obtenue en traçant la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale correspond au lieu d'écoulement poudre-paroi, comme présenté en Figure I.20.

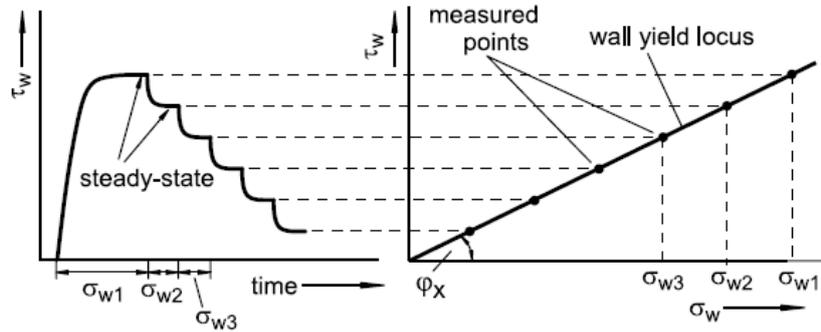


Figure I.20 : Graphique du lieu d'écoulement à la paroi [Schulze 2008]

Pour quantifier le frottement poudre-paroi, on définit l'angle de frottement poudre-paroi  $\varphi_x$ . Il correspond à l'angle du lieu d'écoulement par rapport à l'axe des abscisses.

$$\varphi_x = \arctan\left(\frac{\tau_w}{\sigma_w}\right) \quad (\text{Équation I.35})$$

Le coefficient de frottement poudre-paroi  $\mu_w$  peut également être utilisé. Il correspond au rapport de la contrainte de cisaillement à la paroi (Pa) sur la contrainte normale à la paroi (Pa).

$$\mu_w = \frac{\tau_w}{\sigma_w} \quad (\text{Équation I.36})$$

## 2. 2. 2. Écoulement dynamique

### 2. 2. 2. 1. Variable Flow Rate (VFR)

Le test VFR (Variable Flow Rate), réalisé à l'aide d'un rhéomètre à poudre, permet de caractériser l'écoulement dynamique de la poudre. La poudre, placée dans une cellule cylindrique, subit le passage d'une pale qui suit une trajectoire hélicoïdale au travers du lit de poudre à vitesse contrôlée (Figure I.21).

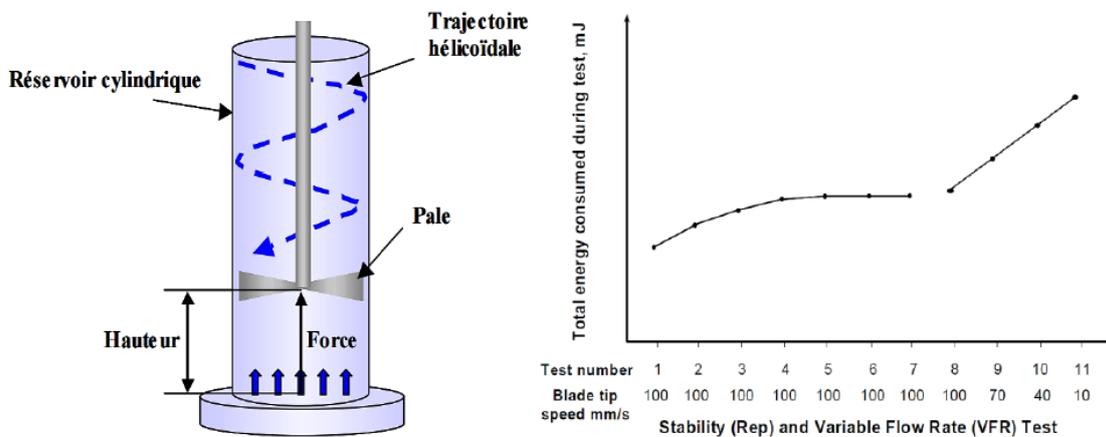


Figure I.21 : Présentation du test VFR [Freeman 2007]

Le passage de la pale permet de mesurer différentes énergies nécessaires pour déplacer la poudre à différentes vitesses. Ces énergies permettent de calculer différents indices :

- l'indice BFE (Basic Flowability Energy) : il permet de déterminer l'énergie nécessaire pour mettre en mouvement un certain volume de poudre,
- l'indice FRI (Flow Rate Index) : il permet de déterminer l'impact de la vitesse de la rotation de la pale sur l'énergie nécessaire pour mettre en mouvement ce même volume de poudre,
- l'énergie spécifique SE : elle permet de caractériser la cohésion de la poudre,
- l'indice de stabilité SI : il permet de caractériser la stabilité de la poudre lors de plusieurs passages de la pale.

### 2. 2. 2. 2. Test d'aération

Le test d'aération, réalisé à l'aide d'un rhéomètre à poudre, permet d'évaluer l'effet de l'aération sur les propriétés d'écoulement dynamique [Leturia et al. 2014]. Il s'agit de mesurer l'énergie de l'écoulement  $E$  en fonction de la vitesse d'air traversant l'échantillon de poudre (Figure I.22). En fonction de la vitesse d'aération, le lit de poudre est soit fluidisé, soit simplement aéré.

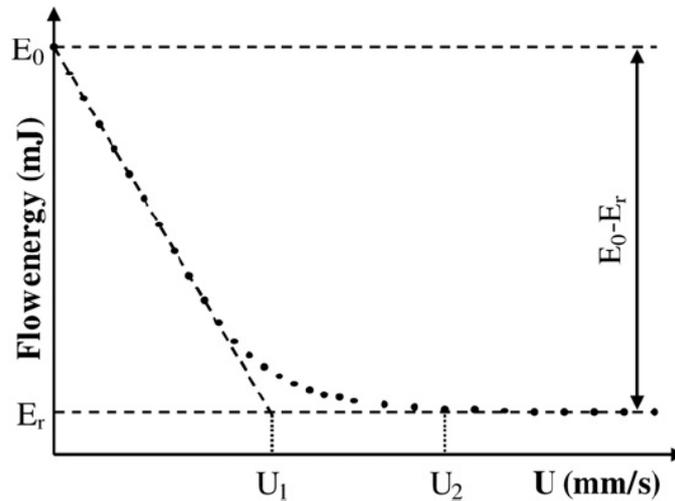


Figure I.22 : Variation de l'énergie de flux en fonction de la vitesse de l'air lors d'un test d'aération [Leturia et al. 2014]

Lorsque la vitesse de l'air augmente, l'énergie d'écoulement diminue jusqu'à ce que le lit de poudre soit partiellement fluidisé puis elle se stabilise lorsque le lit de poudre est complètement fluidisé. On note alors  $E_0$  le débit mesuré en lit fixe ( $U=0 \text{ mm.s}^{-1}$ ),  $E_r$  l'énergie résiduelle lorsque le lit de poudre est complètement fluidisé,  $U_1$  la vitesse de l'air correspondant à l'intersection de la droite décroissante et de l'asymptote horizontale, et  $U_2$  la vitesse de l'air à laquelle l'énergie du flux commence à être constante et égale à  $E_r$ . L'indice d'aération  $AI$  est donc défini comme :

$$AI = 100 \frac{E_r}{E_0} \quad (\text{Équation I.37})$$

## 2. 2. 3. Propriétés du lit de poudre

### 2. 2. 3. 1. Test de fluidisation

La fluidisation est un procédé permettant de mettre en suspension des particules dans une phase fluide (le plus souvent un gaz) [Leturia and Saleh 2014] et caractérise le lit de poudre.

Le comportement de la poudre lors de sa fluidisation peut être prédit selon le diamètre moyen et la masse volumique des particules étudiées, grâce à la classification de Geldart [Geldart 1973]. Quatre groupes ont donc été identifiés, comme le montre la Figure I.23 [Geldart 1973; Leturia and Saleh 2014]:

- groupe A : particules relativement fines et/ou de faible densité. La fluidisation est relativement facile, la fluidisation homogène se produit avant l'apparition des bulles. L'expansion du lit de poudre est prononcée. Lorsque la vitesse de fluidisation est augmentée, des bulles de petite taille apparaissent,
- groupe B : particules de taille comprise entre 40  $\mu\text{m}$  et 500  $\mu\text{m}$  et de masse volumique comprise entre 1400 et 4000  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ . La fluidisation est facile. De nombreuses bulles de grande taille apparaissent dès la vitesse minimale de fluidisation. L'expansion du lit de poudre est faible,
- groupe C : poudre fine cohésive. La fluidisation est difficile. Les forces interparticulaires cohésives sont supérieures aux forces exercées par le fluide, des chemins préférentiels se forment,
- groupe D : particules de grande taille et denses. La fluidisation est irrégulière. Les bulles formées sont de grande taille. Ces poudres sont utilisables dans les lits à jet.

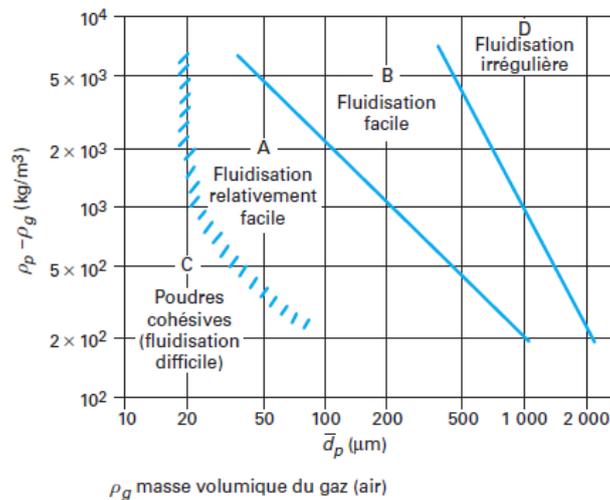


Figure I.23 : Classification de Geldart [Leturia and Saleh 2014]

### 2. 2. 3. 2. Test de perméabilité

La perméabilité est la capacité d'un matériau poreux à être traversé par un fluide et caractérise le lit de poudre. Elle dépend de la porosité et de la cohésion du lit de poudre. La poudre est soumise à une contrainte normale et de l'air circule à travers le lit de poudre. La différence de pression à travers le lit de poudre permet de calculer la perméabilité :

$$k = \frac{q\mu L}{\Delta P} \quad (\text{Équation I.38})$$

où  $k$  est la perméabilité ( $\text{cm}^2$ ),  $q$  est la vitesse du flux d'air ( $\text{cm.s}^{-1}$ ),  $\mu$  est la viscosité de l'air ( $\text{Pa.s}$ ),  $L$  est la hauteur du lit de poudre ( $\text{cm}$ ) et  $\Delta P$  est la chute de pression à travers le lit de poudre ( $\text{Pa}$ ).

### 2. 2. 3. 3. Test de tassement

Ce test est basé sur les forces interparticulaires et leur influence sur la masse volumique de la poudre [Schulze 2008]. Lorsque les forces interparticulaires attractives sont importantes, la cohésion entre les particules augmente. Cela peut entraîner la formation de porosités externes importantes (porosité interparticulaire élevée). Pour ce test, les masses volumiques aérée et tassée sont comparées [Leturia et al. 2014]. La masse volumique d'une poudre est définie comme le rapport de la masse de poudre sur le volume qu'elle occupe.

La masse volumique aérée  $\rho_0$  et la masse volumique tassée  $\rho_N$  (N chocs verticaux) permettent de déterminer le rapport de Hausner et l'indice de Carr (ou compressibilité), présentés dans le Tableau I.2. Ces deux paramètres transcrivent la cohésion des milieux granulaires. En effet, généralement, les poudres cohésives ont tendance à se tasser, contrairement aux poudres non-cohésives.

Tableau I.2 : Présentation du rapport d'Hausner et de l'indice de Carr

Paramètre	Formule	Interprétations
<b>Rapport d'Hausner (HR)</b>	$HR = \frac{\rho_N}{\rho_0} = \frac{V_0}{V_N}$	HR > 1,4 : groupe C (poudres cohésives) HR < 1,25 : groupe A (poudres non cohésives) 1,25 < HR < 1,4 : comportement intermédiaire
<b>Indice de Carr C (%)</b>	$C = 100 \left( 1 - \frac{\rho_0}{\rho_N} \right)$ $= 100 \frac{V_0 - V_N}{V_0}$	5 < C < 15 : bon écoulement 15 < C < 18 : écoulement correct 18 < C < 22 : écoulement passable 22 < C < 35 : écoulement médiocre 35 < C < 40 : écoulement très médiocre

### 2. 2. 3. 4. Test de compressibilité

La compressibilité caractérise l'évolution de la densité apparente de la poudre lorsqu'elle est soumise à une contrainte de consolidation [Schulze 2008]. Plus la densité apparente augmente, plus la poudre est compressible.

Pour réaliser ce test, présenté en Figure I.24, la poudre est placée dans une cellule, puis subit une contrainte normale  $\sigma_1$  à sa surface. En mesurant la hauteur occupée par la poudre et en ayant préalablement mesuré sa masse, la densité apparente peut être calculée pour chaque contrainte de consolidation  $\sigma_1$ . La compressibilité est définie comme le rapport de deux densités apparentes obtenues à deux contraintes de consolidation,  $\sigma_{1,A}$  et  $\sigma_{1,B}$ , où  $\sigma_{1,A}$  est la plus faible des deux contraintes. Les densités apparentes obtenues sont  $\rho_A$  et  $\rho_B$  (exprimées en  $\text{kg.m}^{-3}$ ), respectivement.

La compressibilité est donc définie par :

$$C = \frac{V_A - V_B}{V_A} = 1 - \frac{\rho_A}{\rho_B} \quad (\text{Équation I.39})$$

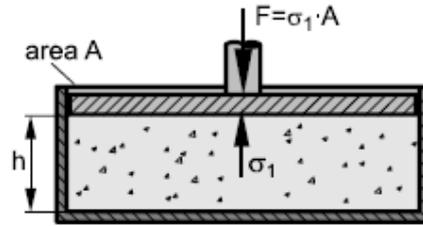


Figure I.24 : Schéma du test de compressibilité [Schulze 2008]

### 2. 2. 3. 5. Angle de repos

L'angle de repos  $\alpha_M$  correspond à la pente d'un tas de poudre plus ou moins conique et non compacté [Jenike 1964; Schulze 2008]. Il caractérise la cohésion de la poudre. En effet, plus la poudre est cohésive, plus l'angle de repos est élevé. Un test de mesure de l'angle de repos est représenté sur la Figure I.25. La poudre est versée dans un entonnoir et forme un tas sur une plaque située en dessous. L'entonnoir peut être fixe ou déplacé vers le haut pendant la formation du tas.

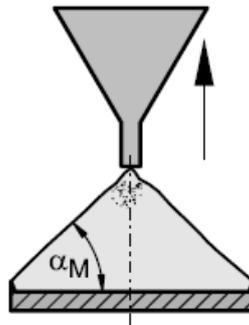


Figure I.25 : Présentation d'une mesure d'angle de repos [Schulze 2008]

La mesure de l'angle de repos est un test comparatif, ne permettant pas de quantifier la coulabilité dans l'absolu. La valeur de l'angle de repos dépend la morphologie et la taille des particules, ainsi que les frottements particule-particule et particule-paroi [Beakawi Al-Hashemi and Baghabra Al-Amoudi 2018]. Cependant, dans le cas de poudres cohésives, le tas formé peut avoir un sommet en pointe (Figure I.26) et il est alors difficile de déterminer une valeur d'angle de repos.

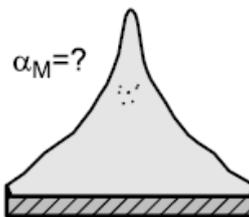


Figure I.26 : Angle de repos pour les poudres cohésives [Schulze 2008]

De plus, si la distribution granulométrique de la poudre étudiée est large, des phénomènes de ségrégation peuvent se produire au cours du test. En effet, les fines ont tendance à se situer au centre du tas alors que les grosses particules roulent sur les côtés.

## 2. 2. 4. Caractérisation de l'écoulement de poudres dans un procédé de fabrication

Au cours d'un procédé de fabrication de combustibles mixtes, la poudre subit différentes étapes de transfert. Elle peut chuter dans des conduites verticales, être stockée dans des jarres, passer à travers des trémies d'alimentation et s'écouler pour remplir un moule de presse. Plusieurs tests rhéologiques sont nécessaires pour caractériser la coulabilité dans ces étapes de transfert. Dans cette partie, la coulabilité lors de la vidange d'un silo ou d'une trémie d'alimentation et le remplissage d'un moule de presse sont étudiés.

### 2. 2. 4. 1. Vidange d'un silo ou d'une trémie d'alimentation

Dans les silos, deux cas extrêmes d'écoulement sont observés et dépendent des caractéristiques de la poudre et de la géométrie du silo, représentés en Figure I.27 [Saleh and Guigon 2012; Schulze 2008] :

- l'écoulement en masse (Figure I.27-a) : il permet une vidange complète du silo et un temps de stockage homogène dans le silo. En effet, les premières particules à entrer dans le silo sont les premières à en sortir,
- l'écoulement en cheminée (Figure I.27-b) : seule la partie contenue dans la cheminée centrale sort du silo alors que les particules situées en périphérie restent immobiles. Les premières particules à entrer dans le silo sont donc les dernières à en sortir. Des interventions humaines sont nécessaires pour vidanger complètement le silo.

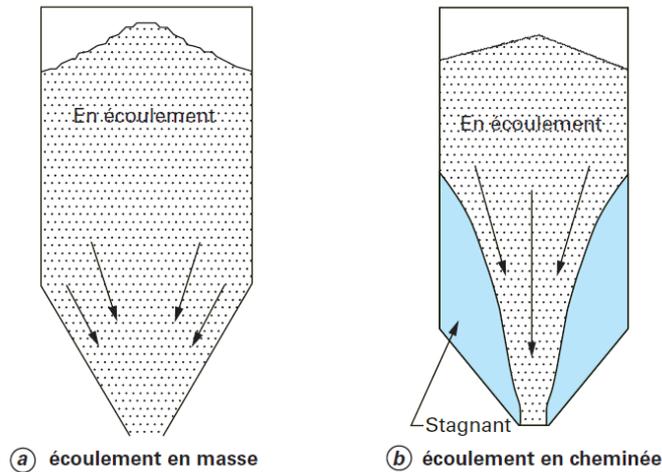


Figure I.27 : Différents modes d'écoulement dans un silo [Saleh and Guigon 2012]

Afin de prédire l'écoulement de la poudre dans un silo ou une trémie d'alimentation, différentes caractérisations sont nécessaires. En effet, lors de la vidange d'un silo ou d'une trémie d'alimentation, différentes étapes ont lieu : initialement, la poudre est en état statique et consolidée sous son propre poids, l'orifice est ensuite ouvert permettant à la poudre de se mettre en écoulement, puis elle est aérée lorsqu'elle est en écoulement dynamique lors de la vidange [Freeman 2021].

En effet, des contraintes sont appliquées à la poudre lors d'un stockage dans un silo ou une trémie d'alimentation. Un silo peut être considéré comme l'assemblage d'une section cylindrique verticale et d'une trémie (section conique). Plusieurs auteurs se sont intéressés aux contraintes subies par la poudre dans une section verticale [Woodcock and Mason 1988; Schulze 2008] et dans une trémie

[Saleh and Guigon 2012]. Elles dépendent de leur géométrie et des propriétés de la poudre [Schulze 2008].

La poudre est consolidée et doit se mettre en écoulement lors de l'ouverture de l'orifice. Différents tests de caractérisations rhéologiques présentés précédemment permettent de prédire le comportement de la poudre lors de cette étape. La détermination du diamètre d'écoulement spontané, les tests de cisaillements avec les angles de frottement poudre-poudre et poudre-paroi permettent de caractériser la mise en écoulement de la poudre [Freeman et al. 2013; Freeman and Cooke 2006; Seville et al. 1997]. Plus le diamètre d'écoulement spontané, les angles de frottement poudre-poudre et poudre-paroi sont élevés et l'indice de coulabilité  $ff_c$  est faible, plus la mise en écoulement sera difficile. De plus, la compressibilité permet de caractériser l'arrangement initial des agglomérats. Plus l'arrangement initial est compact, plus la compressibilité est faible.

Lorsque la poudre est en écoulement, les tests de perméabilité et VFR permettent de caractériser la poudre en écoulement dynamique. Si la perméabilité est faible, l'écoulement est difficile [Freeman and Cooke 2006]. De plus, des paramètres d'énergie d'écoulement, tels que l'énergie spécifique SE et le BFE, obtenus avec le test VFR, permettent de caractériser l'écoulement dynamique des poudres [Freeman 2017]. Plus les valeurs de ces paramètres sont élevées, plus l'écoulement sera difficile.

#### **2. 2. 4. 2. Remplissage d'un moule de presse**

Lors de la fabrication de pastilles ou de comprimés, le remplissage du moule de presse est une étape cruciale. Il doit être densément rempli avec une faible porosité, sans compromettre la capacité de production [Freeman et al. 2013]. Si la matrice n'est pas remplie uniformément, elle contiendra de l'air ce qui entrainera une grande variabilité de poids et donc une mauvaise reproductibilité des pastilles [Freeman 2019]. Lorsque le sabot contenant la poudre passe au-dessus du moule de presse, la poudre doit se mettre en écoulement puis s'écouler de manière homogène et régulière dans la matrice.

La détermination du diamètre d'écoulement spontané permet de savoir si la poudre pourra s'écouler dans le moule de presse. De plus, la fonction d'écoulement permet de caractériser la mise en écoulement de la poudre. La poudre subit ensuite un écoulement dynamique influencé par [Freeman et al. 2013; Freeman 2019; Freeman and Cooke 2006] :

- sa cohésion : une poudre avec une cohésion élevée ne s'écoule pas de manière régulière,
- la friction et l'enchevêtrement (« interlocking ») entre les particules : les particules peuvent se bloquer entre elles et créent des « arches » entraînant des blocages de la poudre,
- une faible perméabilité : l'air doit pouvoir s'échapper entre les particules pour sortir du moule de presse afin de ne pas entraver le bon remplissage.

Afin de caractériser l'écoulement dynamique dans un moule de presse, différents tests sont utilisés. Comme dit précédemment, le VFR permet de déterminer l'énergie spécifique et le BFE. Ces énergies dépendent de la cohésion de la poudre, des phénomènes de friction et d'enchevêtrement (« interlocking ») [Freeman et al. 2013; Freeman 2019]. La perméabilité peut être déterminée grâce au test de perméabilité du rhéomètre à poudre FT4 (Freeman Technology). Plus la perméabilité est élevée, plus l'écoulement est aisé [Freeman et al. 2013].

### 3. LIEN ENTRE LES ÉTAPES DES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE ET LE COMPORTEMENT DES POUDRES

---

Les étapes d'un procédé de fabrication vont entraîner des modifications des caractéristiques des poudres, notamment de la morphologie et de la distribution granulométrique. Ces caractéristiques peuvent être modifiées volontairement par différentes opérations unitaires (granulation, broyage, etc.) comme vu dans la section 3. 1. 1 mais elles peuvent également être modifiées au cours d'étapes de transfert (par fragmentation, attrition et/ou abrasion) comme présenté en section 3. 1. 2. Ces différentes modifications vont entraîner une évolution du comportement de la poudre (section 3. 2).

#### 3. 1. DIFFÉRENTES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE ET LEUR IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES

Dans un premier temps, nous étudions l'impact du procédé de fabrication de combustible nucléaire sur les caractéristiques des poudres.

##### 3. 1. 1. Méthodes de préparation du milieu granulaire et leur impact sur les caractéristiques des poudres

Pour la préparation du milieu granulaire, les opérations unitaires considérées pour cette étude sont le broyage dans un broyeur à boulets, le mélangeur en V, le tamisage-forçage avec un OscilloWitt-Lab et enfin la lubrification.

###### 3. 1. 1. 1. *Présentation des différentes méthodes de préparation du milieu granulaire*

###### 3. 1. 1. 1. 1. *Broyage dans un broyeur à boulets*

Le broyeur à boulets est constitué d'une cuve remplie partiellement de corps broyants (appelés « galets ») qui peut être mise en rotation selon un angle par rapport à l'horizontale [Seiss 1995]. Afin d'avoir un broyage efficace, différents paramètres sont à contrôler, comme le taux de remplissage des galets et de la poudre, et le coefficient de remplissage poudre-galets.

Différents mécanismes de broyage peuvent survenir dans un broyeur à boulets et dépendent de la vitesse de rotation par rapport à la vitesse critique de rotation. Cette dernière est atteinte lorsque les corps broyants sont plaqués contre les parois de la cuve (Figure I.28). En négligeant les frottements, la vitesse critique de rotation  $w_c$ , exprimée en  $\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$ , est :

$$w_c = \sqrt{\frac{2g}{D-d}} \quad (\text{Équation I.40})$$

où  $g$  est l'accélération de la pesanteur ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$ ),  $D$  le diamètre interne de la cuve (m) et  $d$  le diamètre maximal du corps broyant (m).

Il existe trois mécanismes de broyage [Seiss 1995; Orozco 2019], représentés en Figure I.28 :

- broyage par glissement : pour de faibles vitesses de rotation et une faible quantité de corps broyants, les corps broyants montent légèrement le long de la cuve mais à une hauteur très

faible avant de glisser les uns contre les autres. La poudre est broyée par frottement entre les corps broyants et entre le corps broyant et la paroi de la cuve. Ce broyage est peu efficace,

- broyage par cascade : pour des vitesses légèrement plus élevées et une grande quantité de corps broyants, les corps broyants montent le long de la cuve jusqu'à une certaine hauteur et redescendent le long du plan incliné formé par les corps broyants. La poudre est donc broyée par compression et par frottement entre les corps broyants. Ce mécanisme est favorable à un broyage fin,
- broyage par cataracte : pour une vitesse de rotation plus élevée (supérieure à 75% de la vitesse critique), les corps broyants sont entraînés plus haut le long des parois de la cuve et retombent en suivant une trajectoire parabolique. La poudre est donc broyée par impact des corps broyants. Ce mécanisme produit un broyage plus grossier.

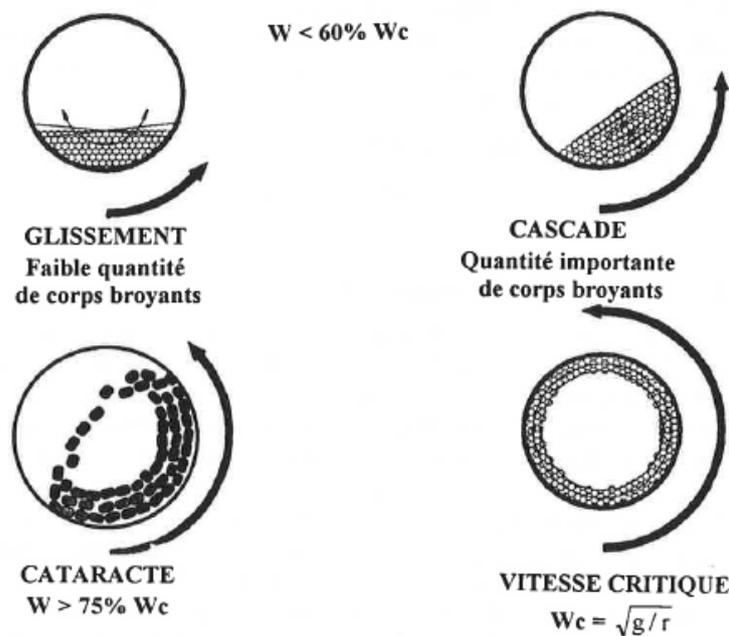


Figure I.28 : Mécanismes de broyage [Seiss 1995]

### 3. 1. 1. 1. 2. Mélangeur en V

Un mélangeur en V est composé de deux cylindres formant un angle compris entre 75° et 90° (Figure I.29) [Crouter and Briens 2016]. Il peut être équipé d'une turbine le long de son axe de rotation. En chutant dans le mélangeur en V, les particules se séparent et se recombinent continuellement, avec un mélange effectué par les chutes aléatoires des particules dans le mélangeur. Ce mélangeur en V peut être équipé d'une turbine permettant le fractionnement des agglomérats [Singhai et al. 2010]. Il présente différents avantages tels qu'une réduction limitée de la taille de particules, donc la possibilité d'être utilisé avec des matériaux fragiles, ainsi que la facilité de chargement, de déchargement et de nettoyage. Cependant, il est inapproprié pour les mélanges de particules ayant des tailles et des densités très différentes, en raison de phénomènes de ségrégation possibles [Crouter and Briens 2016].



Figure I.29 : Image du mélangeur en V du DEC/SA3E placé en BâG (a) et de sa turbine située le long de son axe de rotation (b)

### 3. 1. 1. 1. 3. OscilloWitt-Lab de la marque Frewitt

L'OscilloWitt-Lab (moulin oscillant et rotatif) de la marque Frewitt est composé d'un tamis cylindrique et d'une pale en rotation (Figure I.30). Cette technologie pour la réduction de la taille des particules est souvent utilisée car les appareils sont compacts, peu coûteux, robustes et ils peuvent être utilisés en continu.

La fragmentation des particules dans ce type de technologie est principalement due aux impacts entre le rotor et les particules et aux impacts entre les particules et la plaque de tamisage [Ämmälä et al. 2018; Nalluri 2011]. Ces impacts dépendent du temps passé dans la zone de broyage et donc de la probabilité du passage des particules à travers la plaque de tamisage. Selon l'angle de l'impact et l'orientation de la particule lors du passage forcé à travers le tamis, la réduction de la taille des particules peut varier.



Figure I.30 : Image de l'OscilloWitt-Lab (de la marque Frewitt) du DEC/SA3E placé en BâG

### 3. 1. 1. 1. 4. Lubrification

L'étape de lubrification est réalisée pour diminuer les frottements au sein de la poudre et entre la poudre et les parois de la matrice de presse lors de la compaction et de l'éjection des comprimés [Israelachvili 2011]. Le lubrifiant, ajouté à la poudre en très faible quantité (moins de 1%<sub>m</sub>), permet en effet de minimiser les frottements au sein de la poudre et entre la poudre et les parois de la matrice de presse par la présence de lubrifiant adhérent à la surface des particules et par conséquent par la diminution de leur rugosité de surface. Cependant, il peut entraîner une augmentation des rugosités de surface pour des particules lisses [Li and Wu 2014].

### 3. 1. 1. 2. Influence de ces méthodes de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques des poudres

Chacune des opérations définies ci-dessus va entraîner la modification de caractéristiques physiques de la poudre. Le Tableau I.3 regroupe certaines tendances relevées lors de l'analyse de la littérature portant sur l'influence de ces étapes sur les caractéristiques physiques des poudres.

Tableau I.3 : Influence des opérations étudiées sur les caractéristiques physiques des poudres

Techniques ou opération	Taille des particules	Étendue granulométrique	Morphologie des particules	Domaine	Référence
<b>Broyeur à boulets</b>	↘	↘	Plus sphérique ou plus anguleux <sup>1</sup>	Biomédical, industrie céramique et chimique	[Taghian Dehaghani et al. 2014; Moosakazemi et al. 2017]
<b>Mélangeur en V<sup>2</sup></b>	↘	X	Plus sphérique ou plus rugueuse <sup>3</sup>	Industrie pharmaceutique	[Morin and Briens 2013 ; Pingali et al. 2011 ; Horibe et al. 2018]
<b>Frewitt</b>	↘	↘	Plus sphérique	Industrie pharmaceutique et valorisation de biomasses	[Nalluri 2011; Ämmälä et al. 2018]
<b>Lubrification<sup>4</sup></b>	X	X	Plus sphérique et possibilité d'augmenter la rugosité de surface	Industrie nucléaire et pharmaceutique	[Santana et al. 2011; Li and Wu 2014]

↗ : Augmentation de cette caractéristique

↘ : Diminution de cette caractéristique

X : Renseignements non trouvés dans la littérature

<sup>1</sup> : Dépend du mécanisme de broyage

<sup>2</sup> : Résultats présentés avec lubrification associée car le mélangeur en V n'est pas étudié seul

<sup>3</sup> : Dépend de la forme initiale des particules

<sup>4</sup> : Effectuée au mélangeur en V ou en lubrification externe

### **3. 1. 2. Impact de certaines étapes de transfert sur le comportement de la poudre**

Les étapes de transfert peuvent également entraîner une modification des caractéristiques de la poudre. En effet, les poudres peuvent être soumises à des contraintes importantes lors de ces étapes. Les phénomènes d'attrition et de ségrégation des poudres peuvent se produire lors des étapes de transfert dans un procédé de fabrication, ce qui modifiera leur comportement [Freeman and Cooke 2006].

#### ***3. 1. 2. 1. Étape de remplissage/vidange d'un silo ou d'une trémie d'alimentation***

Lors du remplissage ou de la vidange des silos ou trémie d'alimentation, les principaux mécanismes de ségrégation rencontrés sont [Saleh and Leturia 2020] :

- la ségrégation due aux vibrations : lorsque des vibrations verticales sont appliquées aux silos pour mettre la poudre en écoulement, les fines particules chutent et se placent dans les espaces interparticulaires des plus grosses particules et entraînent une ségrégation par la taille,
- la ségrégation due à l'aération ou à la fluidisation : afin d'améliorer le débit ou d'éviter l'encrassement de produit, l'aération ou la fluidisation peuvent être utilisées dans les silos. Cependant, le flux d'air peut déplacer les particules les plus fines ou les moins denses vers le haut du silo ce qui entraîne une ségrégation verticale,
- la ségrégation par élutriation : le remplissage du silo peut entraîner un flux d'air engendré par la poudre elle-même. Ce flux d'air peut mettre en suspension les particules les plus fines ou les moins denses qui vont alors se déposer les côtés du talus,
- la ségrégation due aux trajectoires : lorsqu'un silo est chargé par un convoyeur pneumatique, les particules sont projetées et leurs trajectoires dépendent de leur poids : les particules les plus fines vont moins loin et moins vite que les grosses particules.

La ségrégation dans les trémies d'alimentation ou les silos est donc dépendante de la distribution granulométrique [Cizeau et al. 1998; Artega and Tüzün 1990; Engblom et al. 2012] et la densité des poudres [Seil et al. 2012; Shinohara and Golman 2003].

Concernant les phénomènes d'attrition, ils peuvent avoir lieu dans le fond d'un silo ou d'une trémie d'alimentation [Gamble et al. 2017]. Ils dépendent du taux de remplissage et donc de la contrainte subie par la poudre (section 2. 2. 4. 1).

#### ***3. 1. 2. 2. Étape de remplissage d'un moule de presse***

Les phénomènes de ségrégation ou d'attrition se produisent également lors du remplissage des moules de presse.

Lorsqu'un moule de presse est rempli sous air, les fines particules sont plus élevées au fond (selon la direction verticale) et au centre (selon la direction radiale) du moule [Guo et al. 2011]. En effet, les fines particules se placent dans les espaces interparticulaires des grosses particules et rejoignent le fond du moule. Ce phénomène est appelé phénomène de percolation. Lorsqu'un sabot est utilisé, des phénomènes de ségrégation peuvent se produire dans le sabot d'alimentation. Les fines particules se placent dans les espaces interparticulaires des grosses particules et chutent dans le sabot, les grosses particules se trouvent donc à la surface libre du sabot. Ceci explique que les fines particules sont majoritairement présentes du côté du moule par lequel le sabot débute le remplissage du moule. En parallèle, les grosses particules roulent à la surface libre du sabot et vont avoir tendance à chuter principalement à l'autre extrémité du moule. Sur la hauteur du moule de presse, les fines particules sont

majoritairement présentes au fond dû au phénomène de percolation mais également à la surface dû au cisaillement de la poudre entre le sabot et le moule [Guo et al. 2011]. Les phénomènes de percolation présents dans le sabot dépendent de la vitesse de ce dernier [Mateo-Ortiz et al. 2014].

Des phénomènes d'attrition peuvent également avoir lieu au fond du sabot de remplissage. En effet, la force normale appliquée entre le sabot et le moule de presse ainsi que la force tangentielle augmentent lorsque la taille des particules augmente [Mateo-Ortiz and Méndez 2015]. Ce phénomène dépend de la vitesse du sabot [Mateo-Ortiz et al. 2014; Mateo-Ortiz and Méndez 2015; Mendez et al. 2012].

### **3. 2. INFLUENCE DES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES SUR LEUR COMPORTEMENT**

Le comportement des poudres dépend de leurs caractéristiques et des conditions environnementales de mise en œuvre.

#### **3. 2. 1. Influence de la distribution granulométrique**

La taille des particules et la distribution granulométrique influencent la coulabilité des poudres. Comme vu précédemment, la taille des particules influence les forces interparticulaires. Lorsque la taille des particules diminue jusqu'à ce que les forces de Van der Waals deviennent prédominantes devant les forces gravitationnelles, les poudres ont tendance à être cohésives, c'est-à-dire qu'elles ne s'écoulent pas librement [Petit et al. 2017; Nalluri 2011; Demeyre 2004]. Ainsi, des poudres composées de particules plus grosses, pour lesquelles les forces gravitationnelles sont prédominantes devant les forces de Van der Waals, ont différentes propriétés :

- une compressibilité plus faible [Madian et al. 2020],
- une perméabilité plus élevée [Fu et al. 2012; Madian et al. 2020],
- un rapport d'Hausner plus faible [Geldart et al. 2006],
- un indice de Carr plus faible [Madian et al. 2020],
- un lieu d'écoulement plus élevé [Shinohara and Golman 2002; Madian et al. 2020],
- un BFE plus élevé et un FRI proche de 1 (définis en section 2. 2. 2. 1) [Madian et al. 2020].

De plus, des poudres de distribution granulométrique étroite s'écoulent mieux que des poudres de distribution granulométrique large [Nalluri 2011]. Plus la quantité de fines particules augmente, plus la surface de contact entre les particules est grande, ce qui entraîne une augmentation de la force de cohésion entre les particules et ainsi une mauvaise coulabilité. Par ailleurs, les fines particules peuvent se placer à la surface des particules plus grosses et entraîner une rugosité de surface plus importante, ce qui est défavorable à l'écoulement [Petit et al. 2017]. Cependant, ce phénomène peut également être positif si les fines comblent les aspérités des grosses particules, les rendant ainsi plus sphériques. Cela diminue les forces de friction donc améliore l'écoulement [Petit et al. 2017].

Concernant la ségrégation, la répartition granulométrique, notamment la présence de fines particules, peut entraîner une ségrégation par la taille. Plus l'étendue de la distribution granulométrique est large, plus les phénomènes de ségrégation sont importants [Su et al. 2018]. De plus, les fines particules occupent les interstices laissés par les particules plus grosses. Lors de vibrations, les fines particules percolent dans les espaces libres, déplaçant les grosses particules à la surface du mélange, ce qui peut entraîner une ségrégation [Jain et al. 2013; Demeyre 2004].

### **3. 2. 2. Influence de la morphologie et de la rugosité de surface**

La morphologie des particules et la rugosité de surface influencent également la coulabilité des poudres. Des grains de forme irrégulière ou de surface rugueuse induisent un nombre de points de contacts entre les grains plus élevé que pour des particules sphériques. Cela peut engendrer un phénomène d'enchevêtrement (interlocking) entre les particules [Taylor 1948] et les forces de friction sont donc plus importantes dans ce cas et conduisent à un écoulement plus difficile [Petit et al. 2017; Nalluri 2011; Ishii et al. 2011]. L'angle de friction interne est donc plus important pour des particules rugueuses [Shinohara and Golman 2002]. De plus, les particules allongées s'emboîtent entre elles ce qui entraînent une augmentation de la friction. Elles sont donc plus compressibles et leur écoulement est dégradé [Bodhimage 2006].

Concernant la ségrégation, des particules de forme irrégulière ont tendance à ségréger : lors d'un test d'angle de repos [Alizadeh et al. 2017], les particules de forme irrégulière tendent à se positionner aux extrémités du tas de poudre. Lorsqu'un mélange de particules sphériques et de forme irrégulière est soumis à des vibrations, les particules de forme irrégulière se déplacent à la surface, au-dessus des particules sphériques [Roskilly et al. 2010].

### **3. 2. 3. Influence de l'humidité**

L'écoulement dépend également des conditions expérimentales comme l'humidité relative. Comme vu précédemment, quand l'humidité relative est importante, des ponts liquides peuvent se former entre les particules et induisent une forte augmentation des interactions particulaires. Plus l'humidité relative est élevée, plus l'eau sera présente sur le solide (phénomène d'absorption ou d'adsorption). Ainsi, plus le taux d'humidité des poudres est important, plus la cohésion augmente et l'écoulement est difficile [Nalluri 2011; Chen et al. 2012]. Cependant, ce comportement dépend du type de poudre [Emery et al. 2009]. Dans certains cas en effet, l'humidité dans la poudre peut avoir un effet de lubrification sur la surface des grains permettant de recouvrir les aspérités et d'améliorer l'écoulement.

De plus, l'humidité relative diminue les phénomènes de ségrégation [Lim 2016]. En effet, les ponts liquides diminuent le mouvement des particules les unes par rapport aux autres, ce qui empêche la ségrégation.

### **3. 2. 4. Influence de la température**

Dans le cadre de matériaux céramiques, une étude des propriétés d'écoulement des poudres en fonction de leurs tailles et de la température a été réalisée [Chirone et al. 2016]. Comme mentionné précédemment, la taille des particules influe sur la coulabilité. Concernant l'influence de la température sur l'écoulement, les variations des fonctions d'écoulement sont très faibles quelle que soit la taille des particules. La température a donc un impact direct négligeable sur la coulabilité de poudres céramiques. Elle peut néanmoins influencer le taux d'humidité et donc impacter indirectement la coulabilité des poudres.

## **4. SIMULATION POUR L'ÉTUDE À L'ÉCHELLE INDUSTRIELLE**

---

Le comportement dynamique des poudres à grande échelle est complexe et difficile à étudier en raison des différences observées lors du passage de l'échelle du laboratoire à l'échelle industrielle. La simulation est fréquemment utilisée afin d'obtenir des renseignements sur le comportement des poudres. Nous nous intéressons ici à la simulation par la Méthode des Éléments Discrets, notée DEM (Discrete

Element Method). Elle a été choisie car elle permet de simuler le mouvement des particules en tenant compte des forces extérieures et internes appliquées (masse des particules, forces d'interactions poudre-poudre et poudre-paroi) et de visualiser, notamment, l'écoulement des particules et les phénomènes de ségrégation pouvant survenir [Seville et al. 1997].

## 4. 1. PRÉSENTATION DE LA MÉTHODE DES ÉLÉMENTS DISCRETS

### 4. 1. 1. Principes de la DEM

Initialement, la méthode des éléments discrets a été développée par Cundall et Strack [Cundall and Strack 1979]. Cette méthode considère des particules finies, dont le déplacement est décrit par les équations de mouvement de Newton, qui interagissent grâce aux forces interparticulaires [Zhu et al. 2008]. Différents paramètres des particules peuvent être pris en compte dans une modélisation DEM comme la taille des particules, leur morphologie [Golchert et al. 2004], etc. Ces simulations permettent de renseigner des informations dynamiques (position, vitesse) sur chaque particule individuelle. Pour chaque pas de temps, elles sont donc calculées en fonction du modèle de contact utilisé. Il existe différents modèles de contact prenant en compte différents paramètres comme, par exemple, les forces de frottements [Martin and Bordia 2008], ou les forces de cohésion.

Les différentes étapes par pas de temps lors d'une simulation DEM [Parant 2016] sont représentées en Figure I.31.

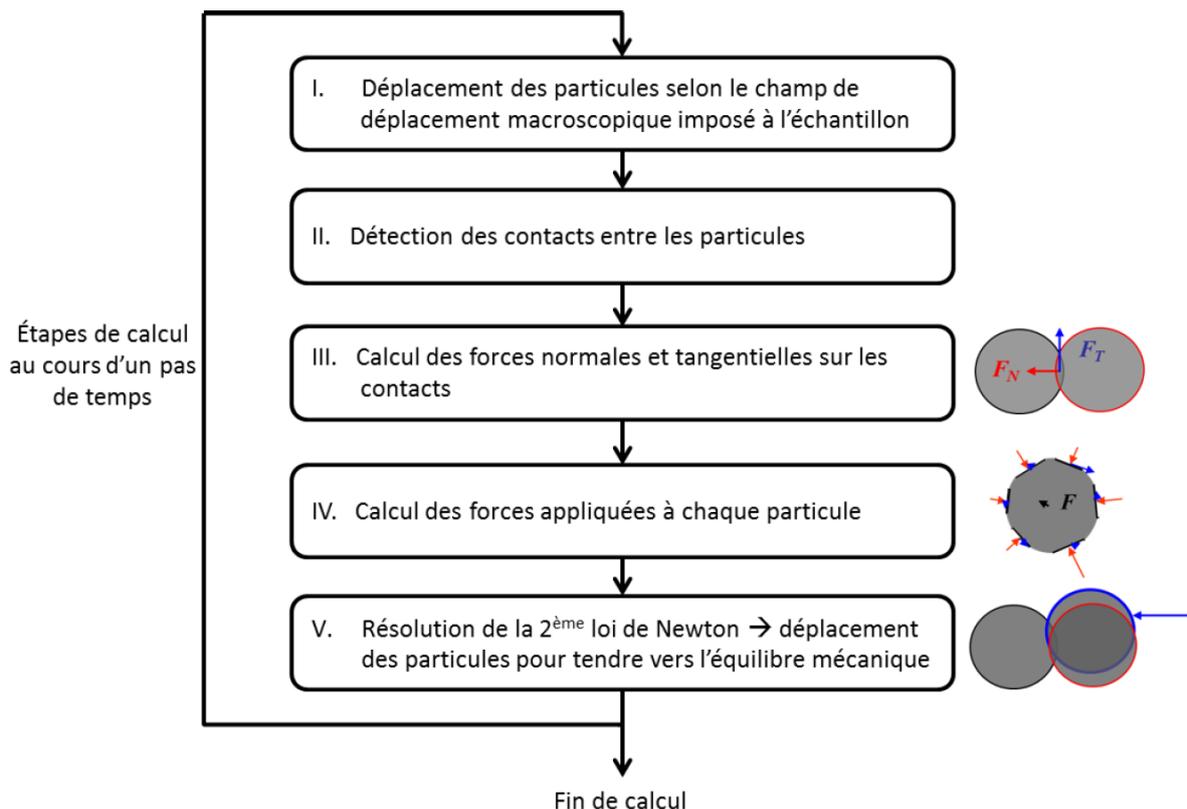


Figure I.31 : Étapes effectuées lors de la simulation par DEM [Parant 2016]

À chaque pas de temps, les particules se déplacent selon le champ de déplacement macroscopique imposé à l'échantillon. Les particules en contact sont ensuite identifiées et les forces normales et tangentielles s'exerçant sur chaque particule en contact sont calculées selon le modèle de

contact utilisé. La force totale appliquée aux particules est calculée à partir de ces forces de contact et les forces extérieures appliquées à la particule. La seconde loi de Newton est appliquée. La somme des forces  $\sum \vec{F}$  appliquées à une particule est égale au produit de sa masse  $m$  et de son accélération  $\vec{a}$  (Équation I.43). De plus, cette loi est aussi appliquée en rotation. Ainsi, la somme des moments  $\sum \vec{T}$  auxquels une particule est soumise est égale au produit de son moment d'inertie  $I$  par son accélération angulaire  $\vec{a}_\omega$  (Équation I.44).

$$\sum \vec{F} = m\vec{a} \quad (\text{Équation I.41})$$

$$\sum \vec{T} = I\vec{a}_\omega \quad (\text{Équation I.42})$$

Grâce à des algorithmes d'intégration de ces accélérations, les vitesses et les positions sont obtenues. Chacune de ces informations peut être enregistrée à différents temps. Le pas de temps doit être suffisamment petit pour assurer la stabilité de la méthode sans pour autant entraîner des temps de calcul trop longs. Un compromis entre la stabilité de la méthode et la rapidité des simulations est donc nécessaire. Pour ce faire, le pas de temps est pris inférieur à 20% du pas de temps critique. Généralement, le pas de temps critique correspond au pas de temps de Rayleigh  $\Delta t_R$ , calculé selon la formule [Marigo and Stitt 2015] :

$$\Delta t_R = \frac{\pi R \sqrt{2\rho(1+\nu)}}{0,1631\nu + 0,8766} \frac{1}{\sqrt{E}} \quad (\text{Équation I.43})$$

avec  $R$  le rayon des particules,  $\rho$  leur masse volumique,  $\nu$  leur coefficient de Poisson et  $E$  leur module d'Young.

Grâce à la simulation DEM, différents phénomènes ou opérations unitaires du procédé de fabrication des pastilles peuvent être étudiés, tels que le broyage [Bian et al. 2017; Orozco 2019], le mélange de poudre [Horibe et al. 2018], le remplissage de moule de presse [Wu et al. 2003; Wu and Cocks 2006; Mehrotra et al. 2009] et la compression uniaxiale [Wiącek et al. 2012; Golchert et al. 2004] par exemple. Elles permettent de mieux comprendre le comportement général de la poudre, comme sa coulabilité [Tykhoniuk et al. 2007; Tomas 2004] ou encore les phénomènes de ségrégation possibles [Mateo-Ortiz et al. 2014; Guo et al. 2011; Zhou et al. 2002]. Il est également possible de restreindre le champ des investigations expérimentales grâce à la simulation, en particulier lorsque la quantité de poudre est limitée ou lorsque leur manipulation est contraignante (cas pour les poudres d'oxydes d'actinides).

#### 4. 1. 2. Présentation des modèles de contact

Différents modèles de contact peuvent être utilisés en DEM, par exemple, le modèle linéaire de Hooke et le modèle non-linéaire de Hertz. Le choix de ce modèle est important, il permet de déterminer les forces interparticulaires et donc les mouvements des particules. La déformation interparticulaire est définie par l'enchevêtrement entre deux particules. Pour deux particules sphériques de rayons  $R_1$  et  $R_2$  et de centre  $x_i^1$  et  $x_i^2$  (Figure I.32), l'enchevêtrement  $\delta_n$  est déterminé par :

$$\delta_n = R_1 + R_2 - |x_i^1 - x_i^2| \quad (\text{Équation I.44})$$

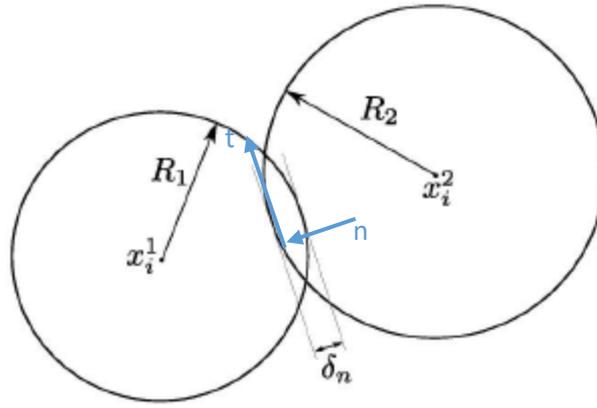


Figure I.32 : Enchevêtrement interparticulaire

#### 4. 1. 2. 1. Modèle de Hooke

Le modèle de Hooke est linéaire et est donc le plus simple. La précision de ce modèle peut être suffisante selon le système étudié. Dans ce modèle, le contact interparticulaire est considéré comme un système de ressort-amortisseur dans lequel le ressort représente la force d'élasticité et l'amortisseur représente l'effet d'amortissement. La force normale  $F_n$  est donc calculée grâce à :

$$F_n = k_n \delta_n + \gamma_n \Delta v_n \quad (\text{Équation I.45})$$

avec  $k_n$  le coefficient de raideur normal entre deux particules,  $\gamma_n$  le coefficient d'amortissement normal et  $\Delta v_n$  la vitesse relative interparticulaire normale. En déformation quasi-statique, la force d'amortissement est négligeable devant la force élastique donc la force normale  $F_n$  est linéaire à l'enchevêtrement  $\delta_n$ .

De la même manière, la force interparticulaire tangentielle est définie par :

$$F_t = k_t \delta_t + \gamma_t \Delta v_t \quad (\text{Équation I.46})$$

avec  $k_t$  le coefficient de raideur tangentielle entre deux particules,  $\gamma_t$  le coefficient d'amortissement tangentielle et  $\Delta v_t$  la vitesse relative interparticulaire tangentielle. L'enchevêtrement tangentielle  $\delta_t$  peut être calculé en intégrant la vitesse relative interparticulaire tangentielle  $\Delta v_t$  entre un instant de contact  $t_0$  et un instant  $t$ . Cette formule est valable si la force interparticulaire tangentielle est inférieure ou égale aux frottements de Coulomb :

$$F_t \leq \mu F_n \quad (\text{Équation I.47})$$

avec  $\mu$  le coefficient de frottement dynamique.

#### 4. 1. 2. 2. Modèle de Hertz

Le modèle de Hertz est non linéaire, il nécessite donc des temps de calcul plus longs. Cependant, le calcul des forces interparticulaires se base sur les propriétés des matériaux, il est donc plus précis. En considérant deux particules sphériques de rayons  $R_1$  et  $R_2$ , de modules d'Young  $E_1$  et  $E_2$ , de modules de cisaillement  $G_1$  et  $G_2$  et de coefficients de Poisson  $\nu_1$  et  $\nu_2$ , le rayon effectif  $R^*$ , le module d'Young effectif  $E^*$  et le module de cisaillement effectif  $G^*$  peuvent être calculés :

$$R^* = \left( \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right)^{-1} \quad (\text{Équation I.48})$$

$$E^* = \frac{1 - \nu_1^2}{E_1} + \frac{1 - \nu_2^2}{E_2} \quad (\text{Équation I.49})$$

$$G^* = \left( \frac{1 - \nu_1}{G_1} + \frac{1 - \nu_2}{G_2} \right)^{-1} \quad (\text{Équation I.50})$$

La force normale  $F_n$  est alors calculée à partir de ces grandeurs effectives :

$$F_n = \frac{4}{3} E^* \sqrt{R^*} \delta_n^{3/2} + \gamma_n \delta_n^{1/4} \Delta v_n \quad (\text{Équation I.51})$$

où  $\gamma_n$  est déterminé à l'aide du coefficient de restitution.

Selon le modèle de Hertz-Mindlin, une variante du modèle de Hertz, la force tangentielle  $F_t$  est définie par :

$$F_t = \frac{16}{3} G^* \sqrt{R^*} \delta_n^{1/2} \delta_t \quad (\text{Équation I.52})$$

Cette formule est valable si la force interparticulaire tangentielle est inférieure ou égale aux frottements de Coulomb :

$$F_t \leq \mu F_n \quad (\text{Équation I.53})$$

avec  $\mu$  est le coefficient de frottement dynamique.

## 4. 2. CALIBRATION DES PARAMÈTRES DE SIMULATION

La calibration des paramètres de simulation est une étape importante et nécessaire avant de réaliser des simulations par DEM. En effet, différents paramètres de simulation sont difficiles à obtenir expérimentalement. De plus, les particules seront considérées comme sphériques, ce qui n'est pas le cas réellement. Afin d'obtenir tout de même un comportement de la poudre en simulation comparable à la réalité de la poudre étudiée, certains paramètres seront ajustés pour compenser certaines grandeurs non prises en compte dans la simulation. Pour réaliser cette calibration, une comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation d'essais de référence à échelle macroscopique est réalisée. Pour ce faire, différentes combinaisons de paramètres sont testées jusqu'à obtenir un écart acceptable par rapport à l'expérimentation.

La méthode de calibration par essai-erreur est la plus répandue. Elle consiste à répéter des simulations avec différentes combinaisons de paramètres jusqu'à obtenir un écart relatif acceptable avec les résultats obtenus expérimentalement d'essais de référence. Cette méthode est facile à réaliser. Cependant, elle présente de nombreux inconvénients : le nombre de simulations à effectuer n'est pas connu, le choix des valeurs des paramètres dépend de l'utilisateur et la combinaison de paramètres obtenue n'est pas forcément optimale. Une autre méthode est d'effectuer une boucle d'optimisation par la DEM jusqu'à rencontrer un critère d'arrêt choisi par l'utilisateur. Dans ce cas, l'avantage est

l'automatisation de la calibration. Cependant, les inconvénients restent les mêmes que cités précédemment. Diverses méthodes de calibration sont actuellement l'objet d'études, comme celles basées sur les algorithmes génétiques [Do et al. 2018] ou encore celles basées sur l'algorithme PSO (Particle Swarm Optimization) [Wang et al. 2021].

Dans le cadre de cette étude, une autre méthode d'automatisation de la calibration des paramètres a été réalisée : calibration par LHS-Krigeage-EGO. Elle se base sur la sélection d'échantillons générés par LHS et sur une interpolation par krigeage permettant l'obtention des résultats numériques des essais de référence obtenus par des simulations par DEM. Pour finir, l'optimisation EGO recherche la combinaison de paramètres minimisant les écarts entre les résultats expérimentaux et numériques. Les paramètres calibrés sont ainsi obtenus.

#### 4. 2. 1. Échantillonnage par Hypercube Latin (LHS)

L'échantillonnage par hypercube latin (Latin Hypercube Sampling, LHS) est une méthode statistique pour réaliser un échantillonnage quasi-aléatoire de plusieurs variables. Il est donc utilisé dans le but de sélectionner les combinaisons de paramètres de simulation à tester.

Pour ce faire, les paramètres à calibrer doivent être bornés [Olsson et al. 2003]. Le LHS génère alors  $n$  points de coordonnées aléatoires dont chaque composante correspond à un paramètre à calibrer en s'assurant que ces composantes soient différentes pour chaque point de coordonnées généré. Les avantages du LHS sont une couverture complète du domaine de chaque variable et la répartition de la distribution des valeurs en  $n$  intervalles de probabilité égale. Un exemple de la répartition pour quatre échantillons générés par LHS à partir de deux variables A et B est présenté sur la Figure I.33.

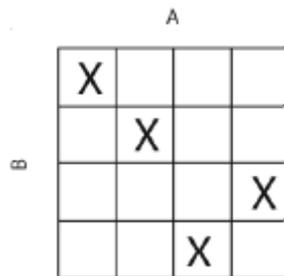


Figure I.33 : Répartition des variables A et B après LHS

En considérant  $P_1, P_2, \dots, P_k$  les  $k$  paramètres à calibrer. Le LHS génère  $n$  points  $X_i$  de coordonnées  $X_i = (P_1^i, P_2^i, \dots, P_k^i)$  avec  $i$  allant de 1 à  $n$ . Afin que la dernière étape de cette méthode de calibration soit efficace, le nombre d'échantillons  $n$  doit être 10 fois supérieur au nombre de paramètres à calibrer [Jones and Schonlau 1998]. Ces  $n$  combinaisons de paramètres sont ensuite utilisées pour réaliser  $n$  simulations par DEM. Ceci permet d'obtenir  $n$  résultats de simulation en fonction des  $n$  combinaisons testées.

#### 4. 2. 2. Krigeage

Suite aux  $n$  simulations permettant d'obtenir  $n$  résultats numériques, la seconde étape est le krigeage [Shi 2014]. Le krigeage est une méthode d'interpolation garantissant le minimum de variance permettant d'obtenir une relation entre les paramètres et les résultats numériques. Le type de résultats numériques sera développé par la suite. La réalisation du krigeage nécessite au minimum une entrée et une sortie. Dans notre cas, les entrées sont les  $n$  paramètres numériques générés par LHS et la sortie correspond aux  $n$  résultats numériques  $R_{num}$  obtenus par simulation DEM. Ils sont regroupés dans une

matrice  $M$  (Équation I.54), les  $k$  premières colonnes étant les entrées et la dernière colonne correspondante à la sortie.

$$M = \begin{bmatrix} P_1^1 & P_2^1 & \dots & P_k^1 & R_{num}^1 \\ P_1^2 & P_2^2 & \dots & P_k^2 & R_{num}^2 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots & \vdots \\ P_1^n & P_2^n & \dots & P_k^n & R_{num}^n \end{bmatrix} \quad (\text{Équation I.54})$$

Grâce à une fonction en boîte noire  $K$  (Équation I.55), le krigeage permet alors de déterminer la sortie en tout point du domaine sans avoir à effectuer des simulations par DEM.

$$K(P_1, P_2, \dots, P_k) = R_{num} \quad (\text{Équation I.55})$$

La dernière étape est alors de déterminer les paramètres permettant un écart minimal entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux.

#### 4. 2. 3. Efficient Global Optimization (EGO)

La dernière étape de calibration des paramètres est d'obtenir une combinaison optimale de paramètres numériques par Efficient Global Optimization (EGO) [Jones and Schonlau 1998; Forrester et al. 2008]. L'objectif de cette méthode est de trouver le minimum d'une fonction objectif  $F$  en boîte noire. La fonction objectif  $F$  est définie comme la somme des écarts relatifs entre les résultats numériques  $R_{num}$  et les résultats expérimentaux  $R_{exp}$  (Équation I.56).

$$F(X) = \sum_j \frac{|R_{num,j} - R_{exp,j}|}{R_{exp,j}} \quad (\text{Équation I.56})$$

L'image de  $F$  pour un point  $X$  peut alors être calculée. L'algorithme EGO est un algorithme d'optimisation basé sur le modèle de krigeage (différent du krigeage décrit dans la section 4. 2. 2). L'incertitude explicite du modèle de krigeage permet de transformer le problème probabiliste avec une réalisation d'une loi normale de moyenne  $\mu$  et de variance  $\sigma^2$ . L'algorithme EGO est basé également sur un critère d'enrichissement appelé « critère d'amélioration espérée », noté  $EI$  (Expected Improvement) (Équation I.57), avec  $f_{min}$  le minimum de  $F$ ,  $\Phi$  la fonction de répartition et  $\varphi$  la variable aléatoire de densité.

$$EI(X) = (f_{min} - \mu(X))\Phi\left(\frac{f_{min} - \mu(X)}{\sigma(X)}\right) + \sigma(X)\varphi\left(\frac{f_{min} - \mu(X)}{\sigma(X)}\right) \quad (\text{Équation I.57})$$

Ce critère définit les zones intéressantes comme un compromis entre la valeur du meilleur prédicteur et la valeur de l'incertitude associée au modèle. Il permet donc d'éviter une convergence vers un optimum local. Pour chaque itération d'optimisation, le point minimisant  $EI$  est recherché tel que  $X_{m+1} = \arg \max (EI(X))$ . Le premier terme de l'Équation I.57 est grand lorsque la moyenne  $\mu$  est plus petite que  $f_{min}$ . Le second terme est grand lorsque l'incertitude sur la moyenne  $\mu$  est élevée. Donc le critère  $EI$  est grand pour les régions avec une amélioration de  $f_{min}$  et/ou pour des régions avec une grande incertitude. Les points prometteurs sont donc donnés en maximisant le critère  $EI$ . Ce dernier est globalement de bonne qualité pour les petites dimensions (<15) et trouve la solution du problème en un nombre raisonnable d'itérations. Cette étape est répétée jusqu'à atteindre le nombre d'itérations indiqué

(critère d'arrêt) puis se conclut sur la sortie du minimum global de  $F$  et de son antécédent  $X_{opt}$ . Les coordonnées de  $X_{opt}$  donnent les paramètres numériques calibrés.

Un exemple mono-dimensionnel de la méthode EGO sur la fonction  $f(x) = x \cdot \sin(x)$  est représenté en Figure I.34.

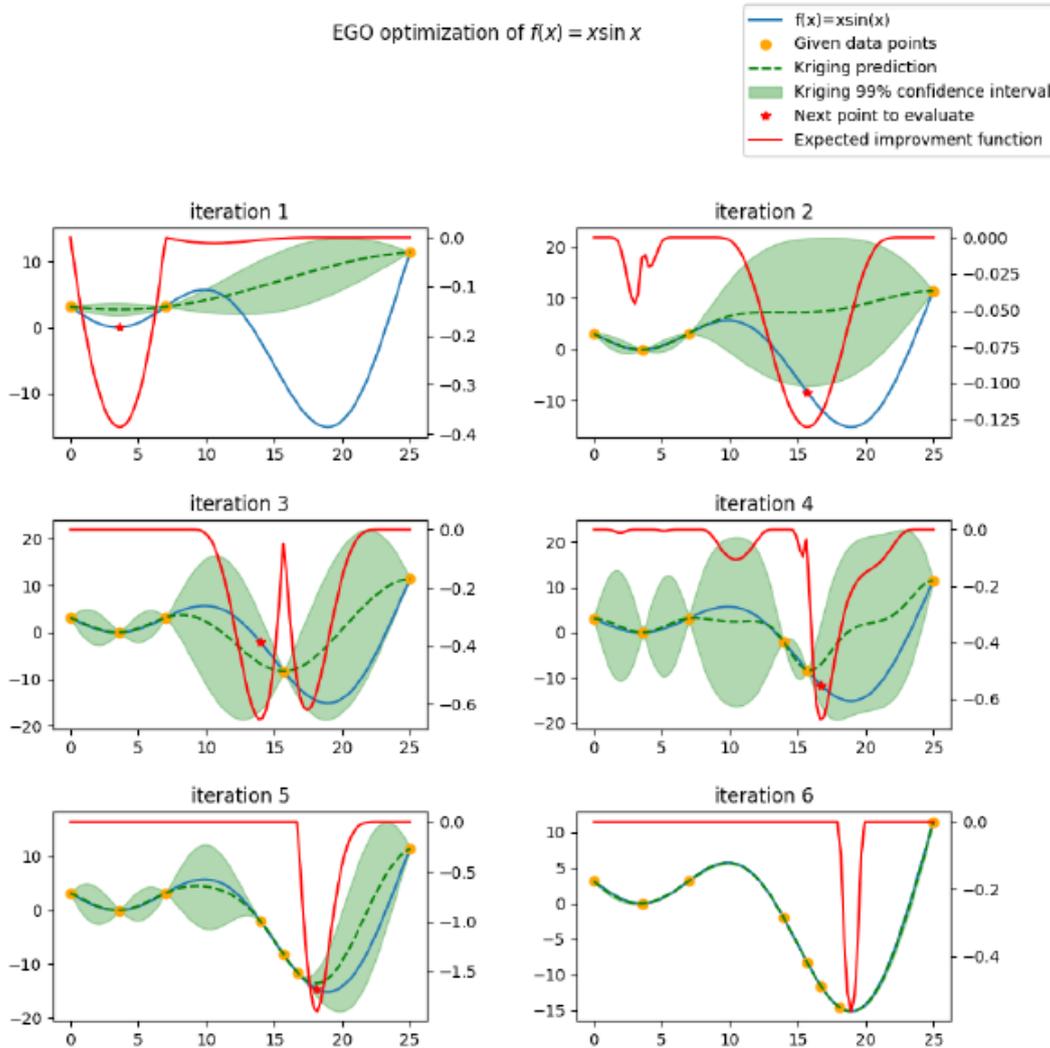


Figure I.34 : Exemple de la méthode EGO [Bouhleb et al. 2019]

Le minimum de cette fonction est recherché. Tout d'abord, l'image de cette fonction est calculée en trois points distincts (points jaunes). L'antécédent pour lequel la fonction de progression espérée  $EI$  est maximisé en valeur absolue (point rouge) est recherché. L'image de la fonction  $f$  de cet antécédent est calculé. Ce protocole est effectué pour six itérations durant lesquelles la précision du krigage de prédiction augmente. Le minimum global de la fonction  $f$  pour le nombre d'itérations donné est enfin déterminé. Dans cet exemple, le minimum est de -15,1 atteint pour  $x = 18,1$ .

Pour que la méthode d'optimisation par EGO soit efficace, le nombre d'itérations doit être 10 fois supérieur au nombre de paramètres numériques à calibrer [Jones and Schonlau 1998].

## 5. BILAN

---

Les poudres sont définies par leurs caractéristiques physiques (taille, forme, etc.), mécaniques (rigidité, dureté, ténacité, etc.) et chimiques (composition et adsorption). Les différentes caractéristiques des poudres vont impacter leur comportement.

Dans cette étude, les propriétés comportementales considérées sont la coulabilité et la ségrégation. Les propriétés d'écoulement dépendent des forces interparticulaires. Ces dernières dépendent de la taille des particules, de leur forme et leur rugosité de surface. Pour des particules fines ou avec des aspérités importantes, l'écoulement de la poudre est difficile. La distance séparant deux particules influence également l'écoulement. Contrôler les caractéristiques physiques de la poudre permet donc d'en améliorer les propriétés d'écoulement.

De plus, pour caractériser la coulabilité de la poudre, différents états de la poudre doivent être considérés : la mise en écoulement (transition statique-dynamique), l'écoulement dynamique ainsi que les propriétés du lit de poudre (perméabilité, arrangement des agglomérats). Différents niveaux de contraintes peuvent également être appliqués à la poudre lors des méthodes de caractérisation rhéologique (coulabilité lorsque la poudre est dans un état consolidé, non confiné ou aéré). Caractériser l'écoulement de la poudre lors de différentes étapes du procédé, telles que la vidange de trémies ou encore le remplissage d'un moule de presse, nécessite différents tests de caractérisation rhéologique.

Au cours des différentes étapes d'un procédé de fabrication, les caractéristiques des poudres vont évoluer ce qui va modifier leur comportement. La présence de fines particules et une distribution large ont tendance à dégrader l'écoulement et à entraîner une ségrégation par la taille. Les particules de forme irrégulière ou rugueuses dégradent également la coulabilité et peuvent entraîner une ségrégation par la forme. La présence d'humidité relative rend l'écoulement plus difficile mais elle peut limiter la ségrégation par augmentation des forces interparticulaires. Dans le cadre de matériaux céramiques, la température a un impact négligeable.

Enfin, dans le but d'étudier le changement d'échelle de certaines étapes de transfert, la simulation par la méthode des éléments discrets (DEM) est envisagée. Elle est largement utilisée dans le domaine des milieux granulaires et permet l'évaluation des différents comportements souvent difficiles à déterminer expérimentalement. Pour réaliser ces simulations, il est nécessaire de calibrer les paramètres de simulation. Une méthode de calibration par LHS-Krigeage-EGO est appliquée. L'avantage de cette méthode est l'optimisation des paramètres (la recherche d'une combinaison de paramètres calibrés) en limitant le nombre de simulations par DEM et donc le temps de calcul.

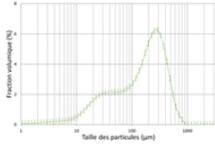
Bien que la coulabilité des poudres ait été largement étudiée dans de nombreux domaines, peu de recherches ont été effectuées sur la coulabilité et la ségrégation de poudres d'actinides, de même que l'impact du mélangeur en V et de l'OscilloWitt-Lab sur ces poudres. Enfin, la simulation DEM du comportement de poudres d'actinides lors des étapes de transfert est faiblement rapportée dans la littérature.

Fiche résumé du chapitre I

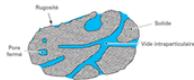
Caractéristiques des poudres

Caractéristiques physiques

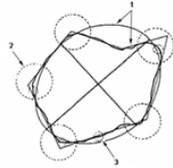
Taille et distribution granulométrique



Porosité et masses volumiques



Morphologie et rugosité de surface



Surface spécifique

Caractéristiques mécaniques

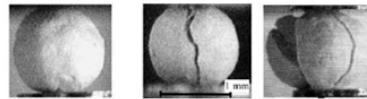


Fragmentation, attrition, abrasion

Rigidité

Coefficient de restitution

Contrainte à la rupture



Comportement des poudres

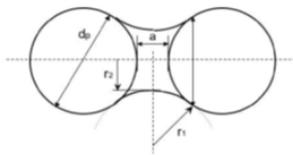
Forces interparticulaires

Force gravitationnelle

Forces de Van der Waals

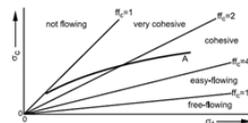
Force électrostatique

Force capillaire ou pont liquide

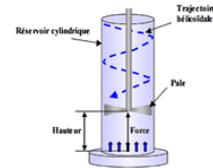


Coulabilité des poudres

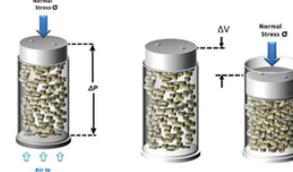
Mise en écoulement (transition statique/dynamique)



Écoulement dynamique



Propriétés du lit de poudre



Lien entre les étapes du procédé et le comportement des poudres

Étapes du procédé

Broyage

Mélangeur en V

Frewitt



Lubrification

Impact du procédé

Modification des caractéristiques des poudres

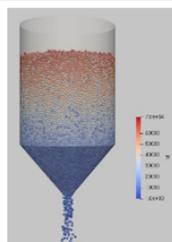
Modification du comportement des poudres

Coulabilité

Ségrégation

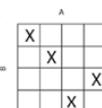
Simulation pour l'étude à échelle industrielle

Simulation par la méthode des éléments discrets (DEM)



Calibration des paramètres de simulation

Échantillonnage par hypercube latin (LHS)



Krigeage

Efficient Global Optimization (EGO)

## **CHAPITRE II : MATÉRIEL ET MÉTHODES**



## CHAPITRE II : MATÉRIEL ET MÉTHODES

---

*Après la présentation des contraintes de manipulation de l'UO<sub>2</sub>, ce chapitre présente dans un premier temps les différentes étapes de préparation du milieu granulaire utilisées au cours de ces travaux. Les méthodes de caractérisations physiques, mécaniques et rhéologiques mises en œuvre sont ensuite présentées. La procédure de fabrication de pastilles et l'observation de leur microstructure sont détaillées. Pour finir, ce chapitre développe la mise en place d'une méthodologie permettant d'optimiser les caractérisations lorsque la quantité de poudre disponible est limitée.*

<b>1. MANIPULATION DE L'UO<sub>2</sub> AU SEIN D'UNE ICPE.....</b>	<b>56</b>
<b>2. ÉTAPES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE .....</b>	<b>56</b>
2. 1. BROYAGE.....	56
2. 2. PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE.....	58
<b>3. CARACTÉRISATIONS PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES .....</b>	<b>64</b>
3. 1. CARACTÉRISATIONS PHYSIQUES DES POUDRES.....	64
3. 2. CARACTÉRISATIONS MÉCANIQUES DES POUDRES .....	66
<b>4. CARACTÉRISATIONS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....</b>	<b>68</b>
4. 1. MISE EN ÉCOULEMENT (TRANSITION STATIQUE/DYNAMIQUE).....	68
4. 2. ÉCOULEMENT DYNAMIQUE (VARIABLE FLOW RATE VFR).....	71
4. 3. PROPRIÉTÉS DU LIT DE POUDRE .....	74
<b>5. ANALYSE DES PASTILLES EN GÉOMÉTRIE CYLINDRIQUE .....</b>	<b>76</b>
5. 1. FABRICATION DES PASTILLES .....	76
5. 2. CARACTÉRISATION DES PASTILLES.....	76
<b>6. ÉTABLISSEMENT D'UNE MÉTHODOLOGIE POUR UNE OPTIMISATION DES QUANTITÉS DE POUDRE UTILISÉES.....</b>	<b>77</b>
6. 1. MÉTHODOLOGIE DES CARACTÉRISATIONS HORS FT4 .....	78
6. 2. MÉTHODOLOGIE POUR LES TESTS FT4 .....	82
<b>7. BILAN .....</b>	<b>89</b>

## 1. MANIPULATION DE L'UO<sub>2</sub> AU SEIN D'UNE ICPE

Dans cette thèse, les méthodes de préparation du milieu granulaire ainsi que les caractérisations des poudres présentées dans ce chapitre ont été réalisées sur des poudres d'oxyde d'uranium UO<sub>2</sub> au sein du Laboratoire UO<sub>2</sub>, une Installation Classée pour la Protection de l'Environnement (ICPE). Compte tenu de ces expériences en milieu contaminant, des précautions de manipulation sont nécessaires. En effet, les poudres peuvent générer des poussières radioactives lors de leur manipulation. De nombreux équipements utilisés au cours de ces travaux sont donc placés en Boîte à Gants (BàG) (Figure II.1). Ces dernières sont des enceintes étanches ventilées permettant de travailler sur des poudres contaminantes. Les parois sont transparentes et les manipulations sont effectuées grâce à des gants placés à différents endroits de la BàG. Ceci complique la réalisation des tests et la maintenance des appareils.



*Figure II.1 : Images de la BàG Mélangeur en V (a), Frewitt (b) et du granulomètre laser en voie sèche et du rhéomètre FT4 (c)*

Les équipements étant placés dans différentes BàG, des transferts entre les BàG doivent être effectués. Toute opération (expériences, maintenances) nécessite donc plus de temps pour pouvoir être réalisée par rapport à de simples manipulations sur paillasse. Une organisation rigoureuse des essais permet néanmoins de limiter au maximum les transferts et les pertes de temps. Enfin, la matière nucléaire fait l'objet d'un suivi comptable qui implique une gestion des quantités mises en œuvre via le suivi des masses et des lieux de stockage/entreposage des poudres.

## 2. ÉTAPES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE

Différents procédés de fabrication de combustible mixte (U,Pu)O<sub>2</sub> pour les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium ont existé. Dans tous les cas, les oxydes d'uranium et de plutonium sont broyés et homogénéisés dans un broyeur à boulets. Une étape de granulation (mécanique [Bailly 1982] ou de tamisage/forçage [Nigon and Bastard 2003; Haas et al. 1994]) est réalisée. Un lubrifiant est ensuite ajouté au mélange d'oxydes d'actinides. Les poudres sont enfin compactées puis frittées afin d'obtenir les pastilles finales.

La poudre de référence utilisée dans ce travail est donc une poudre broyée. Des étapes de préparation du milieu granulaire sont ensuite utilisées afin d'essayer de faire évoluer le procédé en supprimant les étapes réputées radiologiquement pénalisantes pour les opérateurs.

### 2. 1. BROYAGE

Au cours de ces travaux, deux lots de poudre broyée ont été préparés. Ils sont composés de 80% massique (noté %<sub>m</sub>) de poudre UO<sub>2</sub> obtenue par voie sèche (origine usine de Lingén) et de 20%<sub>m</sub> de

chamotte  $UO_2$  (obtenue par broyage de pastilles frittées rebutées, c'est-à-dire non conformes). Elles sont présentées en Figure II.2. La particule élémentaire de la poudre d'oxyde d'uranium  $UO_2$  est appelée cristallite. Elles s'agrègent et constituent des agrégats (liaisons fortes), qui eux-mêmes s'agglomèrent pour former des agglomérats (liaisons faibles).

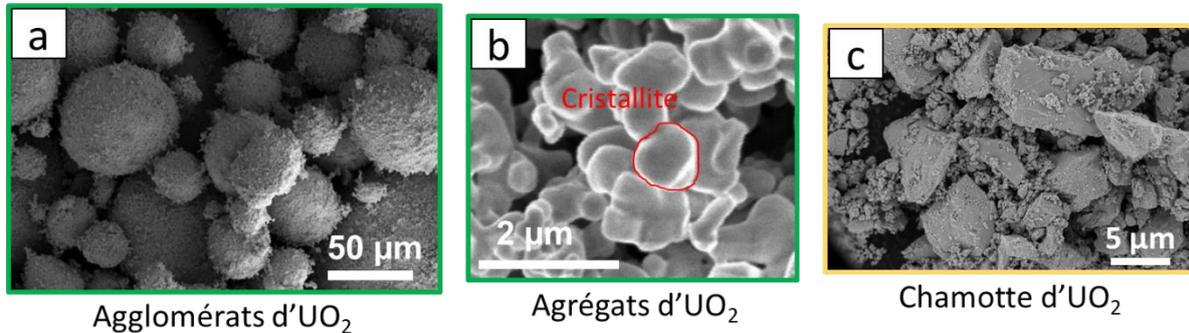


Figure II.2 : Images des agglomérats (a) et des agrégats d'une poudre  $UO_2$  (b) et de la chamotte d' $UO_2$  (c) (microscope électronique à balayage)

Les conditions de broyage utilisées pour ces deux lots sont regroupées dans le Tableau II.1. Différents paramètres de broyage sont fixés [Seiss 1995] : le taux de remplissage de galets  $J$ , le taux de remplissage de poudre  $f_c$ , le coefficient de remplissage poudre-galets  $U$  et le rapport de la masse de galets sur la masse de poudre  $K$ .

$$J = \frac{\text{Volume apparent des galets}}{\text{Volume utile du broyeur}} \quad (\text{Équation II.1})$$

$$f_c = \frac{\text{Volume apparent de poudre}}{\text{Volume utile du broyeur}} \quad (\text{Équation II.2})$$

$$U = \frac{f_c}{yJ} \quad (\text{Équation II.3})$$

$$K = \frac{\text{Masse des galets}}{\text{Masse de poudre}} \quad (\text{Équation II.4})$$

Le premier lot, existant avant le début de ces travaux, a été réalisé dans un broyeur à boulet de 10 L permettant d'obtenir une grande capacité de poudre (58 kg). Il est noté lot GrC (Grande Capacité). La poudre après broyage est notée GrC-PB. Malheureusement, la présence d'impuretés constatées dans la chamotte (probablement liées aux opérations de fabrication) et/ou les conditions de broyage utilisées peuvent conduire à des porosités importantes dans les pastilles frittées (résultats présentés dans le Chapitre III. 0 et Chapitre III. 0). Disponible en quantité importante, ce lot a cependant permis d'étudier les deux voies de préparation du milieu granulaire définies et présentées dans le paragraphe 2. 2.

Afin de disposer d'un lot avec moins d'impuretés et d'autres conditions de broyage, un second lot de 2,8 kg a été préparé dans le cadre de cette étude dans un broyeur à boulets de 2,1 L et est noté FaC (Faible Capacité). La poudre broyée est notée lot FaC-PB. La première étape est de réaliser de la chamotte par broyage de pastilles frittées élaborées à partir du lot GrC en visant une surface spécifique

comprise entre  $1 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$  et  $1,3 \text{ m}^2.\text{g}^{-1}$ . La seconde étape est d'effectuer un mélange de la chamotte et de poudre d' $\text{UO}_2$  au broyeur à boulets. Cette poudre, disponible en faible quantité, sera utilisée pour approfondir l'étude d'une seule méthode de préparation du milieu granulaire.

*Tableau II.1 : Comparaison des conditions de broyage des deux lots étudiés et des chamottes correspondantes*

Lot	GrC		FaC	
	Chamotte	Mélange	Chamotte	Mélange
Conditions de broyage				
Composition	Pastilles d' $\text{UO}_2$ frittées concassées	80% <sub>m</sub> $\text{UO}_2$ , 20% <sub>m</sub> chamotte	Pastilles d' $\text{UO}_2$ frittées concassées	80% <sub>m</sub> $\text{UO}_2$ , 20% <sub>m</sub> chamotte
Masse totale (kg)	15	58	0,56	2,8
Volume de la cuve du broyeur (L)	10	10	2,1	2,1
U	0,63	1,0	0,63	1,0
J (%)	38,0	40,0	8,3	33,1
K	11,4	13,8	7,3	12,9
Vitesse (tours.min <sup>-1</sup> )	60	60	72	72
Durée (h)	2	2	4,5	2

Des échantillons de poudre broyée lubrifiée ont également été étudiés pour ces deux lots. Ils sont notés respectivement GrC-PB-L et FaC-PB-L. Un échantillon de poudre est lubrifié avec un ajout de 0,2%<sub>m</sub> de stéarate de zinc (VWR Chemicals) dans un mélangeur tridimensionnel Turbula à 34 tours.min<sup>-1</sup> pendant 10 minutes.

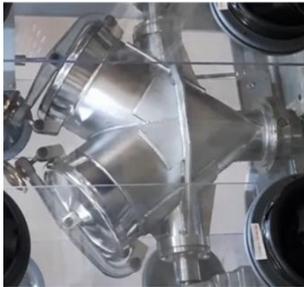
## 2. 2. PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE

Deux voies de préparation du milieu granulaire ont été étudiées au cours de ce travail dans l'objectif d'améliorer la coulabilité des poudres broyées sans passer par une étape de granulation à proprement parler [Vollath et al. 1982]:

- l'utilisation d'un mélangeur en V équipé d'une turbine (Chapitre I. 3. 1. 1. 1. 2),
- l'utilisation d'un moulin oscillant et rotatif OscilloWitt-Lab de la marque Frewitt (Chapitre I. 3. 1. 1. 1. 3), suivie d'un brassage et d'une lubrification dans un appareil de mélange tridimensionnel Turbula.

Les principales caractéristiques de ces équipements sont regroupées en Tableau II.2.

Tableau II.2 : Récapitulatif des appareils utilisés

	Mélangeur en V	OscilloWitt-Lab	Turbula
<b>Photographie</b>			
<b>Principe</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Destruction des gros agglomérats grâce à la turbine</li> <li>• Mélange par les chutes aléatoires des particules dans le mélangeur</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mélangeur tridimensionnel</li> </ul>
<b>Fournisseur</b>	Fabriqué sur mesure pour le travail en boîte à gants	Frewitt	WAB
<b>Dimension</b>	10 L	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Diamètre de sortie : 80 mm</li> <li>• Débit maximal : 100 kg.h<sup>-1</sup> (selon le produit et la granulométrie)</li> </ul>	Pot compris entre 250 mL et 1 L
<b>Taux de remplissage</b>	Environ 50% <sup>vol</sup> (soit entre 15 et 20 kg de poudre)	Fonctionnement en continu	Maximum de 66% <sup>vol</sup>
<b>Paramètres pouvant être modifiés</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Vitesse de rotation de la cuve (entre 0 et 80 tours.min<sup>-1</sup>)</li> <li>• Vitesse de rotation de la turbine (entre 0 et 4000 tours.min<sup>-1</sup>)</li> <li>• Durée de mélange</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Taille de maille du tamis (entre 150 µm et 3 mm)</li> <li>• Mouvement du rotor (rotation ou oscillant)</li> <li>• Vitesse de rotation du rotor (70 à 400 tours.min<sup>-1</sup>)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Vitesse de rotation du Turbula (entre 23 et 101 tours.min<sup>-1</sup>)</li> <li>• Durée du mélange</li> </ul>

L'objectif de ces étapes de préparation du milieu granulaire est d'améliorer la coulabilité des poudres en modifiant la taille et la morphologie des agglomérats. Ces agglomérats doivent être suffisamment solides pour ne pas être modifiés lors des étapes de transfert mais doivent se casser lors de l'étape de pressage afin d'obtenir des pastilles de microstructure homogène après frittage.

### 2. 2. 1. Mélangeur en V

Lors des essais avec le mélangeur en V, la destruction des gros agglomérats est effectuée en alternant des périodes de fonctionnement ou de non-fonctionnement de la turbine. L'utilisation de la turbine à grande vitesse peut en effet engendrer un échauffement de la poudre, ce qui peut entraîner une augmentation du rapport O/U. Une alternance de 5 minutes de brassage sans turbine et de 10 minutes avec la turbine est donc réalisée pour éviter cet échauffement. Les durées et les vitesses de rotation de la cuve et de la turbine sont contrôlées (Figure II.). La destruction des agglomérats est suivie d'une étape de brassage puis de lubrification, via l'introduction de stéarate de zinc (VWR Chemicals) à hauteur de 0,2%<sub>m</sub>, étapes également réalisées dans le mélangeur en V (Figure II.3). Ces trois étapes intermédiaires constituent la « voie mélangeur en V ».

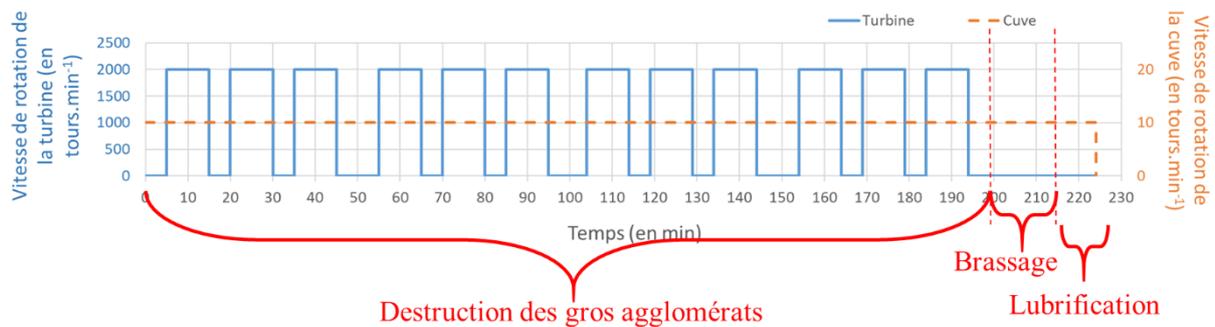


Figure II.3 : Exemple d'essai réalisé avec la voie mélangeur en V

Deux conditions de mise en œuvre du mélangeur en V sont considérées pour cette étude :

- une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>,
- une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup>.

Les autres paramètres sont maintenus constants (Tableau II.3).

Les essais au mélangeur en V ont uniquement été réalisés avec le lot GrC. À l'issue de ces essais, trois lots de poudre par condition de mise en œuvre sont constitués. Ils correspondent aux poudres obtenues après destruction des gros agglomérats, après brassage et après lubrification, les notations correspondantes sont indiquées dans le Tableau II.3. Les poudres sont caractérisées à l'issue de chacune de ces étapes intermédiaires, selon leur quantité disponible. En particulier, les quantités disponibles pour les lots issus de la destruction des agglomérats et issus du brassage sont moindres que pour les lots lubrifiés.

Tableau II.3 : Paramètres utilisés pour les essais au mélangeur en V

Nom	MeV2000			MeV4000		
Étapes	Destruction des gros agglomérats	Brassage	Lubrification	Destruction des gros agglomérats	Brassage	Lubrification
Vitesse de rotation de la turbine (tours.min <sup>-1</sup> )	2000	0	0	4000	0	0
Vitesse de rotation de la cuve (tours.min <sup>-1</sup> )	10	10	10	10	10	10
Temps (min)	120	15	10	120	15	10
Masse disponible (g)	450	450	17000	450	450	17000
Nomenclature	GrC-MeV2000	GrC-MeV2000-B	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000	GrC-MeV4000-B	GrC-MeV4000-BL

### 2. 2. 2. Association du Frewitt et du Turbula (voie Frewitt)

L'OscilloWitt-Lab (noté Frewitt dans la suite) est utilisé avec un tamis cylindrique de quelques centaines de microns. La vitesse de rotation de la pale est réglée à 88 oscillations par minute. Cette étape permet la destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage. La poudre récupérée subit ensuite une étape de brassage afin de permettre une réagglomération/sphéroïdisation, puis une étape de lubrification via l'ajout de 0,2%<sub>m</sub> de stéarate de zinc (VWR Chemicals). Ces opérations sont réalisées grâce à un mélangeur de type Turbula, agitateur tridimensionnel de vitesse réglable. Il permet d'obtenir des mélanges homogènes en peu de temps. Ces trois étapes intermédiaires constituent la « voie Frewitt ».

Deux essais ont été réalisés sur le lot GrC, un avec une taille de maille de tamis de 250 µm et un autre avec une maille de 500 µm. La poudre FaC a quant à elle subi une seule condition de mise en œuvre avec une maille de 250 µm. Les paramètres utilisés sont présentés dans le Tableau II.4. De même que pour le mélangeur en V, 3 lots sont constitués à l'issue de chaque essai. Les différentes poudres obtenues sont caractérisées selon leur quantité disponible.

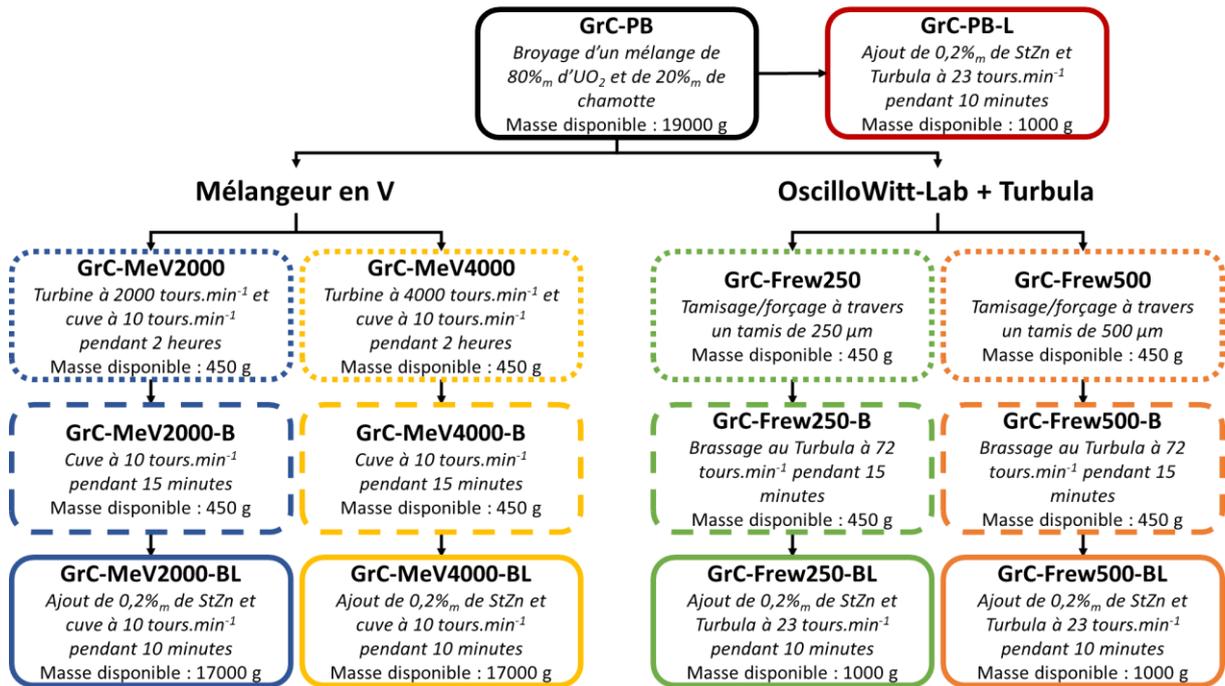
Tableau II.4 : Paramètres utilisés pour les essais de la voie Frewitt

Nom		Frew250			Frew500		
Étapes		Tamissage/ forçage	Brassage	Lubrification	Tamissage/ forçage	Brassage	Lubrification
Taille de maille du tamis ( $\mu\text{m}$ )		250	/	/	500	/	/
Vitesse de rotation du Turbula ( $\text{tours.min}^{-1}$ )		/	72	34	/	72	34
Temps (min)		/	15	10	/	15	10
Lot GrC	Masse disponible (g)	450	450	1000	450	450	1000
	Nomenclature	GrC- Frew250	GrC- Frew250-B	GrC- Frew250-BL	GrC- Frew500	GrC- Frew500-B	GrC- Frew500-BL
Lot FaC	Masse disponible (g)	560	560	560	/	/	/
	Nomenclature	FaC- Frew250	FaC- Frew250-B	FaC- Frew250-BL	/	/	/

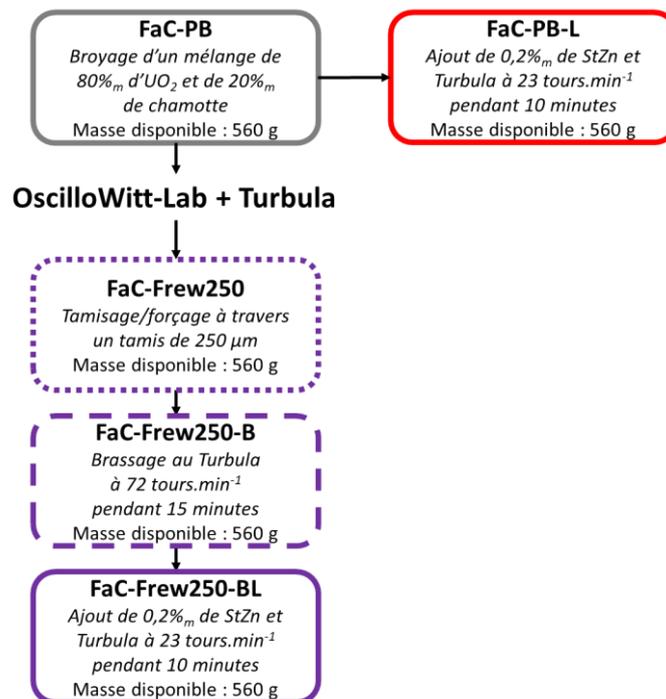
### 2. 2. 3. Synoptique de fabrication

Un synoptique des différentes méthodes de préparation du milieu granulaire appliquées aux deux lots GrC et FaC est présenté ci-après. Il regroupe la nomenclature, les conditions opératoires utilisées et les masses disponibles pour effectuer les caractérisations pour chaque échantillon étudié au cours de ce travail.

## Lot GrC



## Lot FaC



### 3. CARACTÉRISATIONS PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES

---

Afin de déterminer l'influence des méthodes de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques des poudres, des caractérisations physiques et mécaniques sont effectuées. La mise en œuvre de ces caractérisations est détaillée dans cette section.

#### 3. 1. CARACTÉRISATIONS PHYSIQUES DES POUDRES

##### 3. 1. 1. Granulométrie en voie sèche

Les distributions granulométriques des particules sont mesurées à l'aide d'un granulomètre laser Mastersizer 3000 de la marque Malvern. Les essais sont effectués en voie sèche et la dispersion est réalisée à l'aide du module Aero S de la marque Malvern. Afin de pouvoir réaliser les mesures sur des poudres d'oxyde d'uranium, l'appareil a été placé dans une boîte à gants.

Le principe de la mesure est le suivant : l'échantillon de poudre est dispersé à l'aide d'un flux d'air à une pression donnée. Les particules passent devant un faisceau laser, ce qui entraîne un phénomène de diffraction. La taille des particules peut alors être déterminée d'après la théorie de Mie. La taille de particule ainsi obtenue représente le diamètre de la sphère équivalente de même volume que la particule considérée. Ainsi, les différents diamètres moyens, présentés dans le chapitre I. 1. 1. 1, peuvent être déterminés. L'étendue granulométrique est caractérisée par le *Span* et dépend des diamètres moyens :

$$Span = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} \quad (\text{Équation II.5})$$

Les essais peuvent être réalisés à différentes pressions de dispersion. Une pression de 0,1 bar est utilisée pour déterminer la répartition granulométrique des poudres car elle permet de minimiser la destruction des agglomérats. Trois prises d'essais sont réalisées pour chaque sous-lot.

##### 3. 1. 2. Morphologie

La morphologie des particules (3D) a été déterminée, sur des clichés de microscopie, grâce à l'analyse d'images des ombres des particules (projections 2D) à l'aide du logiciel Image-J [Schindelin et al. 2012]. Pour cela, les agglomérats sont placés dans une coupelle en verre et une définition de 1194 x 1194 pixels a été utilisée, à l'aide du microscope opto-numérique Olympus DSX500 avec un objectif x5 (MPLFLN5xBD de Olympus). La résolution de ces images est de 3,34  $\mu\text{m} \cdot \text{pixel}^{-1}$ .

Une macro sur Image J a été développée (Figure II.4). La première étape est une étape de pré-seuillage afin d'améliorer le contraste et la brillance. Puis, le seuillage de l'image est réalisé avec la méthode Otsu (seuillage automatique à partir de la forme de l'histogramme de l'image, supposé contenir deux modes [Otsu 1979]). Un post-seuillage est ensuite effectué pour réaliser le watershed (séparation des agglomérats en contact) ainsi que certaines corrections si nécessaire (remplissage d'agglomérats divisés par erreur par le watershed, séparation manuelle des agglomérats non effectuée par le watershed).

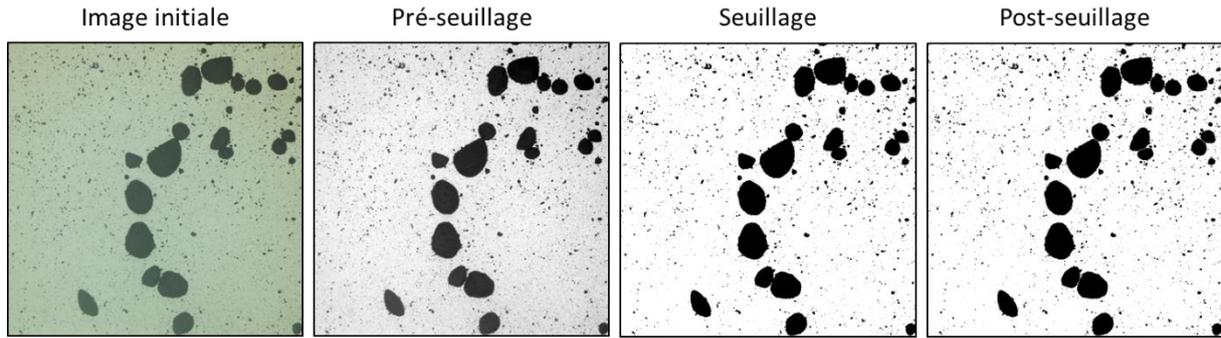


Figure II.4 : Étapes du traitement d'images

Une fois l'image traitée, l'analyse d'image est réalisée à l'aide du plugin Shape Filter [Wagner and Lipinski 2013]. Les paramètres utilisés pour quantifier la morphologie des particules sont la circularité, l'élongation et la solidité (Chapitre I. 1. 1. 2).

Pour chaque lot de poudre analysé, environ 50 images ont été réalisées à l'aide du microscope opto-numérique et 1000 agglomérats ont été analysés. Afin de limiter les erreurs, la norme ISO [ISO 2008] recommande une analyse de particules d'aire supérieure à 100 px, limite appliquée lors de cette étude. Les particules analysées ont donc un diamètre équivalent minimal d'environ 36  $\mu\text{m}$  (Équation II.6). De plus, une limite sur la solidité a également été appliquée. En effet, une solidité inférieure à 0,8 peut traduire une superposition d'agglomérats et empêche donc l'analyse d'images (conseil pour le granulomorphomètre Morphologi G3 de Malvern). Seules les particules dont la solidité est supérieure à 0,8 ont donc été analysées.

Les fréquences cumulées en volume en fonction du diamètre équivalent sont présentées pour l'analyse de la circularité et de l'élongation. La solidité étant utilisée comme limite, elle n'a pas été analysée. Pour ce faire, les particules sont supposées sphériques. Le diamètre équivalent  $d_{\text{éq}}$  (exprimé en  $\mu\text{m}$ ) et le volume équivalent  $V_{\text{éq}}$  (exprimé en  $\mu\text{m}^3$ ) des particules ont été calculés grâce aux équations suivantes :

$$d_{\text{éq}} = \sqrt{\frac{4\text{Aire}}{\pi}} \quad (\text{Équation II.6})$$

$$V_{\text{éq}} = \frac{\pi d_{\text{éq}}^3}{6} \quad (\text{Équation II.7})$$

De manière analogue aux diamètres équivalents en granulométrie, les facteurs de forme SF<sub>10</sub>, SF<sub>50</sub> et SF<sub>90</sub>, correspondant respectivement à 10%, 50% et 90% de la fréquence cumulée en volume des paramètres morphologiques, ont été déterminés.

### 3. 1. 3. Porosités externe et interne

La porosité des agglomérats est obtenue grâce à un porosimètre à mercure AutoPore V de la marque Micromeritics. Compte tenu de l'absence de retraitement pour les poudres nucléaires contaminées au mercure, ces analyses n'ont été effectuées que sur un nombre d'échantillons restreint (une seule mesure par sous-lot, uniquement sur le lot FaC).

Lors d'une mesure par porosimétrie à mercure, un échantillon de poudre inférieur à 1 g est mis sous vide pour éliminer les gaz qu'il contient. Le mercure est ensuite introduit à faible pression (200 kPa) et enveloppe les particules de solide sans entrer dans les pores. Le volume de la cellule et celui du mercure injecté étant connus, le volume de solide, incluant la porosité ouverte ou fermée, peut être déterminé. La pression de mercure est ensuite augmentée par palier jusqu'à 400 MPa. Lorsque l'équilibre est atteint, le volume de mercure injecté est mesuré, ce qui permet de déterminer la taille et le volume des pores correspondants. Enfin, la masse volumique de solide et la porosité ouverte des particules peuvent être déduites de cette mesure, en supposant que le volume final de mercure ayant pénétré dans le solide correspond au volume poreux du solide. La compacité représente alors le rapport du volume occupé par le solide par le volume total (volume occupé par le solide et volume de pores).

### **3. 1. 4. Surface spécifique**

La méthode BET [Brunauer et al. 1938] permet de déterminer la surface spécifique des particules par une méthode d'adsorption gazeuse. Les mesures sont réalisées à l'aide de l'appareil Micromeritics ASAP2460 et le gaz d'adsorption utilisé est l'azote.

Pour réaliser la mesure, un dégazage de l'échantillon sous vide à 150°C est effectué au préalable afin d'évacuer les impuretés présentes à la surface de l'échantillon. L'échantillon est ensuite immergé dans un bain réfrigérant d'azote liquide et le volume mort (volume non occupé par l'échantillon) est déterminé grâce à de l'hélium. Lorsque la température d'ébullition de l'azote liquide sous pression atmosphérique est atteinte, soit 77 K, les quantités de gaz adsorbées en fonction de la pression d'équilibre sont mesurées. La surface spécifique est alors déterminée par la méthode BET. Cette mesure est réalisée une fois pour chaque sous-lot ne contenant pas de lubrifiant. En effet, la température de dégazage de 150°C n'est pas adaptée à la présence de stéarate de zinc qui se décompose autour de 130°C.

### **3. 1. 5. Observations de la structure des agglomérats**

La structure des agglomérats est observée grâce à des clichés de poudre enrobée par microscopie optique et MEB (FEI Nova NanoSEM 450). Pour ce faire, environ cinq grammes de poudre sont enrobés dans une résine époxy (EpoFix de la marque Struers). Lorsque la résine est sèche, l'échantillon est poli pour obtenir une coupe transversale des agglomérats. Le polissage est d'abord réalisé à l'aide de disques abrasifs de carbure de silicium présentant des granulométries décroissantes, puis via un polissage diamant avec une suspension polycristalline de granulométrie 1 µm, permettant d'atteindre une finition miroir. Les observations au MEB sont réalisées après métallisation avec un dépôt carbone d'une dizaine de nanomètres sur la surface de l'enrobé. Les images sont réalisées à l'aide d'un détecteur d'électrons rétrodiffusés (BSE) annulaire à diodes sous une tension de 10 kV. Des images avec différents grossissements sont obtenues.

Ces caractérisations ont été réalisées uniquement sur le lot FaC.

## **3. 2. CARACTÉRISATIONS MÉCANIQUES DES POUDRES**

### **3. 2. 1. Tests d'écrasement**

La résistance mécanique des agglomérats est évaluée via des tests d'écrasement à l'aide d'une presse Instron 3400 (Figure II.5a). Un tamisage manuel préalable, entre 400 µm et 500 µm, est nécessaire afin de sélectionner des agglomérats suffisamment gros compte tenu de la limite de détection de l'appareil.

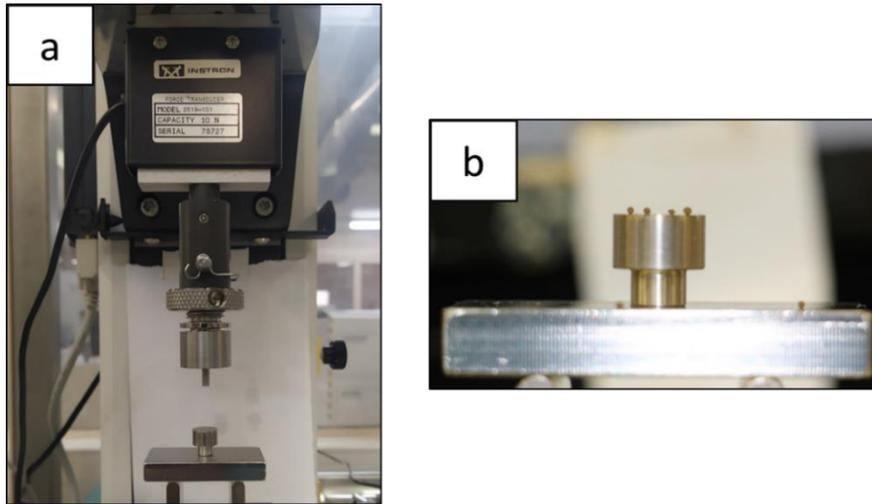


Figure II.5 : Photographies de la presse Instron (a) et des agglomérats placés sur le support (b)

Les agglomérats sont placés sur un plateau fixe (Figure II.5b), un poinçon supérieur, lié à un capteur de force se déplace à  $0,8 \text{ mm.s}^{-1}$  et applique une force sur l'agglomérat jusqu'à rupture de celui-ci. Des courbes représentant la force en fonction du déplacement sont donc obtenues. La hauteur du poinçon est tarée au contact du plateau. Lorsque la force commence à augmenter, le poinçon est au contact de la particule. Le diamètre peut alors être déterminé. La force à la rupture est déterminée et utilisée pour calculer la contrainte de rupture avec l'équation suivante :

$$\sigma_f = \frac{0,7F_b}{\pi R^2} \quad (\text{Équation II.8})$$

La détermination du diamètre de l'agglomérat dans la direction de l'écrasement et de la force à la rupture est présentée en Figure II.6. Ces essais sont réalisés sur 30 agglomérats individuels pour chaque sous-lot de poudre étudié. Un traitement probabiliste des données est réalisé grâce à la théorie de Weibull (Équation I.12).

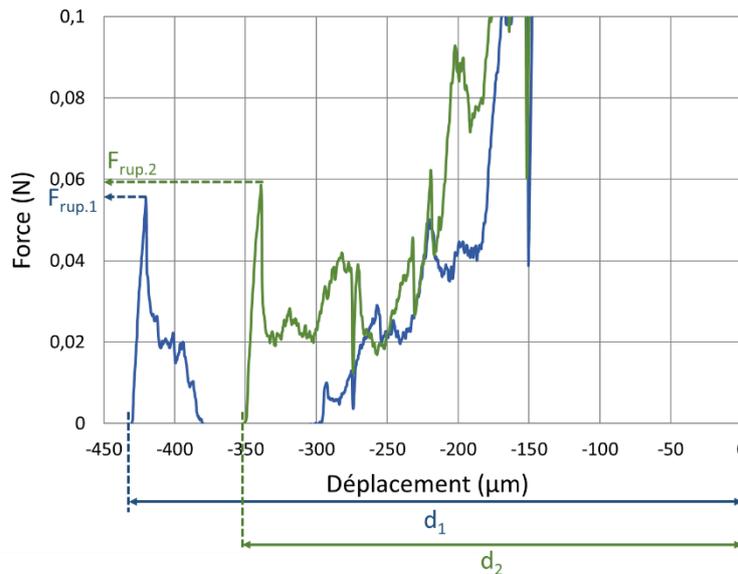


Figure II.6 : Exemples de détermination du diamètre et de la force à la rupture de deux agglomérats

### 3. 2. 2. Test d'abrasion

Afin d'étudier les phénomènes d'abrasion des agglomérats, un mode opératoire a été mis en place. La poudre est tamisée manuellement et environ 50 grammes d'agglomérats de taille supérieure à 200  $\mu\text{m}$  sont sélectionnés. Ils sont ensuite tamisés à l'aide d'une tamiseuse colonne AS200 de la marque Retsch à 1 mm d'amplitude en utilisant des mailles de 45  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$ . Un suivi de l'évolution des masses de poudre de taille supérieure à 100  $\mu\text{m}$ , entre 45  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  et inférieure à 45  $\mu\text{m}$ , est réalisé toutes les 5 minutes pendant 1 heure. Un taux d'abrasion est calculé (à  $t = 1\text{h}$ ) en s'inspirant de l'Équation I.13 :

$$\text{Taux d'abrasion} = 100 \frac{\text{Masse d'agglomérats} < 100 \mu\text{m}}{\text{Masse initiale d'agglomérats} > 100 \mu\text{m}} \quad (\text{Équation II.9})$$

## 4. CARACTÉRISATIONS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES

---

### 4. 1. MISE EN ÉCOULEMENT (TRANSITION STATIQUE/DYNAMIQUE)

#### 4. 1. 1. Test de cisaillement

En accord avec une précédente étude [Madian 2019], la cellule de 10 mL d'un rhéomètre FT4 (Freeman Technology) est retenue pour effectuer les tests de cisaillement. Elle présente un bon compromis entre la qualité des résultats et la quantité de poudre utilisée. De plus, le rhéomètre à poudre FT4, en raison d'un protocole de mesure automatisé, facilite la réalisation des mesures dans une boîte à gants, comparé à une cellule de Schulze.

Un test de cisaillement à l'aide du FT4 se déroule en trois étapes. Après mise en place, tare et remplissage de la cellule, le protocole de mesure est lancé. La première étape est une étape de conditionnement. La pale, présentée en Figure II.7, traverse la poudre puis remonte à la surface. Cette étape permet de supprimer l'historique subi par la poudre et de partir d'un état initial reproductible, avant de réaliser le test de cisaillement.



Figure II.7 : Photo de la pale à la fin du conditionnement au rhéomètre FT4 [Freeman et al. 2009]

La seconde étape est une étape de pré-consolidation de la poudre. La pale est remplacée par un piston poreux qui permet de libérer l'air retenu dans le lit de poudre lors de la compression de ce dernier. Le piston applique une contrainte normale à la poudre jusqu'à atteindre la contrainte de pré-

consolidation  $\sigma_{pré}$  définie au préalable par l'opérateur. Enfin, un mécanisme permet d'araser la poudre et d'obtenir un volume de 10 mL. La densité de la poudre est alors calculée. L'arasement permet d'aplanir la surface de la poudre avant l'étape du cisaillement.

La troisième étape correspond au test de cisaillement à proprement parler. Le piston est remplacé par la cellule de cisaillement, présentée en Figure II.8. La cellule de cisaillement applique la contrainte normale de pré-consolidation et la poudre est ensuite cisailée. Les ailettes s'insèrent donc dans la poudre. La cellule de cisaillement effectue alors une rotation lente à  $18^\circ \cdot \text{min}^{-1}$ , ce qui entraîne une contrainte de cisaillement, jusqu'au régime critique (contrainte de cisaillement et masse volumique constantes). La contrainte de cisaillement de pré-consolidation  $\tau_{pré}$  est ainsi déterminée. Une contrainte normale  $\sigma$ , inférieure à la contrainte normale de pré-consolidation (Tableau II.5) est ensuite appliquée, puis la contrainte de cisaillement à la rupture  $\tau$  est mesurée. Pour une contrainte normale de préconsolidation donnée, ce protocole est répété à 5 contraintes normales définies au préalable, dans un ordre décroissant (Tableau II.5). 5 couples  $(\sigma ; \tau)$  sont alors obtenus, permettant de tracer le lieu d'écoulement. Grâce à une analyse par cercle de Mohr, les différents paramètres présentés dans le chapitre I. 2. 1. 2 sont déterminés : l'indice de coulabilité  $ff_c$ , l'angle de frottement interne AIF et la cohésion  $\tau_c$ . Par ailleurs, la densité en vrac (CBD, Conditioned Bulk Density) est également déterminée durant le test.



Figure II.8 : Photo de la cellule de cisaillement du rhéomètre FT4 [Freeman et al. 2009]

Ce protocole est réalisé pour 4 contraintes normales de pré-consolidation données : 3 kPa, 6 kPa, 9 kPa et 15 kPa. Cela permet de tracer les fonctions d'écoulement des poudres étudiées.

Tableau II.5 : Valeurs des contraintes normales appliquées lors du test de cisaillement au rhéomètre FT4

Contrainte de pré-consolidation	Contrainte normale appliquée (kPa)				
	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 4	Mesure 5
<b>3 kPa</b>	2,00	1,75	1,50	1,25	1,00
<b>6 kPa</b>	4,00	3,50	3,00	2,50	2,00
<b>9 kPa</b>	7,00	6,00	5,00	4,00	3,00
<b>15 kPa</b>	9,00	8,00	7,00	6,00	5,00

#### 4. 1. 2. Écoulement à travers un orifice

Le diamètre d'écoulement spontané à travers un orifice permet d'estimer l'aptitude de la poudre à se mettre en écoulement (transition statique-dynamique). Il est déterminé au moyen d'une réglette permettant de se placer dans une géométrie annulaire (Figure II.9, l'épaisseur  $e$  correspond à l'espace vide entre l'aiguille et la matrice de la réglette.). Les dimensions de ces orifices sont présentées dans le Tableau II.6.



Figure II.9 : Photographie de la réglette perforée en géométrie annulaire

Tableau II.6 : Dimensions des réglettes perforées

Numéro de l'orifice	1	2	3	4	5	6
Diamètre (mm)	6,05	7,66	9,07	10,59	12,10	15,10
Diamètre de l'aiguille (mm)	2,50					
$e$ (mm)	1,78	2,58	3,29	4,05	4,80	6,30

Pour réaliser ces mesures, un récipient cylindrique rempli de poudre est glissé le long de la réglette, du trou de plus petit diamètre vers celui de plus grand diamètre. Le diamètre d'écoulement spontané correspond au diamètre à partir duquel la poudre s'écoule. Trois prises d'essais sont réalisées pour chaque sous-lot.

#### 4. 1. 3. Frottements aux parois (wall friction)

L'angle de frottement poudre/paroi est mesuré via un test de wall friction au FT4. La première étape de ce protocole est une étape de conditionnement identique à celle du test de cisaillement. L'étape de pré-consolidation est également semblable à celle du test de cisaillement avec une contrainte de pré-consolidation  $\sigma_{pré}$  de 15 kPa. Enfin, le piston poreux est remplacé par un disque présentant une rugosité similaire à celle présente dans les moules de presse (Figure II.10).



Figure II.10 : Dispositif utilisé pour les mesures du frottement poudre-paroi dans le rhéomètre FT4

Le plateau applique la contrainte de pré-consolidation  $\sigma_{pré}$ . Sa mise en rotation à  $18^{\circ}.\text{min}^{-1}$  entraîne une contrainte de cisaillement entre la surface du lit de poudre et le disque. Celle-ci augmente jusqu'à atteindre une valeur de contrainte de cisaillement constante  $\tau_{pré}$ . Ce protocole se répète à 5 contraintes normales, définies au préalable, dans un ordre décroissant (9 kPa, 8 kPa, 7 kPa, 6 kPa et 5 kPa). Au total 6 couples ( $\sigma$  ;  $\tau$ ) sont donc obtenus. L'angle de frottement poudre-paroi est obtenu en exprimant la contrainte de cisaillement en fonction de la contrainte normale (Figure II.11).

Ces caractérisations ont été effectuées sur le lot FaC.

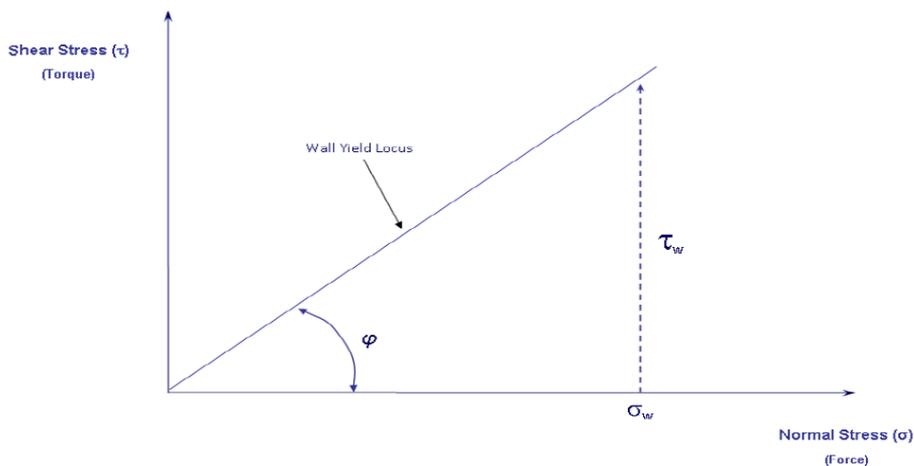


Figure II.11 : Détermination de l'angle de frottement poudre-paroi

## 4. 2. ÉCOULEMENT DYNAMIQUE (VARIABLE FLOW RATE VFR)

Le test VFR (Variable Flow Rate) est un test spécifique du rhéomètre à poudre FT4 (Freeman Technology). Ce test permet d'évaluer les propriétés d'écoulement des poudres lors de l'écoulement dynamique. Le protocole suivi est celui établi par Freeman Technology, présentée en Figure II.12, dans

une cellule de 25 mL. La pale réalise un test en série de conditionnement, suivi d'un test en série de mesure à vitesse contrôlée (vitesse en bout de pale) pour chaque test. Au total, 11 tests successifs sont réalisés.

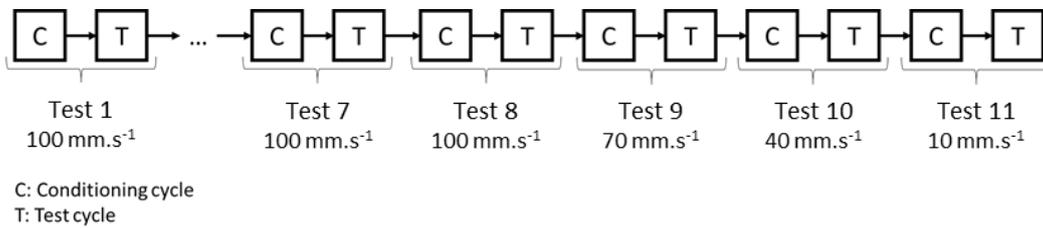


Figure II.12 : Protocole de mesure du test VFR

Lors des 7 premiers tests, la pale a une vitesse constante de  $100 \text{ mm.s}^{-1}$  pour chaque test en série de mesure. Les 4 derniers tests sont réalisés à des vitesses décroissantes :  $100 \text{ mm.s}^{-1}$ ,  $70 \text{ mm.s}^{-1}$ ,  $40 \text{ mm.s}^{-1}$  et  $10 \text{ mm.s}^{-1}$ . Au cours de chaque test, les énergies nécessaires pour déplacer la poudre sont mesurées. Elles permettent de calculer différents indices :

- Le BFE (Basic Flow Energy) :

$$BFE (mJ) = \text{énergie du test } n^{\circ 7} \quad (\text{Équation II.10})$$

Cette grandeur caractérise l'énergie nécessaire pour mettre en mouvement un volume donné de poudre. Elle est souvent difficile à interpréter car elle dépend de nombreuses caractéristiques de la poudre et de son environnement.

Un BFE faible correspond à une cohésion élevée, alors qu'un BFE élevé est synonyme d'une plus faible cohésion. En effet, dans le cas de poudres cohésives (particules fines), la présence d'air interstitiel est élevée et leur compressibilité est élevée. Lors du passage de la pale, l'air est évacué, la poudre est consolidée localement et la zone de transmission de contrainte est faible (Figure II.13a). Le volume de poudre déplacé est donc plus faible, ce qui se traduit par un BFE plus faible. Inversement, dans le cas de poudres non cohésives, la présence d'air interstitiel est faible et leur compressibilité est faible. Lors du passage de la pale, la zone de transmission de contrainte est donc plus étendue (Figure II.13b). Le volume de poudre déplacé est plus élevé, ce qui se traduit par un BFE plus élevé.

Cependant, la tendance inverse peut également être observée. Cela est vrai en particulier lorsque la différence entre les échantillons est due à la texture des particules ou à l'ajout de lubrifiant. En effet, la diminution de la friction entre les particules se traduit par une amélioration de la coulabilité mais une réduction du BFE.

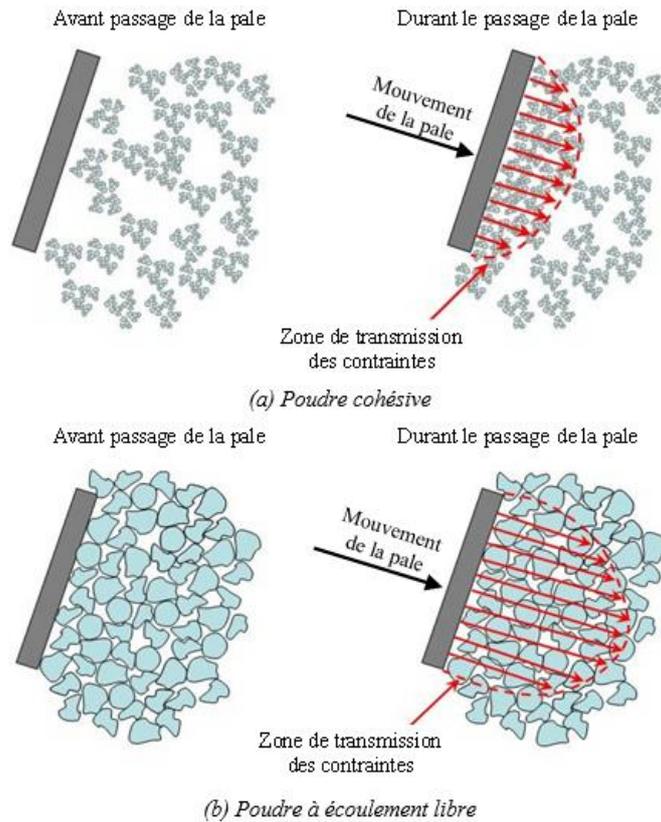


Figure II.13 : Zones de transmission des contraintes pendant le test VFR dans le cas d'une poudre cohésive (a) et d'une poudre à écoulement libre (b)

- Le FRI (Flow Rate Index) :

$$FRI = \frac{\text{énergie du test n°11}}{\text{énergie du test n°8}} \quad (\text{Équation II.11})$$

Cette grandeur caractérise l'impact de la vitesse de la rotation de la pale sur l'énergie nécessaire pour mettre en mouvement ce même volume de poudre :

- si  $FRI > 3$  : la poudre est très cohésive,
- si  $1,5 < FRI < 3$  : la plupart des poudres se trouvent dans cette gamme qui correspond à une cohésion modérée,
- si  $FRI = 1$  : la poudre est non cohésive et composée de grosses particules,
- si  $FRI < 1$  : on est dans un écoulement newtonien, observé essentiellement lors d'un ajout de lubrifiant.

- L'énergie spécifique SE :

$$SE \text{ (mJ} \cdot \text{g}^{-1}\text{)} = \frac{\text{énergies lors de la remontée de la pale des tests 6 et 7}}{2 \text{ masse de l'échantillon}} \quad (\text{Équation II.12})$$

L'énergie spécifique SE caractérise la cohésion de la poudre :

- si  $SE < 5 \text{ mJ} \cdot \text{g}^{-1}$  : cohésion faible,

- si  $5 \text{ mJ.g}^{-1} < SE < 10 \text{ mJ.g}^{-1}$  : cohésion modérée,
- si  $SE > 10 \text{ mJ.g}^{-1}$  : cohésion forte.
- L'indice de stabilité (SI) :

$$SI = \frac{\text{énergie du test n}^{\circ 7}}{\text{énergie du test n}^{\circ 1}} \quad (\text{Équation II.13})$$

Cet indice caractérise la stabilité du lit de poudre :

- si  $SI = 1$ , la poudre est stable : ses propriétés ne sont pas affectées lors de l'écoulement,
- si  $SI > 1$  la poudre est instable : ceci peut être causé par la désaération, l'agglomération, la ségrégation, l'humidité et/ou les forces électrostatiques,
- si  $SI < 1$  la poudre est instable : la cause peut être l'attrition, la désagglomération et/ou l'ajout d'additif.

### 4. 3. PROPRIÉTÉS DU LIT DE POUDRE

#### 4. 3. 1. Test de perméabilité

La perméabilité est la capacité d'un matériau poreux à être traversé par un fluide. Elle dépend de la porosité du lit de poudre. La perméabilité est déterminée grâce au rhéomètre à poudre FT4.

Les mesures sont réalisées avec un récipient de 25 mm de diamètre et 10 mL de volume et d'une base d'aération poreuse reliée au module d'aération. Dans un premier temps, 3 tests de conditionnement en série sont réalisés à l'aide de la pale du FT4. La pale est ensuite remplacée par le piston poreux, qui applique une contrainte normale de 2 kPa au lit de poudre. Le lit de poudre est ensuite arasé pour occuper un volume de 10 mL. Le piston poreux applique à nouveau une contrainte normale de 2 kPa. Le module d'aération à la base du lit de poudre délivre une vitesse d'air croissante, de  $0 \text{ mm.s}^{-1}$  à  $10 \text{ mm.s}^{-1}$  afin de rester dans un écoulement laminaire. La chute de pression est mesurée pour chaque vitesse, la perméabilité peut donc être calculée (Chapitre I. 2. 2. 3. 2).

#### 4. 3. 2. Test de tassement

Des tests de tassement sont mis en œuvre afin de calculer l'indice de Carr et le rapport d'Hausner (Chapitre I. 2. 2. 3. 3). Pour cela, les densités aérée et tassée sont déterminées. Pour mesurer la densité aérée, le volume d'une certaine masse de poudre, versée dans une éprouvette graduée, est déterminé. Cette éprouvette contenant la poudre subit ensuite 2400 chocs grâce au dispositif JEL STAV II de J. Engelsmann AG. Le nouveau volume occupé par la poudre est mesuré, permettant ainsi de connaître la densité tassée. Cette mesure n'est effectuée qu'une fois pour chaque échantillon.

#### 4. 3. 3. Test de compressibilité

La compressibilité (Chapitre I. 2. 2. 3. 4) des poudres est évaluée grâce à un test de compressibilité réalisé à l'aide du rhéomètre FT4.

La première étape de ce protocole est une étape de conditionnement identique à celle du test de cisaillement. La pale est ensuite remplacée par un piston poreux. Ce dernier applique une contrainte normale  $\sigma$  qui augmente progressivement de 1 kPa à 15 kPa. Pour chaque contrainte appliquée, la variation du volume apparent de poudre est mesurée, comme présenté en Figure II.14. Les poudres

cohésives possèdent généralement une porosité de lit élevée et présentent donc une forte compressibilité. À contrario, les poudres non cohésives possèdent généralement une porosité de lit inférieure et présentent donc une faible compressibilité.

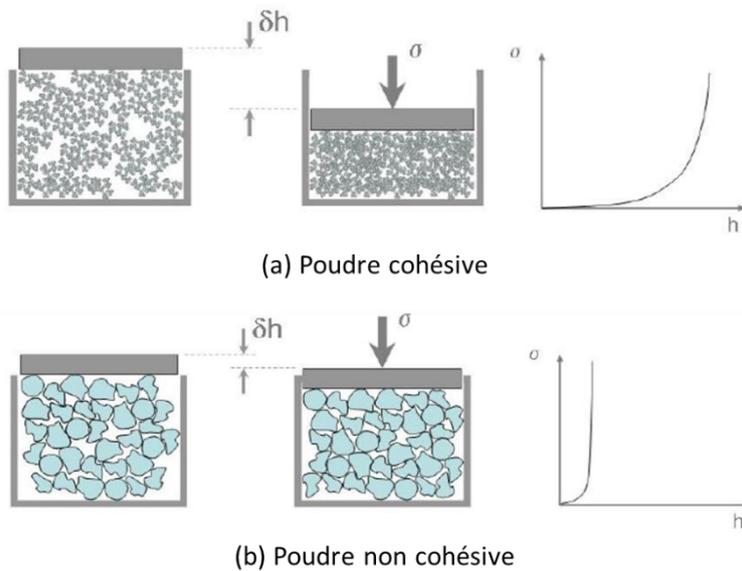


Figure II.14 : Compressibilité d'une poudre cohésive (a) et d'une poudre non cohésive (b)

#### 4. 3. 4. Angle de repos

Un dispositif de mesure d'angle de repos a été mis en place au cours de ce travail (Figure II.15). La procédure utilisée suit les recommandations données dans l'European Pharmacopoeia [Council of Europe 2007].



Figure II.15 : Dispositif mis en place pour réaliser les mesures de l'angle de repos

Dans un premier temps, la poudre est versée dans un entonnoir fermé. L'extrémité de l'entonnoir est ensuite ouverte afin de permettre à la poudre de s'écouler sur un plateau et de former un tas. L'angle de repos est ensuite mesuré grâce à des vidéos enregistrées à l'aide d'une caméra rapide Fastcam SA4 de la marque Photron avec un objectif macroscopique. Deux plateaux circulaires de 6 ou 8 cm de diamètre, avec une rugosité de surface similaire à celle présente à l'intérieur des moules de presse, peuvent être utilisés. La distance entre l'entonnoir et le plateau est de 4 cm. La mesure de l'angle de repos est répétée sur cinq tas de poudre pour chaque sous-lot.

## 5. ANALYSE DES PASTILLES EN GÉOMÉTRIE CYLINDRIQUE

### 5. 1. FABRICATION DES PASTILLES

Avant mise en forme, les échantillons de poudre n'ayant pas été lubrifiés lors des méthodes de préparation du milieu granulaire ont été lubrifiés avec 0,2%<sub>m</sub> de stéarate de zinc StZn (VWR Chemicals), à l'aide du Turbula pendant 10 min à 34 tours.min<sup>-1</sup>. La compression est réalisée au moyen d'une presse uni-axiale double effet avec un outillage de diamètre 10 mm et une pression appliquée de 450 MPa. Ces pastilles sont ensuite frittées dans un four métallique de marque ECM, à 1700 °C pendant 4 heures, sous hydrogène pur. Entre 3 et 5 pastilles sont élaborées pour chaque sous-lot de poudre.

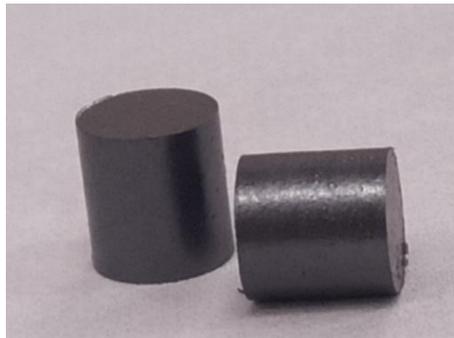


Figure II.16 : Photographie de pastilles frittées

### 5. 2. CARACTÉRISATION DES PASTILLES

#### 5. 2. 1. Densité et porosités des pastilles frittées

La densité hydrostatique des pastilles frittées est déterminée par immersion dans du bromobenzène (Sigma-Aldrich) sur 3 à 5 pastilles. La masse sèche  $m_s$  des pastilles est déterminée. Elles sont ensuite immergées dans le bromobenzène. Le vide est réalisé afin de faire rentrer le bromobenzène dans les pores. Elles sont ensuite pesées dans le bromobenzène pour déterminer leur masse immergée  $m_i$ . Enfin, les pastilles sont sorties du bromobenzène et leur surface est essuyée afin de déterminer leur masse humide  $m_h$ . Les valeurs des porosités ouverte et fermée sont calculées à partir des équations décrites ci-dessous :

$$\rho_{app} = \frac{m_s}{m_h - m_i} \rho_{bromobenzène} \quad (\text{Équation II.14})$$

$$\text{Porosité ouverte (\%)} = 100 \frac{m_h - m_s}{m_h - m_i} \quad (\text{Équation II.15})$$

$$\text{Porosité fermée (\%)} = 100 \frac{\rho_t - \rho_{app}}{\rho_t} - \text{porosité ouverte} \quad (\text{Équation II.16})$$

avec  $\rho_t$  la masse volumique théorique de l'UO<sub>2</sub> (10,96 g.cm<sup>-3</sup>),  $\rho_{app}$  la masse volumique apparente de la pastille et  $\rho_{bromobenzène}$  la masse volumique apparente du bromobenzène à température ambiante.

### 5. 2. 2. Observation de la microstructure

Pour chacun des lots, une pastille a été coupée longitudinalement à l'aide d'une scie à fil afin d'obtenir une tranche d'environ 2 mm d'épaisseur au centre de la pastille (Figure II.17). Une des faces de cette tranche est polie à l'aide de disques abrasifs de carbure de silicium présentant des granulométries décroissantes. Elle est ensuite polie-miroir avec une suspension polycristalline de granulométrie 1 µm. La microstructure de la pastille est caractérisée via des prises de clichés de cette surface, à l'aide d'un microscope opto-numérique Olympus DSX500 avec différents objectifs : un objectif x10 (MPLFLN10xBD de Olympus) et un objectif x40 (MPLFLN40xBD de Olympus).

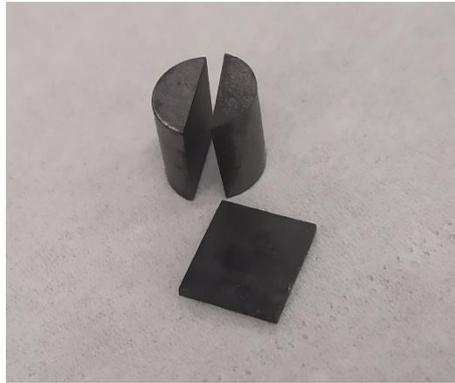


Figure II.17 : Photographie d'une pastille découpée pour les observations de la microstructure

## 6. ÉTABLISSEMENT D'UNE MÉTHODOLOGIE POUR UNE OPTIMISATION DES QUANTITÉS DE POUDRE UTILISÉES

---

Compte tenu de la quantité de poudre limitée pour certains lots étudiés lors de ce travail, il a été décidé de mettre en place une méthodologie permettant d'optimiser les quantités de poudre, c'est-à-dire de réaliser un maximum de caractérisations avec un minimum de poudre. Pour ce faire, le caractère destructif ou non de chaque caractérisation a été évalué du point de vue de la distribution granulométrique des poudres, grandeurs essentielles dans les propriétés d'écoulement [Madian 2019]. Ces mesures ont été effectuées avec la poudre broyée GrC, disponible en grande quantité, en faisant l'hypothèse que le comportement global de cette poudre lors des caractérisations devrait être semblable à celui des poudres disponibles en plus faible quantité.

Dans la partie 5.1, l'étude de la destructivité des tests suivants est présentée :

- écoulement à travers un orifice,
- angle de repos,
- test de tassement.

Une étude approfondie, présentée dans la partie 6. 2, a été réalisée sur les différentes caractérisations effectuées à l'aide du rhéomètre FT4 :

- test de perméabilité,
- test de compressibilité,
- test de frottement aux parois,
- test de cisaillement,
- test VFR.

L'objectif de cette étude est la mise en place d'une méthodologie à appliquer au lot FaC.

## **6. 1. MÉTHODOLOGIE DES CARACTÉRISATIONS HORS FT4**

### **6. 1. 1. Caractérisations ne nécessitant pas d'étude de destructivité**

Pour certaines caractérisations, le suivi granulométrique n'est pas nécessaire pour pouvoir déterminer leur caractère destructif. En effet, pour certaines caractérisations :

- la poudre ne subit aucune contrainte durant le test et peut donc être utilisée pour une autre caractérisation,
- la poudre ne peut pas être récupérée en fin de test et il est donc impossible de l'utiliser pour une autre caractérisation.

Dans le cadre de ce travail, les caractérisations non destructives évidentes sont :

- l'observation au microscope opto-numérique : la poudre est placée dans une coupelle en verre avant d'être observée, elle ne subit donc aucune contrainte,
- la mesure de surface spécifique : les mesures BET n'appliquent pas de contraintes à la poudre et ne modifient pas sa composition, elle est donc réutilisable après ce test.

Les caractérisations destructives évidentes sont les suivantes :

- la mesure de la distribution granulométrique en voie sèche : les poudres analysées sont envoyées dans un pot décanteur et ne peuvent pas être récupérées,
- l'observation au microscope électronique à balayage (MEB) : la poudre est collée sur du noir de carbone puis jetée après observation,
- la réalisation des enrobés de poudre : la poudre est enrobée dans de la résine et ne peut donc être récupérée,
- la mesure de la porosité par porosimétrie à mercure : la poudre est mélangée au mercure et ne peut être récupérée,
- les essais d'écrasement : les agglomérats sont détruits lors de ces mesures,
- les tests d'abrasion : la poudre est soumise aux vibrations de la tamiseuse colonne, entraînant des phénomènes d'abrasion sur les agglomérats,
- la fabrication des pastilles : la poudre est compactée puis frittée afin de former des pastilles.

### 6. 1. 2. Caractérisations nécessitant une étude de destructivité

En dehors des caractérisations décrites dans le paragraphe précédent, la destructivité des méthodes de caractérisation a été évaluée par suivi granulométrique. Ainsi, des granulométries en voie sèche à 0,1 bar sont réalisées sur des échantillons de poudre avant et après avoir subi un test de caractérisation. Si la distribution granulométrique est modifiée, la caractérisation est considérée comme destructive. Trois prises d'essais sont effectuées et les barres d'erreur indiquées sur les graphiques correspondent à plus ou moins l'écart-type obtenu à partir de ces différentes prises d'essais.

À noter que pour l'établissement de cette méthodologie, il a été nécessaire de prélever plusieurs fois la poudre GrC dans le même lot initial (stockage dans des pots de 2 L). Certaines différences de granulométrie ont été constatées (Annexe II.1) et sont attribuées à de probables phénomènes de ségrégation lors du stockage de cette poudre.

#### 6. 1. 2. 1. Écoulement à travers un orifice

Les distributions granulométriques réalisées avant et après les tests d'écoulement à travers un orifice sont présentées en Annexe II.2a et les diamètres équivalents sont présentés en Figure II.18. Les résultats ne montrent pas de différence significative avant/après test, cette caractérisation est donc considérée comme non destructive. En effet, la poudre est stockée dans un petit cylindre glissé le long de la réglette perforée avant de chuter de quelques centimètres. Les contraintes subies par la poudre sont donc très faibles.

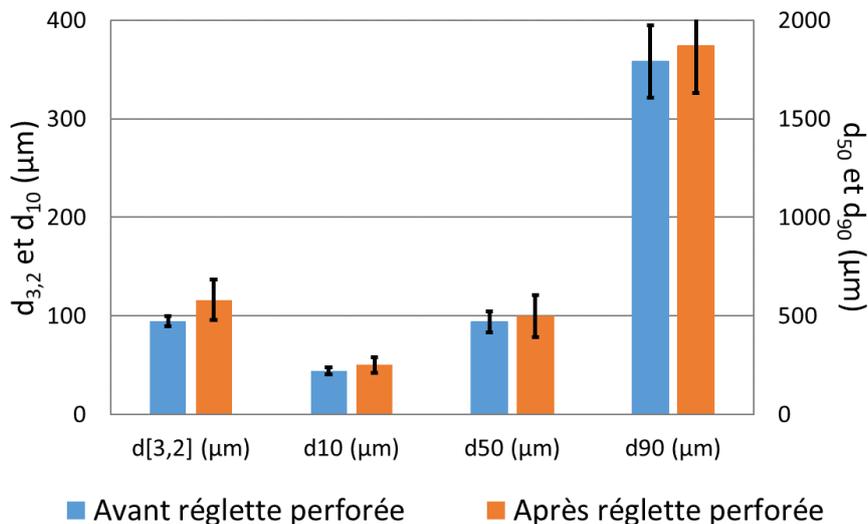


Figure II.18 : Diamètres équivalents avant/après la mesure de l'écoulement à travers un orifice

#### 6. 1. 2. 2. Angle de repos

Les distributions granulométriques réalisées avant et après les mesures d'angle de repos sont présentées en Annexe II.2b et les diamètres équivalents en Figure II.19. Peu de différences sont constatées avant et après la mesure, ce test est donc considéré comme non destructif. Cela semble logique compte tenu des contraintes subies par la poudre : la poudre est stockée dans un entonnoir de faible volume et subit une chute de quelques centimètres.

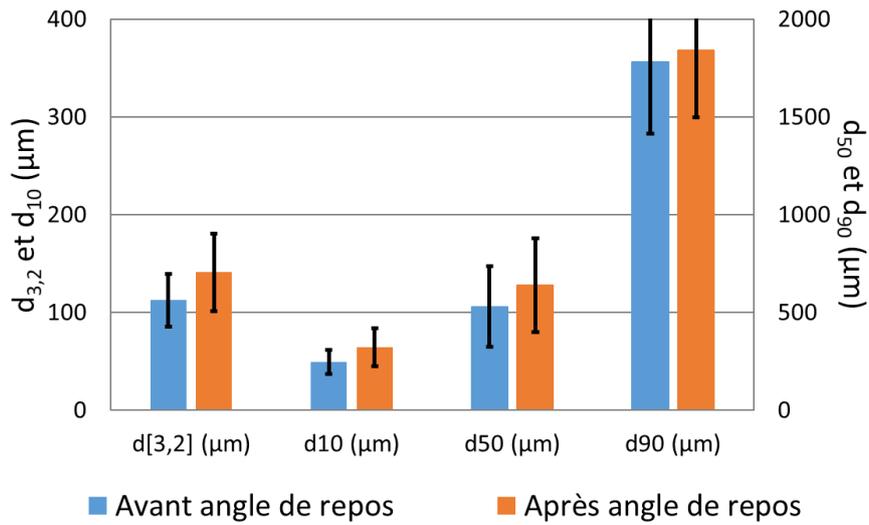


Figure II.19 : Diamètres équivalents avant/après le test de l'angle de repos

### 6. 1. 2. 3. Test de tassement

Les distributions granulométriques avant et après le test de tassement sont présentées en Annexe II.2c et les diamètres équivalents en Figure II.20. Une diminution du  $d_{50}$  et du  $d_{90}$  est observée après le test de tassement avec une destruction des agglomérats millimétriques. Cette mesure est donc considérée comme destructive.

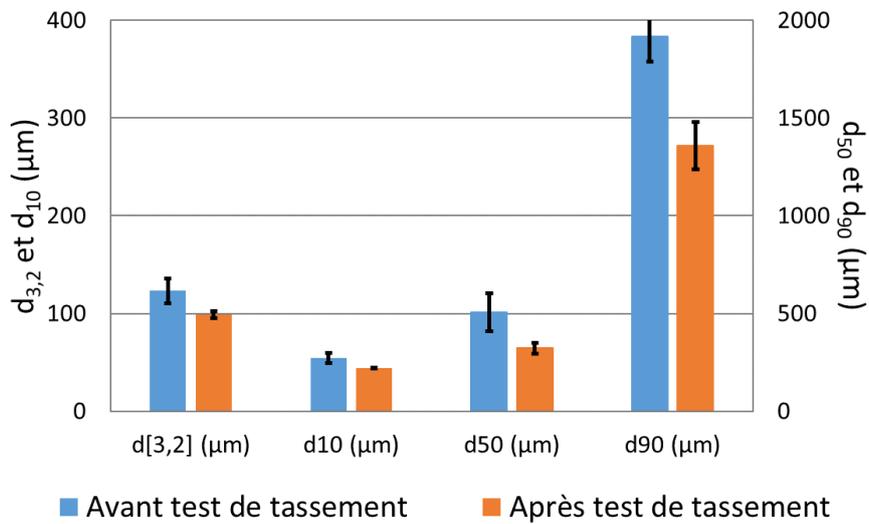


Figure II.20 : Diamètres équivalents avant/après le test de tassement

### 6. 1. 3. Méthodologie globale retenue

Le Tableau II.7 regroupe les différentes caractérisations dont la destructivité a été discutée dans cette partie, ainsi que les masses de poudre nécessaires pour les réaliser.

Tableau II.7 : Récapitulatif des tests destructifs/non destructifs et de la quantité de poudre nécessaire pour caractériser les échantillons

Test de caractérisation	Quantité de poudre nécessaire (g)	Destructif/non destructif
Granulométrie voie sèche	10	Destructif
Morphologie	5	Non destructif
Porosimètre à mercure	1	Destructif
Surface spécifique	10	Non destructif
Test d'écrasement	1	Destructif
Écoulement à travers un orifice	20	Non destructif
Angle de repos	300	Non destructif
Test de tassement	300	Destructif
Fabrication de pastilles	40	Destructif

À partir de ces résultats, une méthodologie de caractérisation optimisée a été mise en place, permettant de prévoir un ordonnancement des prélèvements et des tests associés (Figure II.21).

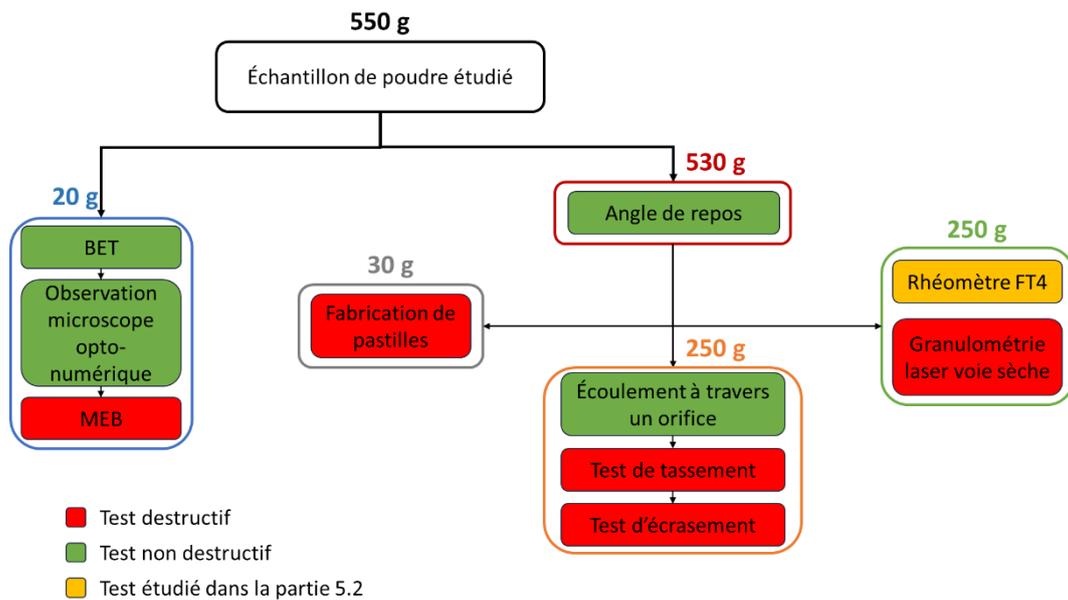


Figure II.21 : Protocole de mesure optimisé dans le cadre de poudre disponible en quantité limitée

Selon le synoptique indiqué en Figure II.21, cette méthodologie prévoit un enchaînement des caractérisations permettant de minimiser la quantité de poudre utilisée. Elle nécessite cependant à minima 550 g de poudre. Elle sera mise en œuvre pour les lots de poudre FaC (faible quantité disponible). Il est à noter que les agglomérats utilisés pour les tests d'écrasement sont sélectionnés, par tamisage manuel, après le test de tassement par manque de poudre. Une étude des contraintes à rupture a en effet montré que les résultats d'écrasement sont similaires entre des agglomérats n'ayant subi aucune caractérisation et des agglomérats issus du test de tassement (Tableau II.8).

Tableau II.8 : Comparaison des tests d'écrasement entre une poudre n'ayant subi aucun test et une poudre ayant subi un test de tassement

	Poudre n'ayant pas subi de test	Poudre après le test de tassement
$\sigma_0$ (kPa)	129	122
$m$	3,27	2,34

## 6. 2. MÉTHODOLOGIE POUR LES TESTS FT4

### 6. 2. 1. Étude de destructivité de chaque test FT4

De la même façon que pour les tests présentés dans la partie 6. 1. 2, le caractère destructif des différents tests de caractérisation du FT4 a été étudié afin d'adopter un enchaînement optimal de ces tests : perméabilité, compressibilité, frottement aux parois, cisaillement, VFR. À cet effet, des granulométries laser en voie sèche sont réalisées. Après chaque mesure, des prélèvements à trois hauteurs différentes dans la cellule du FT4 sont effectués. Les mesures sont répétées trois fois pour la poudre avant un test et deux fois pour chaque hauteur après un test. Aucune différence n'a été observée en fonction de la hauteur dans la cellule de mesure du FT4, pour chaque test la moyenne de ces mesures sera donc présentée dans la suite et les barres d'erreur indiquées sur les graphiques correspondent à plus ou moins l'écart-type obtenu à partir de ces différentes prises d'essais.

#### 6. 2. 1. 1. Test de perméabilité

Les distributions granulométriques (Annexe II.3a) et les diamètres équivalents (Figure II.22) n'évoluent pas avant/après la mesure de perméabilité, ce test est donc considéré comme non destructif. En effet, lors de ce test, seule une contrainte normale faible (2 kPa) est appliquée à la poudre et un flux d'air modéré (jusqu'à 10 mm.s<sup>-1</sup>) traverse le lit de poudre.

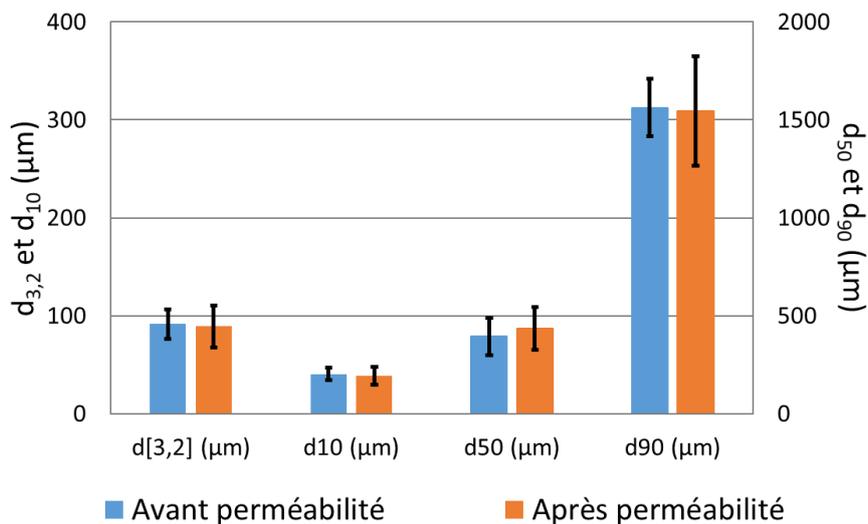


Figure II.22 : Diamètres équivalents avant/après le test de perméabilité

### 6. 2. 1. 2. Test de compressibilité

Les distributions granulométriques (Annexe II.3b) et les diamètres équivalents (Figure II.23) n'évoluent pas significativement avant/après la mesure de compressibilité, ce test est donc considéré comme non destructif. Les contraintes normales appliquées lors de cette mesure, comprises entre 1 kPa et 15 kPa, ne semblent pas suffisantes pour engendrer la fragmentation/rupture des agglomérats et donc modifier la distribution granulométrique.

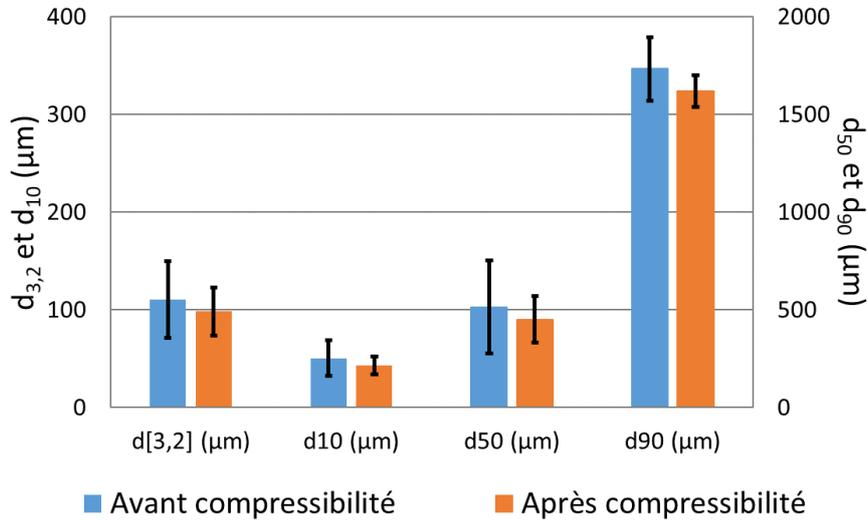


Figure II.23 : Diamètres équivalents avant/après le test de compressibilité

### 6. 2. 1. 3. Frottements aux parois

Les distributions granulométriques (Annexe II.3c) et les diamètres équivalents (Figure II.24) n'évoluent pas avant/après la mesure des frottements aux parois, ce test est donc considéré comme non destructif. De même que pour le test de compressibilité, la contrainte appliquée de 15 kPa ne semble pas suffisante pour engendrer une fragmentation/rupture des agglomérats.

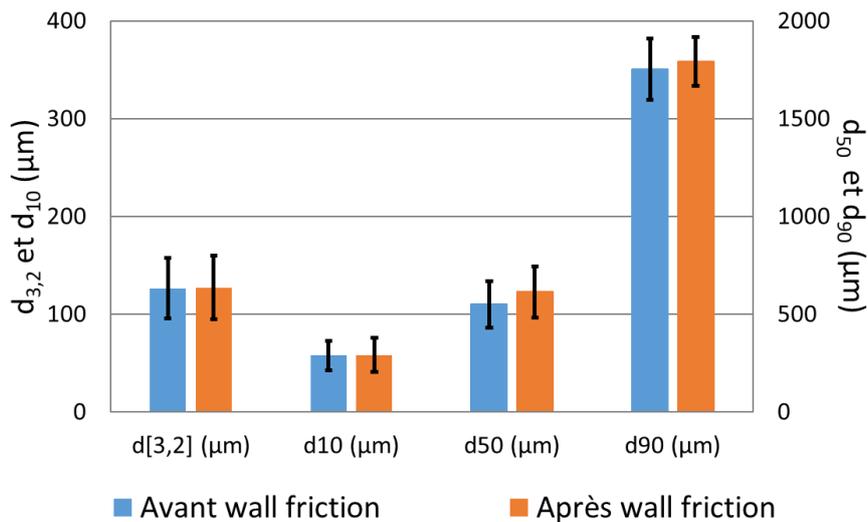


Figure II.24 : Diamètres équivalents avant/après le test de frottement poudre-paroi

### 6. 2. 1. 4. Test de cisaillement

Les distributions granulométriques (Annexe II.3d) et les diamètres équivalents (Figure II.25) n'évoluent pas avant/après les mesures de cisaillement, ce test est donc considéré comme non destructif. Les contraintes normales appliquées, comprises entre 3 kPa et 15 kPa, ainsi que les contraintes de cisaillement ne semblent pas suffisantes pour engendrer la fragmentation/rupture des agglomérats.

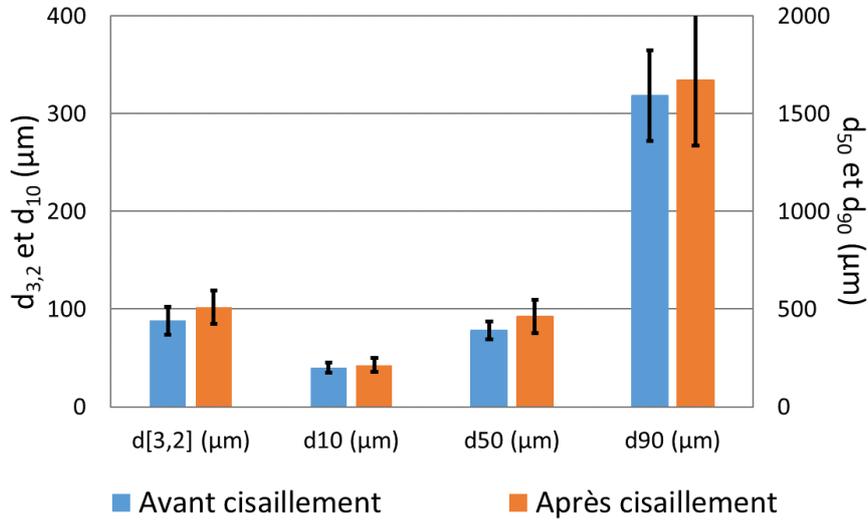


Figure II.25 : Diamètres équivalents avant/après le test de cisaillement

### 6. 2. 1. 5. Test VFR

Les distributions granulométriques avant/après test VFR (Annexe II.3e) et les diamètres équivalents (Figure II.26) montrent une diminution du d<sub>50</sub> et du d<sub>90</sub> après le test VFR, il est donc considéré comme destructif. Cette destructivité peut s'expliquer par le mouvement de la pale à travers le lit de poudre, qui engendre des contraintes entre la pale et les parois et ainsi la fragmentation/rupture des agglomérats millimétriques.

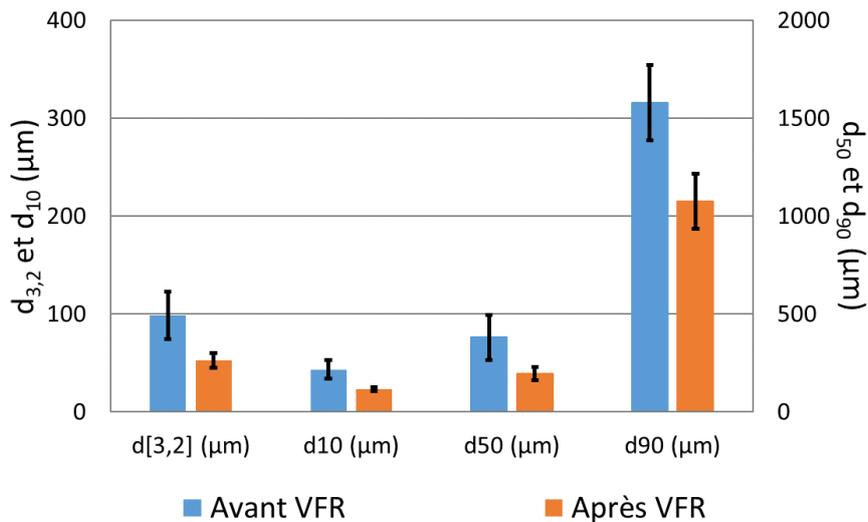


Figure II.26 : Diamètres équivalents avant/après le test VFR

### 6. 2. 2. Détermination d'une méthode de vérification rapide de la destructivité

La granulométrie laser en voie sèche a permis de déterminer le caractère destructif des tests FT4 sur la poudre broyée GrC. En outre, il paraît judicieux de pouvoir réaliser cette vérification sur les autres poudres qui seront étudiées lors de ce travail. Néanmoins, dans nos conditions de manipulation en boîte à gants, la granulométrie laser n'est pas adaptée pour une vérification rapide et facile à mettre en œuvre. De plus, il est préférable d'étudier l'ensemble de l'échantillon tout en conservant la totalité de la quantité de poudre, déjà limitée. Pour ce faire, le test de perméabilité, a priori sensible à la proportion de fines particules [Madian 2019] et non destructif a été étudié.

Dans cet objectif, des mélanges avec différents pourcentages massiques de fines particules ont été préparés. Les particules fines considérées sont comprises entre 45 et 100  $\mu\text{m}$  et les plus gros agglomérats sont compris entre 200 et 315  $\mu\text{m}$ . Des mélanges sont réalisés au Turbula à 34 tours. $\text{min}^{-1}$  pendant 10 minutes en considérant les teneurs massiques de fines suivantes : 0%<sub>m</sub>, 1%<sub>m</sub>, 2%<sub>m</sub>, 3%<sub>m</sub> et 5%<sub>m</sub>. Quatre mesures de perméabilité sont réalisées pour chaque mélange, les valeurs reportées dans la Figure II.27 correspondent à la moyenne de ces quatre mesures.

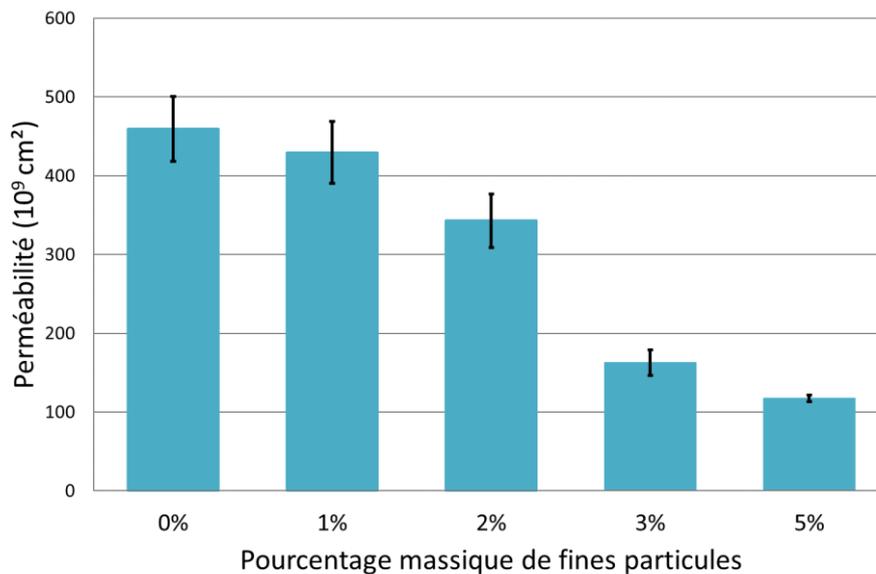


Figure II.27 : Évolution de la perméabilité en fonction du pourcentage massique de fines

La perméabilité diminue lorsque le taux de fines augmente, à partir de faibles taux de fines. Ainsi cette mesure peut permettre de vérifier facilement l'éventuelle évolution granulométrique d'une poudre. Si un test implique une formation de fines par fragmentation, attrition ou abrasion, une chute de la perméabilité sera observée. Le suivi de l'évolution de l'échantillon au cours d'un test avec le FT4 est caractérisé par l'écart relatif de la perméabilité :

$$\varepsilon_{\text{perméabilité}} = 100 \frac{|P_{\text{initiale}} - P_k|}{P_{\text{initiale}}} \quad (\text{Équation II.17})$$

avec  $P_{\text{initiale}}$  la perméabilité initiale réalisée en début de test en série et  $P_k$  la perméabilité après chaque test.

Cet écart relatif permet également de quantifier la répétabilité des tests de perméabilité (cinq mesures effectuées sur un même échantillon de poudre). Lors de ces essais, un écart-type maximal de 10% a été observé lors de la répétition des mesures sur un même échantillon. Ainsi, une variation de

perméabilité supérieure à 10% par rapport à la perméabilité initiale sera considérée comme significative lors du suivi d'évolution par perméabilité.

### 6. 2. 3. Méthodologie retenue

Les analyses portant sur la destructivité des tests à l'aide du FT4 ont montré que seul le test VFR était destructif. Par ailleurs, la mesure de perméabilité a été choisie pour suivre l'évolution d'une poudre. À partir de ces résultats et compte tenu des contraintes appliquées lors des tests, l'ordre chronologique suivant a été retenu (ordre chronologique croissant) : perméabilité, compressibilité, wall friction, test de cisaillement et test VFR. En outre, des mesures de perméabilité sont intercalées entre chacun de ces tests afin de suivre l'évolution de la poudre. L'enchaînement final (noté « tests en série » dans la suite de ce document) est représenté en Figure II.28.

Il est cependant à noter que :

- les tests de perméabilité à 15 kPa et de wall friction (cases rouges) ont été effectués uniquement sur le lot FaC,
- le test VFR nécessite 80 grammes de poudre tandis que les tests précédents nécessitent 40 grammes de poudre pour être réalisés. Les premiers tests sont donc effectués sur deux échantillons. Ces derniers sont regroupés afin d'effectuer le VFR.

Cette méthodologie est appliquée sur les deux lots :

- lot GrC : poudre broyée (GrC-PB) et poudres lubrifiées (GrC-PB-L, GrC-MeV2000-BL, GrC-MeV4000-BL, GrC-Frew250-BL, GrC-Frew500-BL),
- lot FaC : toutes les étapes.

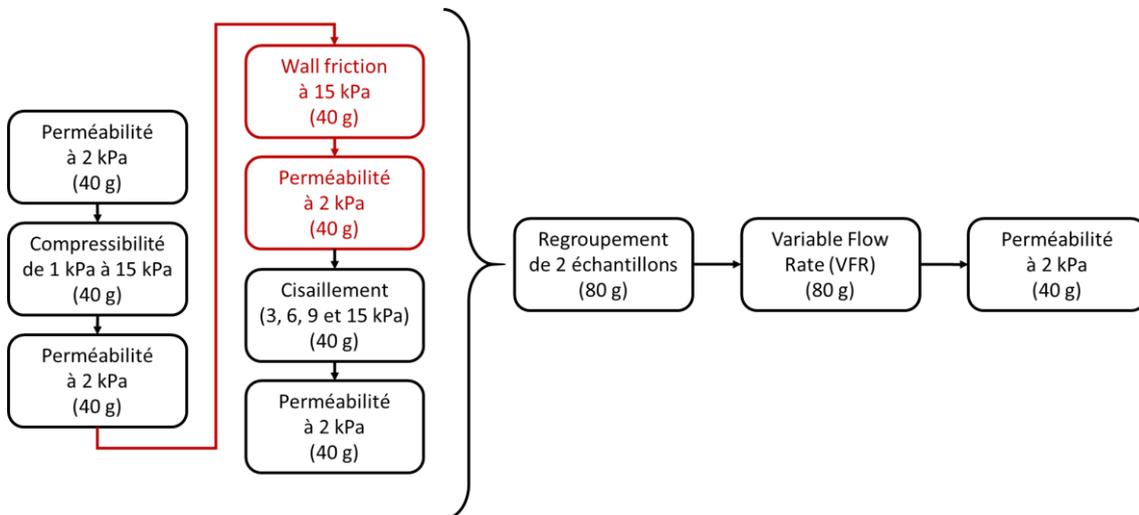


Figure II.28 : Enchaînement des tests réalisés au rhéomètre FT4 (test en série)

### 6. 2. 4. Comparaison entre les tests uniques et les tests en série

L'objectif de cette partie est d'évaluer l'impact des tests en série en comparaison aux tests uniques (individuels) sur différents lots de poudre. En effet, si des écarts significatifs de résultats sont observés, ces derniers ne pourront pas être utilisés dans la suite. Pour ce faire, les résultats d'un test de cisaillement à 15 kPa (poudre en état consolidé) et d'un test VFR (poudre en état non confiné) sont comparés pour :

- des échantillons de poudre n'ayant subi aucune caractérisation FT4 préalable. Les résultats correspondants sont nommés « test unique ». Trois prises d'essais sont effectuées et les barres d'erreur indiquées sur les graphiques correspondent à plus ou moins l'écart-type obtenu à partir de ces différentes prises d'essais,
- des échantillons de poudre ayant subi préalablement l'enchaînement décrit sur la Figure II.28. Les résultats correspondants sont nommés « test en série ».

Trois lots de poudre issus du lot GrC, disponibles en grande quantité, sont considérés pour cette étude comparative :

- la poudre broyée notée GrC-PB, en faisant l'hypothèse que l'impact observé sera le même pour les différentes poudres broyées et poudres broyées lubrifiées (GrC-PB-L, FaC-PB et FaC-PB-L),
- la poudre obtenue après la voie mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup> suivi du brassage et de la lubrification notée GrC-MeV2000-BL, en faisant l'hypothèse que l'impact observé sera le même pour l'ensemble des échantillons effectués au mélangeur en V (GrC-MeV2000, GrC-MeV2000-B, GrC-MeV4000, GrC-MeV4000-B, GrC-MeV4000-BL),
- la poudre obtenue après la voie Frewitt avec une taille de maille de 250 µm suivi du brassage et de la lubrification notée GrC-Frew250-BL, en faisant l'hypothèse que l'impact observé sera le même pour l'ensemble des échantillons effectués avec la voie Frewitt (GrC-Frew250, GrC-Frew250-B, GrC-Frew500, GrC-Frew500-B, GrC-Frew500-BL, FaC-Frew250, FaC-Frew250-B, FaC-Frew250-BL).

Concernant le test de cisaillement à 15 kPa, sur les trois poudres testées, les résultats du test de cisaillement ne mettent pas en évidence de différence significative entre le test unique et le test en série (Figure II.29), en effet les faibles différences observées restent inférieures aux écarts-types des mesures.

Les tests en série ont un impact négligeable sur les résultats obtenus lorsque la poudre est dans un état consolidé (perméabilité, compressibilité, wall friction, test de cisaillement). Ainsi pour ces mesures, la méthodologie des tests en série afin de limiter la quantité de poudre est considérée comme valable. Elle sera donc utilisée dans la suite de ces travaux.

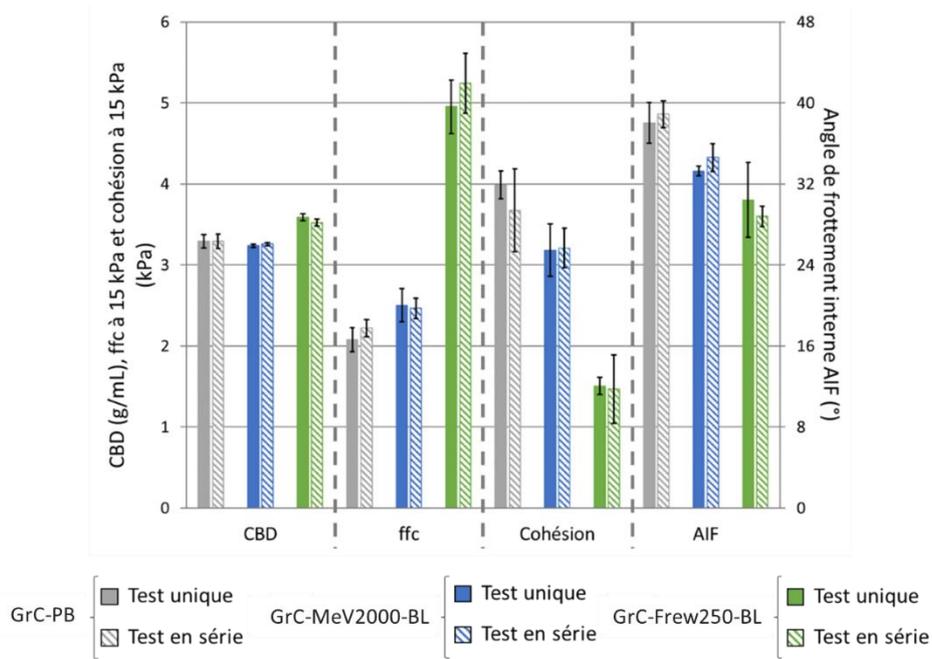


Figure II.29 : Comparaison des résultats du test de cisaillement à 15 kPa entre une poudre n'ayant rien subi (test unique) et une poudre ayant subi un enchainement de tests au FT4 (test en série)

Les résultats du test VFR (Figure II.30) sont plus délicats à interpréter. En effet, si les valeurs de CBD (Conditioned Bulk Density) et de FRI des tests uniques sont semblables à celles obtenues pour les tests en série, les valeurs de BFE obtenues sur la poudre GrC-PB présente un écart relatif de 18% entre le test unique et le test en série, ce qui n'est pas observé sur les deux autres lots de poudre étudiés. De plus, des problèmes de répétabilité ont été rencontrés avec ce lot (courbes VFR en Annexe II.4).

Les résultats de BFE pour les tests en série ne seront donc pas utilisés pour les poudres broyées. Cependant, les valeurs de CBD et de FRI sont semblables pour les tests uniques et les tests en série. La méthodologie mise en place est donc valable pour le CBD et le FRI et sera utilisée dans la suite de ces travaux.

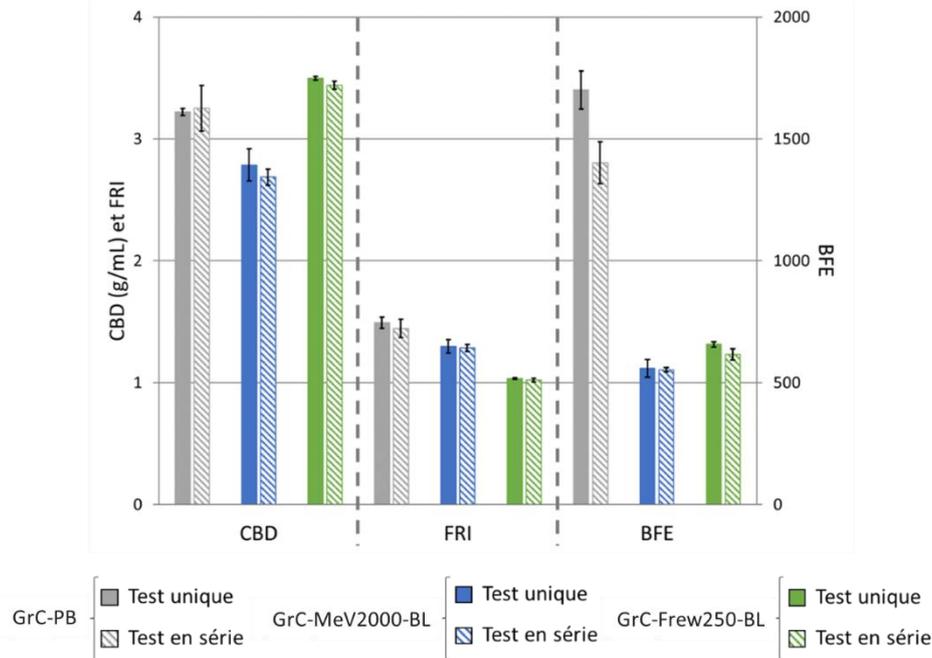


Figure II.30 : Comparaison des résultats du test VFR entre une poudre n'ayant rien subi (test unique) et une poudre ayant subi un enchainement de tests au FT4 (test en série)

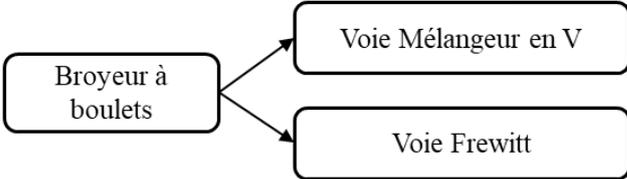
## 7. BILAN

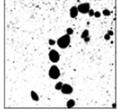
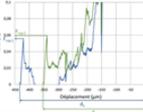
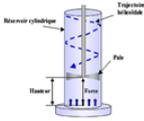
Dans ce chapitre, les différentes étapes de préparation du milieu granulaire utilisées afin de préparer les échantillons sont décrites. Des caractérisations physiques, mécaniques et rhéologiques de ces poudres sont réalisées grâce à de nombreuses techniques expérimentales. Le protocole de fabrication des pastilles cylindriques ainsi que leur caractérisation sont détaillés.

De plus, afin d'effectuer un maximum de tests de caractérisation lorsque la quantité de poudre est limitée, une méthodologie a été développée. Cette étude a montré que différentes méthodes de caractérisation détruisaient la poudre (évolution de la distribution granulométrique). Une organisation des tests de caractérisation a été établie suite à ces résultats.

Concernant le rhéomètre à poudre FT4, une méthodologie spécifique a été développée afin de pouvoir enchaîner les caractérisations rhéologiques sur un même échantillon. Afin de s'assurer de la non-destruction de la poudre lors de cet enchainement, un test non destructif, sensible aux fines particules et permettant de caractériser l'ensemble de l'échantillon est nécessaire. Le test de perméabilité répond à ces critères. En effet, une chute de la perméabilité est notable dès un faible taux de fines particules ( $< 100 \mu\text{m}$ ). L'évolution des échantillons sera donc évaluée grâce au test de perméabilité. Enfin, l'impact de cet enchainement est étudié. Seules les valeurs de BFE sur la poudre broyée montrent une différence significative entre les tests en série et les tests uniques. Cependant, ces mesures de BFE sur la poudre broyée semblent présenter des problèmes de répétabilité. Les BFE ne seront donc pas pris en compte lors de l'analyse des poudres broyées.

Fiche résumé du chapitre II

<b>Préparation du milieu granulaire</b>			<b>Conditions de mise en œuvre</b>
	Voie Mélangeur en V	<b>Voie Mélangeur en V</b> Vitesse de la turbine : 2000 tours.min <sup>-1</sup> 4000 tours.min <sup>-1</sup>	
	Voie Frewitt	 	<b>Voie Frewitt</b> Taille de maille du tamis : 250 µm 500 µm
			Trois étapes : Destruction des gros agglomérats, brassage et lubrification

<b>Caractérisations des poudres</b>		<b>Propriétés rhéologiques</b>	
<b>Caractéristiques physiques et mécaniques</b>		<b>Mise en écoulement (transition statique/dynamique)</b>	
Granulométrie laser en voie sèche  Morphologie par analyse d'images Porosimétrie mercure Surface spécifique Observation de la structure des agglomérats Tests d'abrasion Tests d'écrasement 		Test de cisaillement Écoulement à travers un orifice Frottements aux parois 	
			<b>Écoulement dynamique</b> Test dynamique FT4 (VFR)
		<b>Propriétés du lit de poudre</b> Test de perméabilité Test de tassement Test de compressibilité Angle de repos 	

<b>Analyse des pastilles</b>	<b>Caractérisation des pastilles</b>
<b>Fabrication des pastilles</b> Élaboration des comprimés ↓ Frittage 	Mesure de la densité par immersion + Observation de la microstructure 

<b>Méthodologie optimisée de caractérisation des poudres</b>	
<b>Détermination de l'ordre des tests de caractérisation</b> Étude de la destructivité de chaque test de caractérisation par suivi granulométrique ↓ Établissement d'une méthodologie de caractérisation	<b>Méthodologie pour les tests FT4</b> Étude de la destructivité des tests FT4 par suivi granulométrique ↓ Méthode de vérification de la destructivité de l'ensemble de l'échantillon qui soit rapide et facile à mettre en œuvre : test de perméabilité ↓ Établissement d'une méthodologie de caractérisation spécifique au FT4 ↓ Étude de l'impact de l'enchaînement de tests au FT4

**CHAPITRE III : IMPACT DES MÉTHODES  
DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE  
SUR LES CARACTÉRISTIQUES ET LES  
PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES**



# CHAPITRE III : IMPACT DES MÉTHODES DE PRÉPARATION DU MILIEU GRANULAIRE SUR LES CARACTÉRISTIQUES ET LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES

---

*Ce chapitre présente l'impact de deux méthodes de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques, mécaniques et les propriétés rhéologiques des poudres. La première méthode étudiée utilise un mélangeur en V. La seconde méthode correspond à la mise en œuvre de la poudre dans un Frewitt et dans un Turbula. Ces deux méthodes sont comparées afin de déterminer laquelle permet de conduire aux meilleures propriétés rhéologiques.*

<b>1. DÉMARCHE .....</b>	<b>94</b>
<b>2. VOIE MÉLANGEUR EN V .....</b>	<b>95</b>
2. 1. IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES .....	95
2. 2. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....	103
2. 3. FABRICATION DES PASTILLES .....	109
<b>3. VOIE FREWITT.....</b>	<b>111</b>
3. 1. IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES .....	111
3. 2. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....	119
3. 3. FABRICATION DES PASTILLES .....	125
<b>4. SYNTHÈSE .....</b>	<b>127</b>
<b>5. BILAN .....</b>	<b>128</b>

## 1. DÉMARCHE

La poudre initiale étudiée est une poudre broyée (notée GrC-PB en Figure III.1) obtenue grâce à un broyeur à boulets (Chapitre II. 2. 1). Cette poudre ne possède pas les propriétés requises pour satisfaire à la fois un bon écoulement au cours des différentes étapes de transfert et un pressage et frittage permettant la fabrication de pastilles de combustibles denses et homogènes. Dans cette optique, une amélioration des caractéristiques granulométriques, morphologiques et des propriétés mécaniques des poudres broyées est recherchée. Deux méthodes différentes, le mélangeur en V d'une part, et la voie Frewitt d'autre part, sont donc étudiées comme étapes de préparation du milieu granulaire. Ces deux méthodes ont été détaillées dans le Chapitre II. 2. 2. Les différents échantillons obtenus sont issus de :

- une lubrification de la poudre broyée (GrC-PB-L),
- une étape de destruction des gros agglomérats grâce à la turbine du mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV2000) ou à 4000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV4000) ou par tamisage/forçage au Frewitt avec un tamis de 250 µm (GrC-Frew250) ou de 500 µm (GrC-Frew500),
- une étape de brassage après mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV2000-B) ou à 4000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV4000-B) ou après tamisage/forçage au Frewitt avec un tamis de 250 µm (GrC-Frew250-B) ou de 500 µm (GrC-Frew500-B),
- une étape de lubrification suite au brassage pour le mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV2000-BL) ou à 4000 tours.min<sup>-1</sup> (GrC-MeV4000-BL) ou suite au brassage pour un tamisage/forçage au Frewitt avec un tamis de 250 µm (GrC-Frew250-BL) ou de 500 µm (GrC-Frew500-BL).

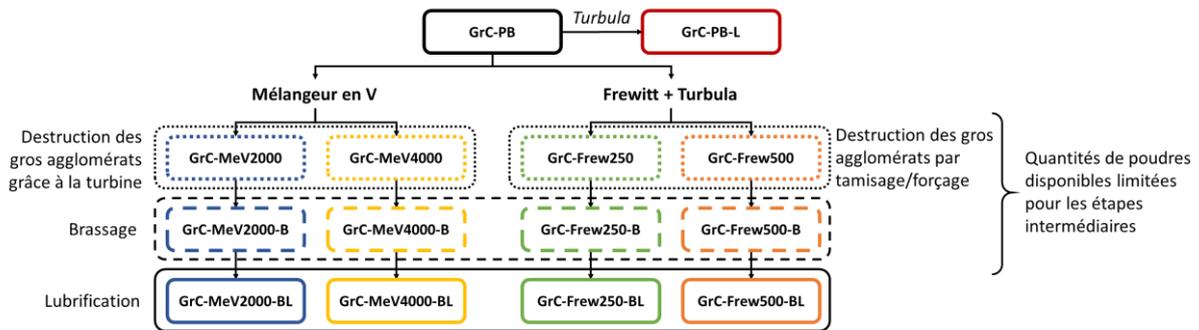


Figure III.1 : Récapitulatif des échantillons étudiés

Ces étapes peuvent entraîner différents phénomènes qui impacteront la coulabilité (Figure III.2) :

- fragmentation : rupture d'agglomérats en nombreux fragments,
- abrasion : arrachement des aspérités à la surface des agglomérats,
- agglomération : groupement de fines formant des agglomérats de taille plus importante,
- sphéroïdisation : agglomération de fines en surface des agglomérats.

Pour rappel, dans cette étude, les fines sont considérées comme les particules ou agglomérats de taille inférieure à 100 µm [Castellanos 2005; Liu et al. 2015; Madian et al. 2020].

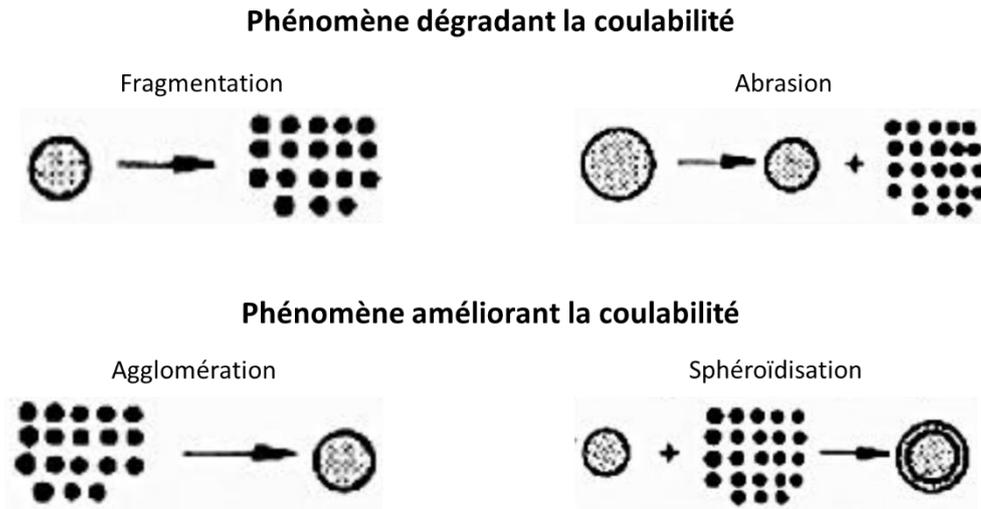


Figure III.2 : Présentation des différents phénomènes [Sastry and Fuerstenau 1973]

Afin d'étudier l'impact de ces opérations de préparation du milieu granulaire, différentes caractéristiques et propriétés sont alors étudiées :

- caractéristiques physiques : distribution granulométrique, morphologie et surface spécifique,
- caractéristiques mécaniques : contrainte à la rupture et taux d'abrasion,
- propriétés rhéologiques : diamètre d'écoulement spontané, rapport d'Hausner et indice de Carr, perméabilité, compressibilité, test de cisaillement et test VFR,
- frittabilité des pastilles.

Les poudres issues des étapes intermédiaires étant disponibles en quantité limitée, les caractérisations mécaniques et les propriétés rhéologiques réalisées à l'aide du rhéomètre FT4 (perméabilité, compressibilité, test de cisaillement et test VFR) ont uniquement pu être effectuées sur la poudre broyée initiale et les poudres finales (c'est-à-dire, après l'étape de lubrification présentée en Figure III.1).

Les valeurs présentées dans la suite de ce manuscrit correspondent à la moyenne des mesures réalisées sur les différentes prises d'essais. Les barres d'erreur indiquées sur les graphiques correspondent à plus ou moins l'écart-type obtenu à partir de ces différentes mesures.

## 2. VOIE MÉLANGEUR EN V

---

### 2. 1. IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES

#### 2. 1. 1. Caractéristiques physiques des poudres

##### 2. 1. 1. 1. Distribution granulométrique

Les distributions granulométriques des poudres étudiées sont présentées en Figure III.3 et Figure III.4. L'évolution du span est résumée par la Figure III.5. Les valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et span sont regroupées dans l'Annexe III.1.

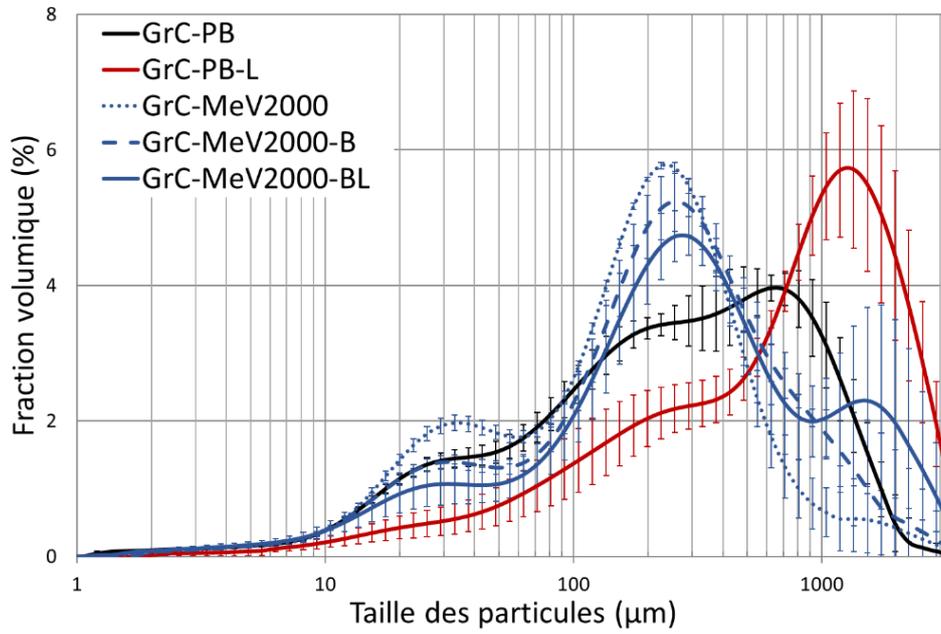


Figure III.3 : Distributions granulométriques après le mélangeur en V avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>

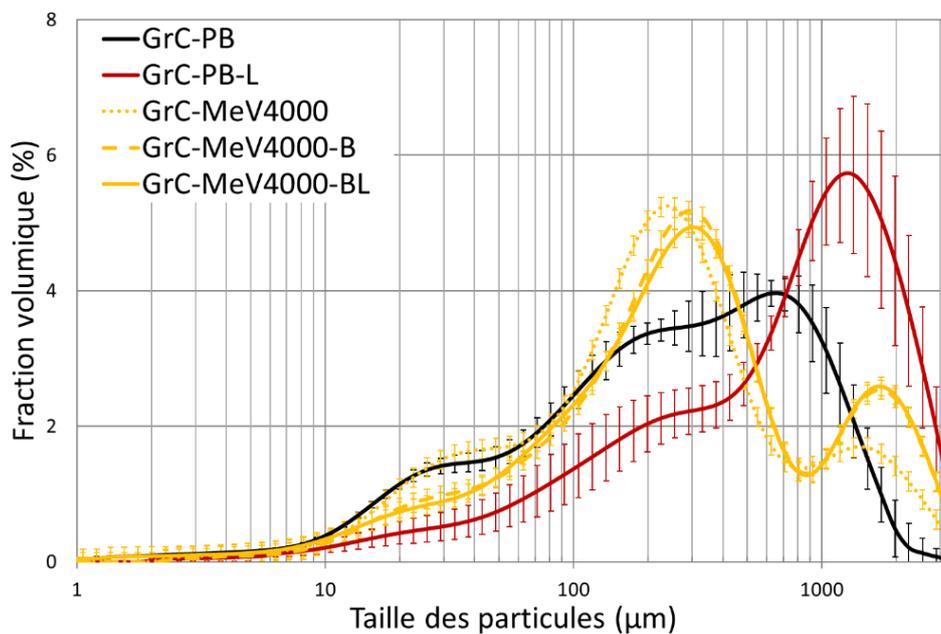


Figure III.4 : Distributions granulométriques après le mélangeur en V avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup>

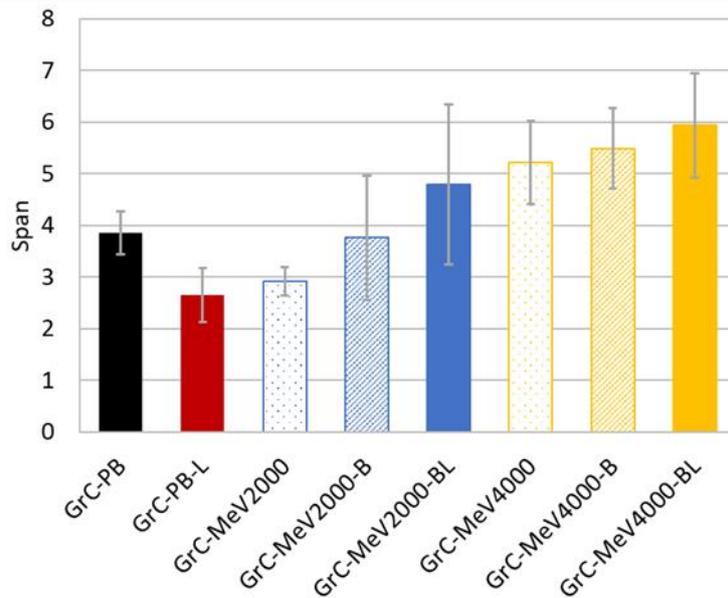


Figure III.5 : Valeurs du span des distributions granulométriques après mélangeur en V

La poudre broyée est composée d'agglomérats de diamètre compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 3 mm et elle possède une distribution étendue (span égal à 3,85). La lubrification de la poudre broyée entraîne l'agglomération des fines et conduit à la présence d'agglomérats de taille plus importante, l'étendue granulométrique est alors plus étroite.

La destruction des gros agglomérats avec la turbine dans le mélangeur en V modifie de manière importante la distribution granulométrique. En effet, la population d'agglomérats supérieurs à 500  $\mu\text{m}$  diminue et la population principale est d'environ 250  $\mu\text{m}$  pour les deux conditions de vitesse de turbine (2000 tours.min<sup>-1</sup> et 4000 tours.min<sup>-1</sup>). De plus, la vitesse de la turbine semble avoir un impact sur la distribution granulométrique. Avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>, une augmentation importante des fines et une diminution de l'étendue granulométrique sont observées alors qu'avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup>, les fines évoluent peu et une augmentation des agglomérats millimétriques et de l'étendue granulométrique sont observées. Deux phénomènes opposés peuvent se produire au sein du mélangeur en V :

- la diminution de la taille des agglomérats via des mécanismes d'abrasion et de fragmentation. Ces mécanismes sont induits par des impacts agglomérats/agglomérats et agglomérats/paroi (entre les agglomérats et la turbine ou la cuve),
- l'augmentation de la taille des agglomérats via des mécanismes d'agglomération et de sphéroïdisation. Ces phénomènes sont notamment favorisés par la rotation de la cuve.

Au vu des résultats granulométriques, la prépondérance de l'un ou l'autre de ces mécanismes pourrait dépendre de la vitesse de rotation de la turbine. Ainsi, le cycle incluant une vitesse de turbine à 4000 tours.min<sup>-1</sup> semble favoriser l'agglomération par rapport à une vitesse de 2000 tours.min<sup>-1</sup>. Cela pourrait être dû à une fragmentation plus importante due à une vitesse de turbine plus élevée, favorisant dans un second temps l'agglomération des fines obtenues lors de la rotation de la cuve [Singhai et al. 2010].

Après brassage, quelle que soit la vitesse de turbine utilisée lors de l'étape de mélange, une diminution des fines et une augmentation des agglomérats millimétriques sont observées. Ce résultat est en accord avec une agglomération des fines et une sphéroïdisation des agglomérats. En effet, la turbine

n'est pas utilisée lors du brassage et la rotation de la cuve favorise ces deux phénomènes. Par ailleurs, en comparaison des poudres issues de la destruction des gros agglomérats, l'étendue granulométrique semble légèrement augmenter, mais les différences restent inférieures aux écarts-types des mesures.

Enfin, l'étape de lubrification amplifie le phénomène d'agglomération pour le GrC-MeV2000-BL alors que l'impact est négligeable pour le GrC-MeV4000-BL. Comme précisé précédemment, avant lubrification, la poudre issue de l'étape de mélange avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup> est plus agglomérée qu'avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>. Ainsi, l'étape de lubrification semble avoir un impact sur la granulométrie en fonction de l'état d'agglomération de la poudre avant lubrification. L'étendue granulométrique semble légèrement augmenter lors de cette étape, mais les différences restent inférieures aux écarts-types des mesures.

### 2. 1. 1. 2. Morphologie

Les fréquences cumulées en volume de l'élongation et de la circularité de la poudre broyée, la poudre broyée-lubrifiée et celles des poudres issues des différentes étapes réalisées au mélangeur en V avec une vitesse de 2000 tours.min<sup>-1</sup> (Figure III.6 et Figure III.7) et 4000 tours.min<sup>-1</sup> (Figure III.8 et Figure III.9) sont étudiées. Les fréquences cumulées de la taille des agglomérats étudiés sont représentées en Annexe III.2(a) et (b). Les valeurs des SF<sub>10</sub>, SF<sub>50</sub> et SF<sub>90</sub> sont regroupées en Annexe III.3 et Annexe III.4. Il est à noter que des augmentations soudaines de volume cumulé peuvent être observées dans les représentations en fréquence cumulée de l'élongation et de la circularité. Ceci peut s'expliquer par la présence d'agglomérats millimétriques dans les poudres étudiées (Annexe III.2(a) et (b)). En effet, la répartition en volume donne plus de poids à ces derniers, ce qui induit ces augmentations soudaines et impactent donc les valeurs d'élongation et de circularité.

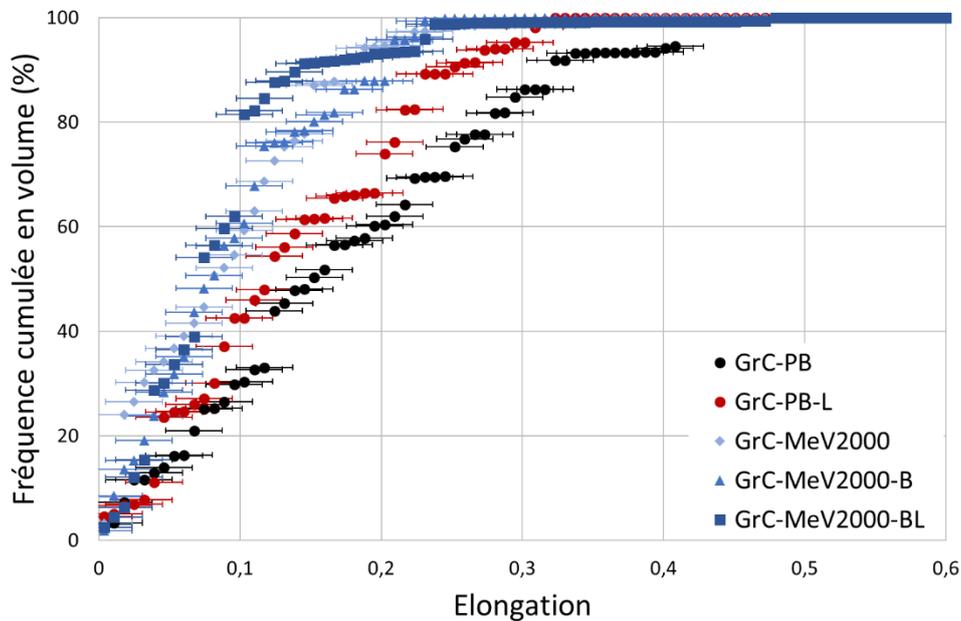


Figure III.6 : Fréquence cumulée en volume de l'élongation pour le mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup>

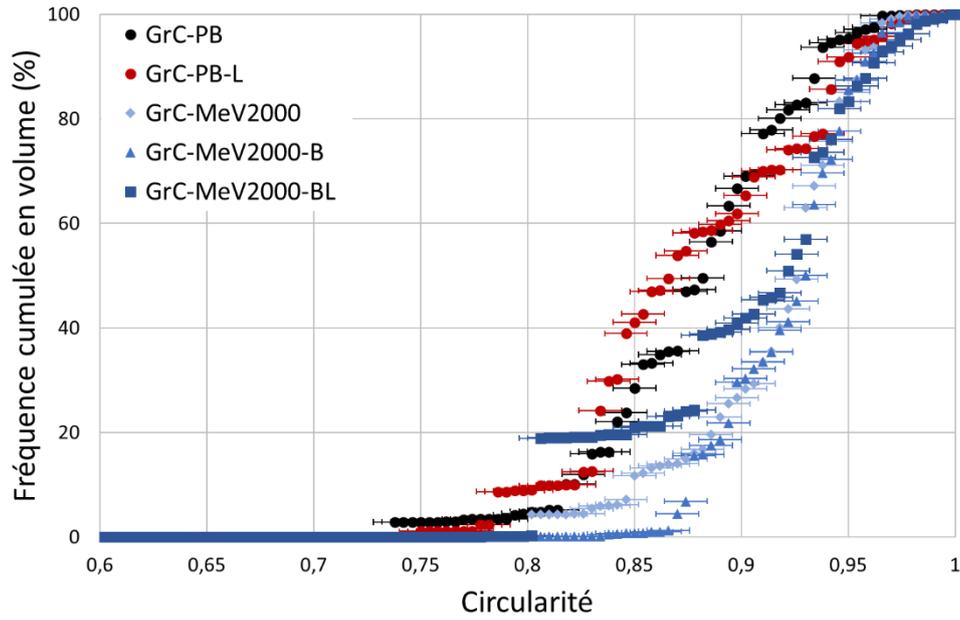


Figure III.7 : Fréquence cumulée en volume de la circularité pour le mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup>

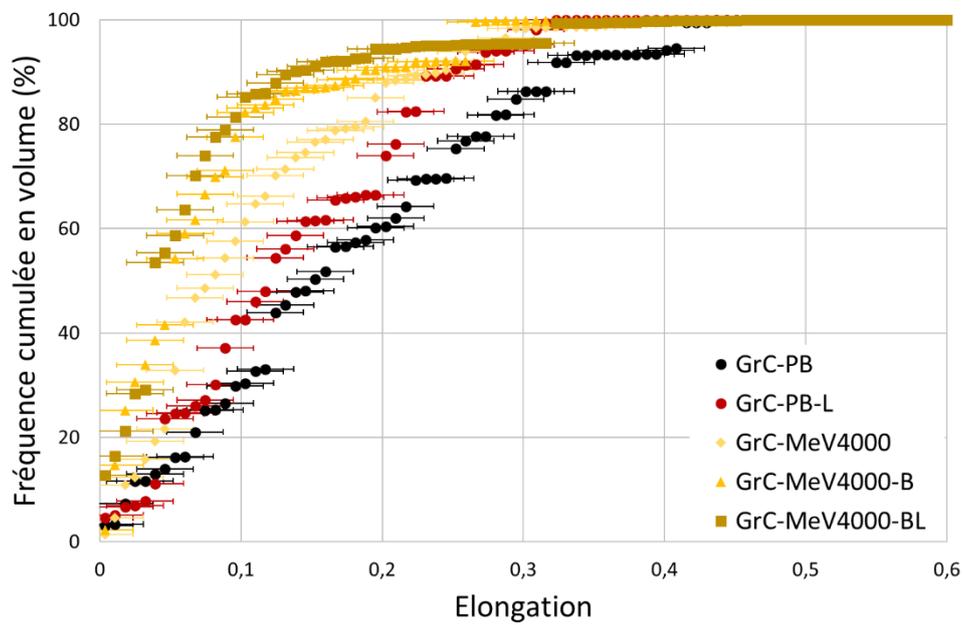


Figure III.8 : Fréquence cumulée en volume de l'élongation pour le mélangeur en V à 4000 tours.min<sup>-1</sup>

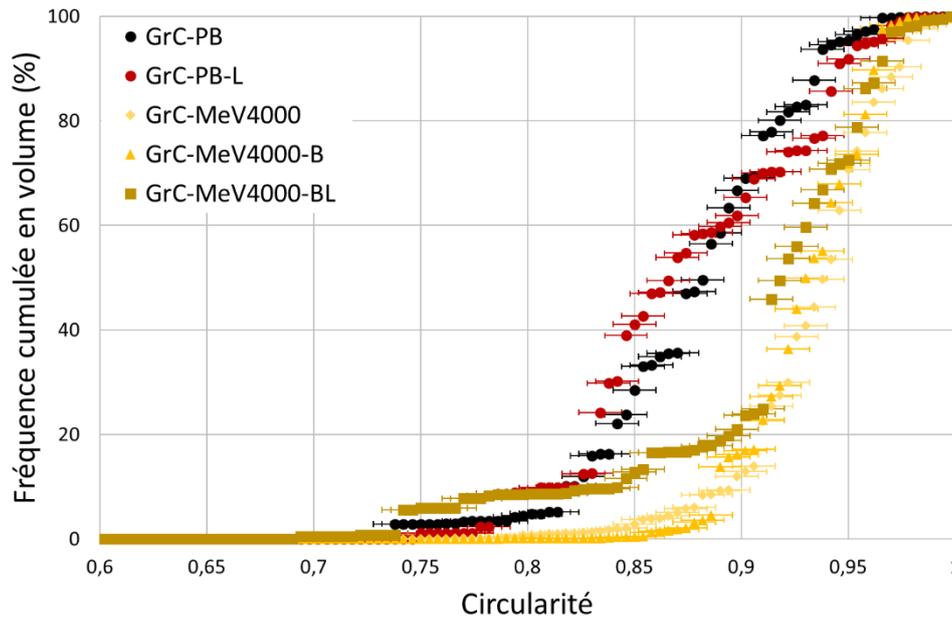


Figure III.9 : Fréquence cumulée en volume de la circularité pour le mélangeur en V à 4000 tours.min<sup>-1</sup>

Après la lubrification de la poudre broyée, l'élongation diminue légèrement et la circularité n'est pas modifiée par rapport à la poudre broyée initiale. Les agglomérats semblent donc moins allongés grâce à l'agglomération des fines mais leur angularité n'est pas impactée par la lubrification.

Après la destruction des gros agglomérats réalisée au mélangeur en V avec la turbine, l'élongation diminue et la circularité augmente, en accord avec les mécanismes d'abrasion, de fragmentation, de ré-agglomération et de sphéroïdisation qui coexistent lors de cette étape.

Pour une poudre ayant subi un cycle de mélange avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>, les étapes ultérieures de brassage et de lubrification ne modifient pas significativement l'élongation et la circularité. En effet, les différences restent inférieures aux écarts-types des mesures. L'agglomération et la sphéroïdisation mises en jeu lors de ces étapes ne semblent donc pas impacter significativement la forme et l'angularité des agglomérats.

Pour une poudre ayant subi un cycle de mélange avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup>, l'étape de brassage permet de diminuer légèrement l'élongation des agglomérats mais n'impacte pas leur circularité. Dans ces conditions, l'agglomération modifie donc la forme mais pas l'angularité lors de cette étape. Les agglomérats étant relativement moins anguleux suite à la destruction des gros agglomérats, leur circularité ne semble pas être significativement modifiée. La lubrification ne modifie pas significativement l'élongation et la circularité des agglomérats par rapport à la poudre brassée. Cette observation est en accord avec la faible évolution de la distribution granulométrique pour ce lot lors de cette étape.

### 2. 1. 1. 3. Surface spécifique

Le Tableau III.1 regroupe les valeurs de surface spécifique obtenues par BET pour les poudres non lubrifiées. Ces résultats mettent en évidence que les opérations réalisées dans le mélangeur en V ne modifient pas la surface spécifique des poudres. La fragmentation évoquée précédemment ne se produit

donc pas sur les agrégats ou les cristallites, probablement en raison d'une énergie injectée à la poudre insuffisante. Cette fragmentation ne concerne donc que les agglomérats.

*Tableau III.1 : Valeurs de la surface spécifique après mélangeur en V*

	GrC-PB	GrC-MeV2000	GrC-MeV2000-B	GrC-MeV4000	GrC-MeV4000-B
<b>Surface spécifique (m<sup>2</sup>.g<sup>-1</sup>)</b>	2,6 ± 0,2	2,3 ± 0,2	2,4 ± 0,2	2,2 ± 0,2	2,2 ± 0,2

## 2. 1. 2. Caractéristiques mécaniques des poudres

### 2. 1. 2. 1. Contrainte à la rupture

Les mesures de contrainte à la rupture des agglomérats ont été réalisées sur la poudre broyée, la poudre broyée-lubrifiée et les poudres finales après les différentes étapes au mélangeur en V. Les diamètres moyens des agglomérats dans la direction de l'écrasement ainsi que les constantes et modules de Weibull (Équation I.12) correspondants sont reportés dans le Tableau III.2. La constante de Weibull augmente après lubrification de la poudre broyée. Elle ne semble pas modifiée après mélangeur en V. Ce dernier entraîne des phénomènes de fragmentation et d'abrasion, puis des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation, ce qui ne permet pas d'améliorer la résistance à la rupture des agglomérats. Les faibles valeurs des modules de Weibull ( $m < 20$ ) soulignent une répartition hétérogène des défauts et une forte dispersion des contraintes à la rupture. Ceci pourrait être lié à la porosité importante des agglomérats de ces poudres [Couroyer et al. 1999].

*Tableau III.2 : Valeurs des constantes et modules de Weibull après mélangeur en V*

	GrC-PB (420 ± 40 μm)*	GrC-PB-L (430 ± 30 μm)*	GrC-MeV2000-BL (450 ± 40 μm)*	GrC-MeV4000-BL (470 ± 30 μm)*
<b>Constante de Weibull σ<sub>0</sub> (kPa)</b>	139	209	102	122
<b>Module de Weibull m</b>	3,6	3,5	4,7	3,4

\* diamètre moyen des agglomérats dans la direction de l'écrasement

### 2. 1. 2. 2. Comportement à l'abrasion

L'évolution du taux d'abrasion est représentée sur la Figure III.10. Ces mesures ont été réalisées selon le mode opératoire détaillé dans le chapitre II. 3. 2. 2, sur les poudres disponibles en quantité suffisante.

Le taux d'abrasion mesuré pour la poudre broyée est de 73% (Équation II.9) révélant une poudre sensible à l'abrasion. Après lubrification de la poudre broyée, le taux d'abrasion n'évolue pas significativement, la lubrification ne semble donc pas impacter la résistance des agglomérats à l'abrasion. En revanche, la vitesse de la turbine utilisée lors de la destruction des gros agglomérats semble avoir une influence sur le taux d'abrasion des poudres brassées et lubrifiées. En effet, avec une vitesse de 4000 tours.min<sup>-1</sup>, le taux d'abrasion n'évolue pas alors que ce dernier diminue avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>. Cette observation est cohérente avec la présence d'agglomérats

constitués de fines pour le lot obtenu à 4000 tours.min<sup>-1</sup>. Ces agglomérats semblent plus sensibles à l'abrasion que les agglomérats obtenus à 2000 tours.min<sup>-1</sup>.

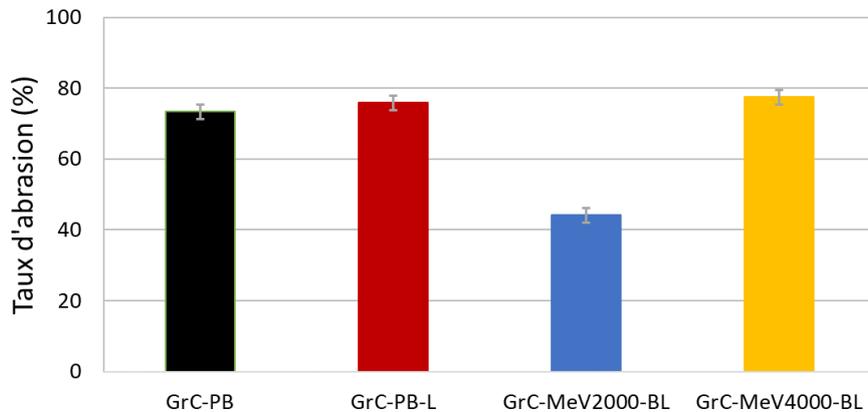


Figure III.10 : Valeurs du taux d'abrasion après le mélangeur en V

### 2. 1. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques après mélangeur en V

Le Tableau III.3 regroupe les modifications des caractéristiques physiques et mécaniques des poudres lors des opérations de préparation du milieu granulaire effectuées à l'aide du mélangeur en V. Les conclusions principales sont les suivantes :

- impact de l'étape de destruction des gros agglomérats grâce à la turbine :
  - o quelle que soit la vitesse de turbine utilisée, l'élongation des agglomérats diminue et leur circularité augmente et la distribution granulométrique est modifiée. Ces modifications sont dues aux phénomènes de fragmentation, d'abrasion et de sphéroïdisation mis en jeu lors de cette étape,
  - o néanmoins, l'augmentation des agglomérats millimétriques et le taux de fines constant laisse supposer une ré-agglomération avec une vitesse de 4000 tours.min<sup>-1</sup>,
- impact de l'étape de brassage :
  - o quelle que soit la vitesse de turbine utilisée, la proportion de fines diminue et celle des agglomérats millimétriques augmente, ce qui est en accord avec les phénomènes d'agglomération,
  - o cependant, l'élongation diminue lors du brassage pour l'échantillon réalisé avec une vitesse de 4000 tours.min<sup>-1</sup>,
- impact de l'étape de lubrification :
  - o des phénomènes d'agglomération sont mis en jeu uniquement avec la vitesse de 2000 tours.min<sup>-1</sup>, en raison de la quantité de fines plus importante lors de l'étape de destruction des gros agglomérats en comparaison avec la vitesse de 4000 tours.min<sup>-1</sup>.

Enfin, l'étape de préparation de milieu granulaire au mélangeur en V n'améliore pas significativement les résistances à la rupture des agglomérats. Seule la résistance à l'abrasion est améliorée pour la poudre finale issue d'une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>.

Tableau III.3 : Modification des caractéristiques physiques et mécaniques après mélangeur en V

	Destruction des gros agglomérats		Brassage		Lubrification	
	GrC-MeV2000	GrC-MeV4000	GrC-MeV2000-B	GrC-MeV4000-B	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000-BL
Proportion de fines	↗	≈	↘	↘	↘	≈
Proportion de gros agglomérats	↘	↗	↗	↗	↗	≈
Largeur de l'étendue granulométrique	↘	↗	≈	≈	≈	≈
Élongation	↘	↘	≈	↘	≈	≈
Circularité	↗	↗	≈	≈	≈	≈
Contrainte à la rupture*	×	×	×	×	≈	≈
Taux d'abrasion	×	×	×	×	↘	≈
Phénomènes	Abrasion Fragmentation Sphéroïdisation Agglomération à 4000 tours.min <sup>-1</sup>		Agglomération		Agglomération et amélioration de la résistance à l'abrasion à 2000 tours.min <sup>-1</sup>	

\* dans la gamme de taille étudiée

↗ augmentation par rapport à l'étape précédente

↘ diminution par rapport à l'étape précédente

≈ peu de modification par rapport à l'étape précédente

× caractéristique non étudiée

## 2. 2. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES

Il est à noter que les caractérisations effectuées à l'aide du rhéomètre FT4 sont enchainées sur un même échantillon selon la méthodologie présentée dans le chapitre II. 6. 2. 3. Les écarts relatifs associés aux mesures de perméabilité entre chaque test (Équation II.17) sont présentés dans l'Annexe III.5.

Les écarts relatifs restent inférieurs à 10% pour tous les échantillons jusqu'aux mesures VFR exclues. Après le test VFR, certains écarts relatifs peuvent dépasser les 10% (en particulier la poudre broyée et la poudre finale après mélangeur en V à 4000 tours.min<sup>-1</sup>), ce qui confirme le caractère destructif de ce test (Chapitre II. 6. 2. 1. 5).

## 2. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique)

### 2. 2. 1. 1. Test de cisaillement

Les fonctions d'écoulement déterminées à partir des tests de cisaillement sont présentées sur la Figure III.11 et l'indice de coulabilité  $ff_c$ , la cohésion ( $\tau_c$ ) et l'angle de frottement interne AIF pour chaque échantillon sont reportés dans le Tableau III.4.

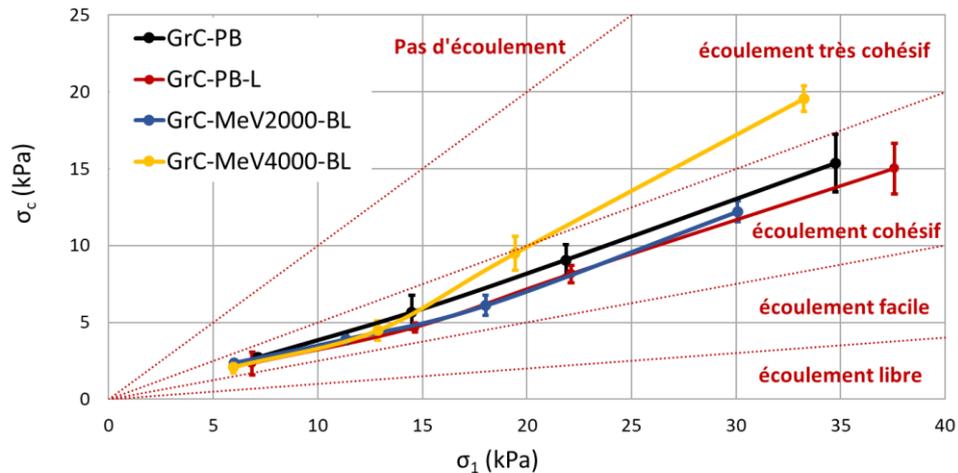


Figure III.11 : Valeurs de la fonction d'écoulement après mélangeur en V

Tableau III.4 : Indice de coulabilité  $ff_c$ , cohésion et angle de frottement interne AIF après mélangeur en V

	GrC-PB	GrC-PB-L	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000-BL
$ff_c$ à 3 kPa	2,64 ± 0,13	3,20 ± 1,13	2,52 ± 0,01	2,90 ± 0,43
$ff_c$ à 15 kPa	2,28 ± 0,20	2,52 ± 0,25	2,47 ± 0,13	1,70 ± 0,12
Cohésion à 3 kPa	0,63 ± 0,06	0,62 ± 0,25	0,72 ± 0,08	0,59 ± 0,11
Cohésion à 15 kPa	3,68 ± 0,52	3,49 ± 0,48	3,21 ± 0,24	5,48 ± 0,29
AIF à 3 kPa (°)	40,02 ± 2,41	35,02 ± 5,23	27,75 ± 2,52	31,72 ± 1,11
AIF à 15 kPa (°)	38,88 ± 1,33	40,20 ± 1,91	34,61 ± 1,38	31,40 ± 2,98

Par rapport à la poudre broyée, l'étape de lubrification ne modifie pas de manière significative la fonction d'écoulement, l'indice d'écoulement, la cohésion et l'angle de frottement interne. En effet, les différences observées restent inférieures aux écarts-types des mesures.

Il en est de même pour le lot GrC-MeV2000-BL, excepté pour l'angle de frottement interne qui est plus faible que celui de la poudre broyée. Comme évoqué précédemment, cela pourrait être dû à l'agglomération et la sphéroïdisation (forme moins allongée et moins anguleuse) des agglomérats obtenus après le mélangeur en V. Cette morphologie diminuerait le nombre de points de contact et donc les frottements entre agglomérats.

Avec une vitesse de turbine de  $4000 \text{ tours.min}^{-1}$ , la fonction d'écoulement, l'indice d'écoulement et la cohésion sont similaires à celles de la poudre broyée lorsque de faibles contraintes sont appliquées. Cependant, cette fonction d'écoulement augmente plus fortement lorsque la contrainte de consolidation majeure  $\sigma_1$  est supérieure à environ 12 kPa. Cette observation est cohérente avec une poudre plus sensible au phénomène d'abrasion (section 0), phénomène qui engendre la formation de fines et induit une augmentation des forces de cohésion, et donc de la fonction d'écoulement pour des valeurs de contraintes élevées. D'autre part, de même que pour la poudre GrC-MeV2000-BL, l'angle de frottement interne diminue pour la poudre GrC-MeV4000-BL. Ceci peut s'expliquer probablement par les mêmes raisons, c'est-à-dire des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation entraînant une évolution morphologique des agglomérats.

### 2. 2. 1. 2. Diamètre d'écoulement spontané

Les valeurs du diamètre d'écoulement spontané sont présentées en Figure III.12.

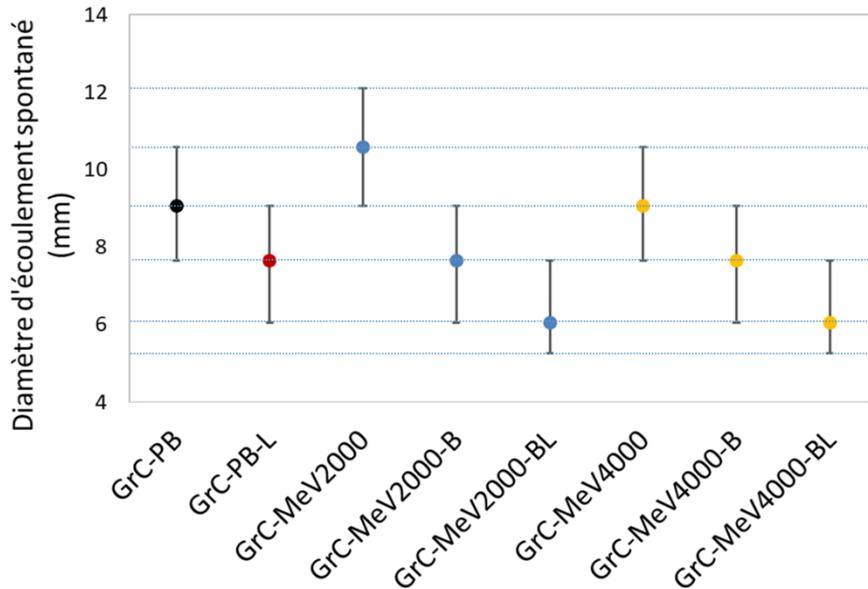


Figure III.12 : Valeurs du diamètre d'écoulement spontané après mélangeur en V (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette)

La lubrification de la poudre broyée permet de diminuer le diamètre d'écoulement spontané grâce au phénomène d'agglomération.

Après la destruction des gros agglomérats, le diamètre d'écoulement spontané augmente par rapport à la poudre broyée avec une vitesse de  $2000 \text{ tours.min}^{-1}$  et n'est pas modifié avec une vitesse de  $4000 \text{ tours.min}^{-1}$ . Cette étape entraîne des phénomènes d'abrasion et de fragmentation, augmentant la proportion de fines et dégradant la mise en écoulement. Cependant, des phénomènes d'agglomération lors de cette étape avec une vitesse de  $4000 \text{ tours.min}^{-1}$  permettent de compenser l'abrasion et la fragmentation des agglomérats et la mise en écoulement n'est pas dégradée.

Les étapes de brassage et de lubrification améliorent la mise en écoulement grâce aux phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de ces étapes.

Les diamètres d'écoulement spontané des poudres finales sont inférieurs à ceux de la poudre broyée et de la poudre broyée-lubrifiée. Ainsi, cette mesure tend à montrer que l'application du

mélangeur en V associée au brassage et à la lubrification permet une amélioration de la mise en écoulement.

### 2. 2. 2. Écoulement dynamique (test VFR)

Le Basic Flow Energy (BFE) et le Flow Index (FRI) sont déterminés à partir des mesures VFR (Figure III.13), à l'aide du rhéomètre FT4.

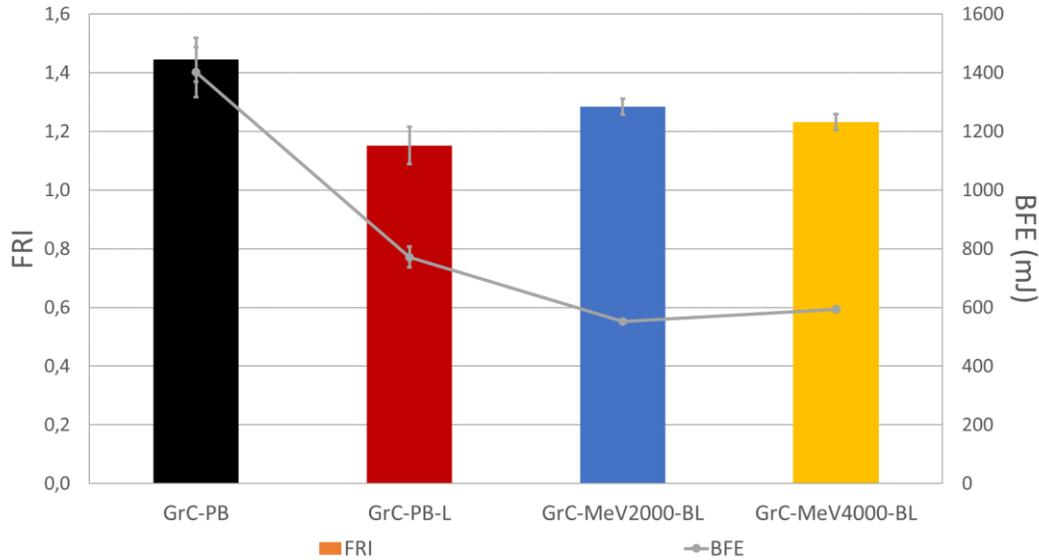


Figure III.13 : Valeurs du FRI et du BFE après mélangeur en V

La poudre broyée présente un BFE d'environ 1400 mJ et un FRI de 1,44. Après lubrification de la poudre broyée, ces indicateurs diminuent, ce qui traduit de meilleures propriétés d'écoulement dynamique. Ces valeurs sont en accord avec la diminution de la proportion de fines et la diminution de l'élongation des agglomérats, ce qui diminue le frottement entre agglomérats. Cette diminution entraîne une baisse de l'énergie nécessaire à la lame pour déplacer la poudre, donc la diminution des valeurs de BFE et FRI.

Concernant les poudres finales après mélangeur en V, les valeurs de BFE et de FRI diminuent également par rapport à la poudre broyée. En effet, les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation permettent d'améliorer l'écoulement dynamique des poudres. De même que pour la poudre broyée-lubrifiée, les frottements entre les agglomérats sont donc moins importants, l'énergie nécessaire pour déplacer la poudre est donc plus faible.

### 2. 2. 3. Propriétés du lit de poudre

#### 2. 2. 3. 1. Perméabilité à 2 kPa

Les mesures de perméabilité des poudres (Figure III.14) montrent que la lubrification entraîne une faible diminution de la perméabilité. Ce résultat semble contre-intuitif. En effet, la lubrification entraîne des phénomènes d'agglomération : augmentation de la taille des agglomérats, diminution de l'étendue granulométrique, diminution de l'élongation. Chacune de ces modifications devrait permettre une augmentation de la perméabilité du lit de poudre. Cependant, des agglomérats millimétriques de grande taille mais relativement faibles en nombre ont pu être observés pour ce lot. Ainsi, d'éventuels

problèmes de ségrégation peuvent avoir eu lieu et avoir ainsi impactés fortement les mesures de perméabilité. L'effet semble moins marqué après passage au mélangeur en V : la poudre GrC-MeV4000-BL présente une perméabilité similaire à celle de la poudre broyée alors que la perméabilité de la poudre GrC-MeV2000-BL semble être légèrement inférieure. Ceci est en accord avec les distributions granulométriques larges (augmentation du span) avec des particules millimétriques et des fines après la voie mélangeur en V, similaires à la poudre broyée.

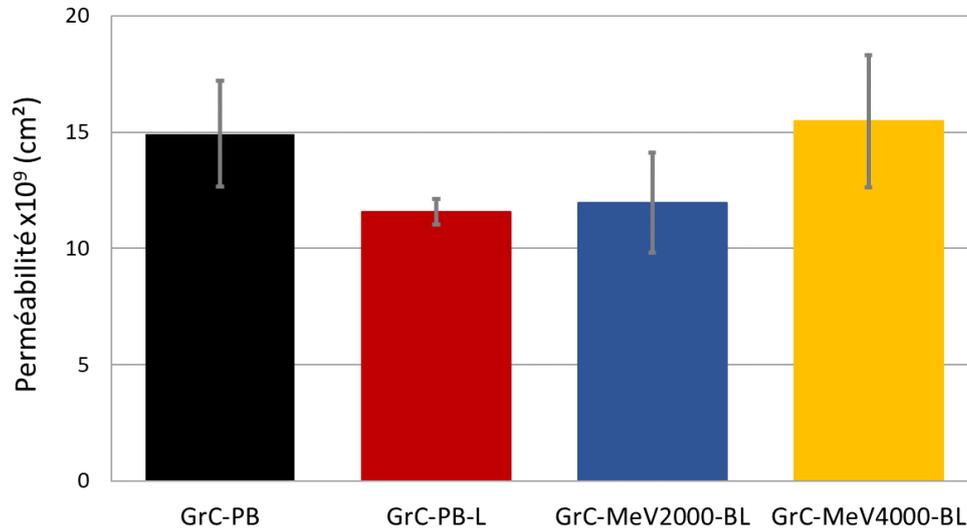


Figure III.14 : Valeurs de la perméabilité après mélangeur en V

### 2. 2. 3. 2. Arrangement d'un lit d'agglomérats (indice de Carr/rapport d'Hausner et compressibilité)

L'indice de Carr et le rapport de Hausner sont déterminés après toutes les étapes et sont présentés dans le Tableau III.5 pour chaque lot. Ces caractérisations permettent d'évaluer l'arrangement d'un lit d'agglomérats.

Tableau III.5 : Valeurs des indices de Carr et rapports d'Hausner après mélangeur en V

Échantillon	Indice de Carr	Rapport d'Hausner
GrC-PB	20 ± 2	1,26 ± 0,03
GrC-PB-L	16 ± 3	1,19 ± 0,03
GrC-MeV2000	30 ± 2	1,44 ± 0,03
GrC-MeV2000-B	24 ± 2	1,32 ± 0,03
GrC-MeV2000-BL	19 ± 2	1,24 ± 0,03
GrC-MeV4000	31 ± 2	1,45 ± 0,03
GrC-MeV4000-B	25 ± 2	1,34 ± 0,03
GrC-MeV4000-BL	22 ± 2	1,28 ± 0,03

La poudre broyée possède un comportement intermédiaire entre des poudres cohésives ou non cohésives (rapport d'Hausner égal à 1,26) et un écoulement passable (indice de Carr égal à 20). La lubrification de la poudre broyée diminue l'indice de Carr et le rapport d'Hausner. Ces résultats montrent donc une amélioration de la coulabilité lors de l'étape de lubrification, résultat en accord avec l'agglomération des fines (section 2. 1. 1. 1), et la diminution de l'élongation des agglomérats (section 2. 1. 1. 2).

Après la destruction des gros agglomérats grâce à la turbine dans le mélangeur en V, l'indice de Carr et le rapport Hausner augmentent, attestant d'une dégradation des propriétés d'écoulement de ces poudres, probablement en raison des phénomènes de fragmentation et d'abrasion mis en jeu lors de cette étape (section 2. 1. 2). Les étapes de brassage et de lubrification induisent une diminution de l'indice de Carr et du rapport Hausner en raison de l'agglomération des fines. Il est à noter que le rapport d'Hausner et l'indice de Carr des poudres finales issues du mélangeur en V restent semblables à ceux de la poudre broyée et sont plus élevés que ceux de la poudre broyée-lubrifiée. Ces mesures ne mettent pas en évidence une amélioration notable de la coulabilité.

Les valeurs de compressibilité à 15 kPa sont représentées sur la Figure III.15. Avant compression, les densités en vrac des poudres sont du même ordre de grandeur (Annexe III.6).

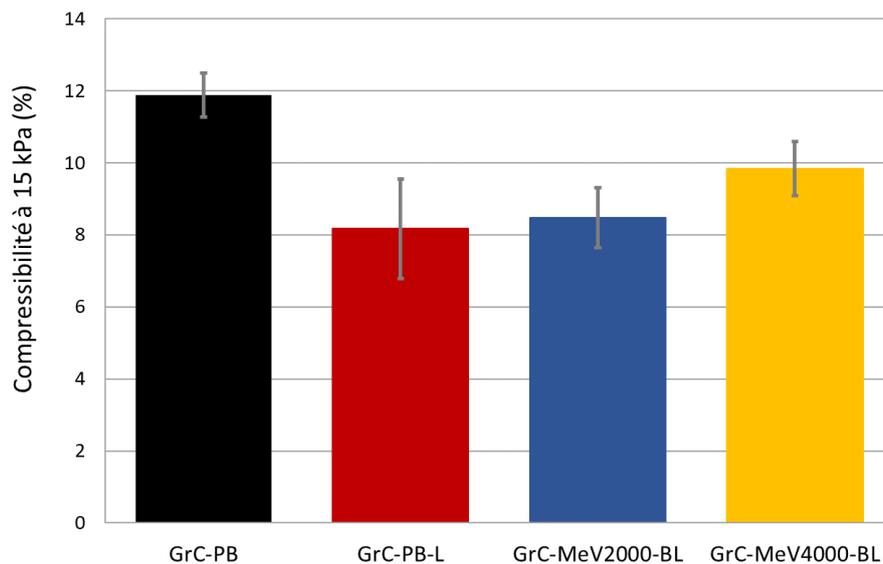


Figure III.15 : Valeurs de la compressibilité après mélangeur en V

La lubrification de la poudre broyée permet de diminuer significativement la compressibilité de la poudre. En effet, cette étape entraîne une diminution de l'étendue granulométrique et de l'élongation des agglomérats ce qui permet un arrangement initial du lot de poudre plus compact et donc une diminution de la compressibilité.

Suite aux différentes étapes réalisées au mélangeur en V, la compressibilité diminue également pour les deux vitesses de turbine. Cette diminution est plus importante avec une vitesse de turbine de 2000 tours.min<sup>-1</sup>. Ce résultat est probablement dû à la morphologie des agglomérats. En effet, après le mélangeur en V, les agglomérats sont moins allongés, en particulier pour le GrC-MeV2000-BL, et sont moins anguleux. De plus, les étapes de brassage et de lubrification réduisent probablement la rugosité de surface des agglomérats due à la sphéroidisation de ces derniers, ce qui diminue les forces cohésives et frictionnelles des agglomérats. Ces modifications permettent un meilleur arrangement initial des agglomérats dans le lit de poudre ce qui entraîne une diminution de la compressibilité.

## 2. 2. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques après mélangeur en V

Le Tableau III.6 regroupe les modifications des propriétés rhéologiques des poudres lors des opérations de préparation du milieu granulaire effectuées au mélangeur en V.

Les phénomènes observés lors de l'analyse des caractéristiques physiques et mécaniques permettent d'expliquer l'évolution des propriétés d'écoulement de la poudre. En effet, la fragmentation et l'abrasion des agglomérats dégradent la coulabilité, alors que les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation l'améliorent. Il est à noter que les phénomènes d'abrasion des agglomérats entraînent une dégradation de la mise en écoulement des poudres avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup> (diminution de l'indice de coulabilité et augmentation de la cohésion sous contraintes plus élevées).

Tableau III.6 : Modification des propriétés rhéologiques après mélangeur en V

Phénomènes	Destruction des gros agglomérats		Brassage		Lubrification	
	GrC-MeV2000	GrC-MeV4000	GrC-MeV2000-B	GrC-MeV4000-B	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000-BL
	Abrasion		Agglomération		Agglomération et amélioration de la résistance à l'abrasion à 2000 tours.min <sup>-1</sup>	
	Fragmentation					
	Agglomération					
	Sphéroïdisation					
$ff_c$	x	x	x	x	≈	↘ forte contrainte
Cohésion	x	x	x	x	≈	↗ forte contrainte
Angle de frottement interne	x	x	x	x	↘	↘
Diamètre d'écoulement spontané	↗	≈	↘	↘	↘	↘
BFE/FRI	x	x	x	x	↘	↘
Perméabilité	x	x	x	x	↘	≈
Indice de Carr/rapport d'Hausner	↗	↗	↘	↘	↘	↘
Compressibilité	x	x	x	x	↘	↘

↗ augmentation par rapport à l'étape précédente

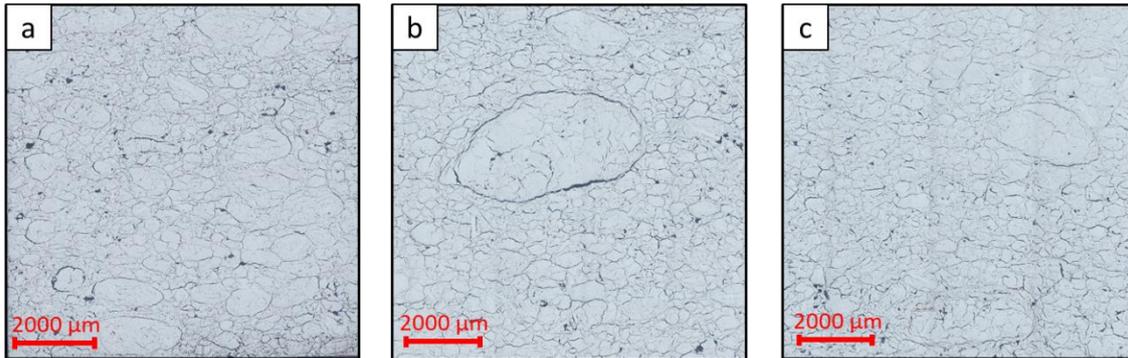
↘ diminution par rapport à l'étape précédente

≈ peu de modification par rapport à l'étape précédente

x propriété non étudiée

### 2. 3. FABRICATION DES PASTILLES

Des pastilles cylindriques ont été réalisées pour les poudres lubrifiées (GrC-PB-L, GrC-MeV2000-BL et GrC-MeV4000-BL). La Figure III.16 présente les observations céramographiques par microscopie optique des coupes transverses de ces pastilles. Les valeurs de densité apparente, déterminées par pesée hydrostatique de 3 à 5 pastilles après immersion dans du bromobenzène sur trois pastilles pour chaque lot, sont reportées sur la Figure III.17, de même que les valeurs correspondantes de porosité ouverte et fermée (valeurs correspondantes en **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**).



*Figure III.16 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées (a) GrC-PB-L, (b) GrC-MeV2000-BL et (c) GrC-MeV4000-BL (microscopie optique)*

La microstructure de la pastille issue de la poudre broyée-lubrifiée est constituée d'agglomérats denses entourés de porosités interconnectées. Le broyage semble entraîner la formation d'agglomérats consolidés avant frittage, probablement due aux conditions de broyage utilisées pour produire la poudre. Ces agglomérats ne sont pas détruits lors de l'étape de pressage et se densifient sur eux-mêmes au frittage, en créant de la porosité ouverte non souhaitée. La densité apparente des pastilles obtenues pour la poudre broyée-lubrifiée est égale à 91,1% $\rho_{th}$ , valeur en accord avec la microstructure observée.

Après mélangeur en V, la microstructure des pastilles n'est pas modifiée, quelle que soit la vitesse de la turbine utilisée. Les conditions de préparation du milieu granulaire ne semblent donc pas permettre de modifier suffisamment la densité des agglomérats présents avant frittage. En effet, les agglomérats de la poudre semblent rester consolidés après mélangeur en V. La diminution de la densité hydrostatique est corrélée à une augmentation de la porosité ouverte, probablement en raison d'une diminution de la taille moyenne des agglomérats. Une quantification de la structure des agglomérats pourrait permettre de mieux comprendre la modification des agglomérats lors du pressage ainsi que leur frittabilité. De plus, différentes caractéristiques de la poudre impactent la densité des pastilles, telles que le taux d'agrégation et la distribution granulométrique [Ndiaye 2006]. Moins la poudre est agrégée, plus les compacts obtenus sont denses [Liu et al. 1999]. De plus, la densification est impactée par la largeur de la distribution granulométrique, ainsi que la proportion de fines ou ultrafines contenues dans la poudre.

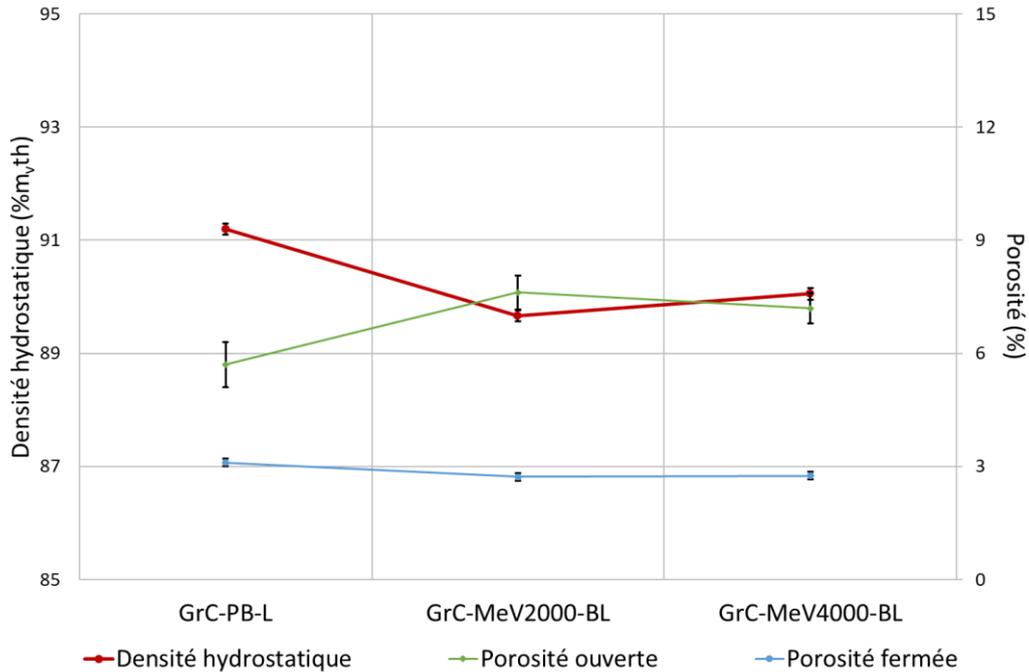


Figure III.17 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités ouvertes et fermées des pastilles après mélangeur en V

### 3. VOIE FREWITT

---

#### 3. 1. IMPACT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES

##### 3. 1. 1. Caractéristiques physiques des poudres

###### 3. 1. 1. 1. Distribution granulométrique

Les distributions granulométriques des poudres étudiées sont présentées en Figure III.18 et Figure III.19, l'évolution du span est résumée dans la Figure III.20. Les valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et span sont regroupées dans l'Annexe III.1.

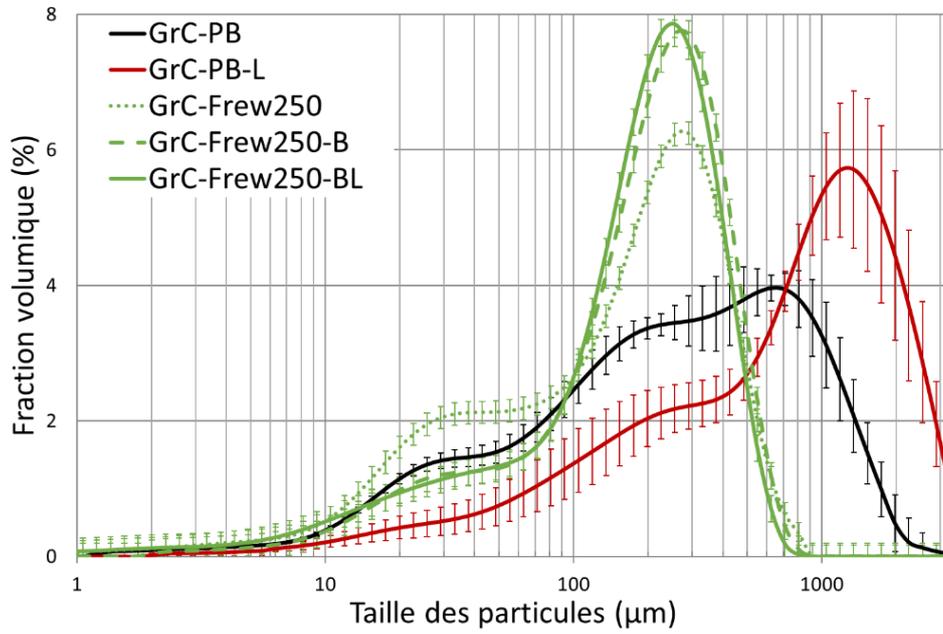


Figure III.18 : Distributions granulométriques après la voie Frewitt avec un tamis de 250 µm

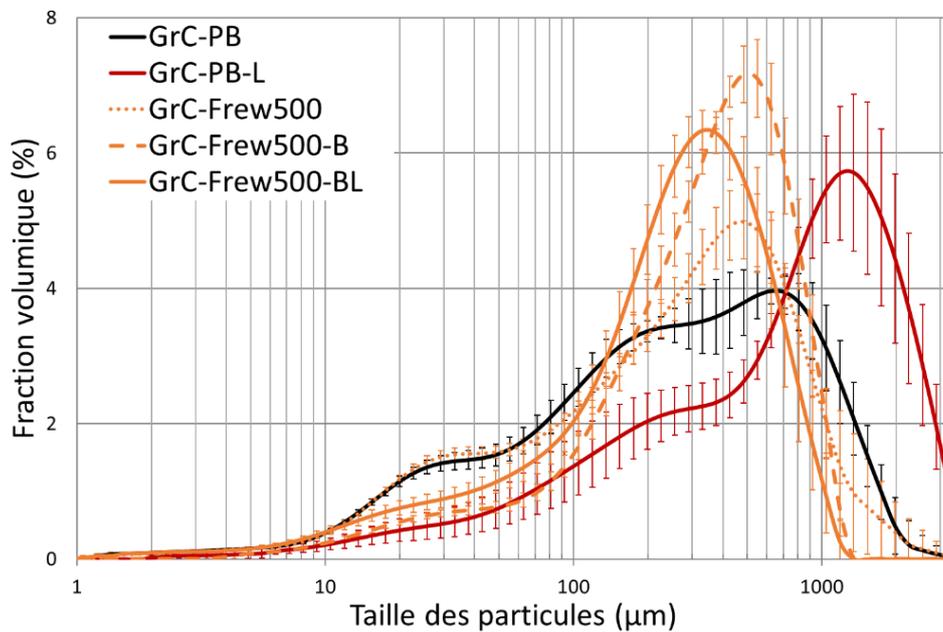


Figure III.19 : Distributions granulométriques après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm

Lors du tamisage/forçage au Frewitt, la taille de maille du tamis utilisé a un impact attendu sur les distributions granulométriques de la poudre. En effet, avec le tamis de 250  $\mu\text{m}$ , la proportion de fines augmente alors que le nombre d'agglomérats supérieurs à 500  $\mu\text{m}$  diminue. La population principale est d'environ 250  $\mu\text{m}$ . Avec le tamis de 500  $\mu\text{m}$ , la population d'agglomérats supérieurs à 800  $\mu\text{m}$  diminue mais la proportion de fines n'est pas significativement impactée. La population principale est d'environ 500  $\mu\text{m}$ . Compte tenu de la distribution granulométrique de la poudre broyée, le tamisage/forçage est moins important avec un tamis de 500  $\mu\text{m}$ , ce qui peut expliquer que la proportion de fines ne soit pas significativement augmentée. Par rapport à la poudre broyée, les distributions granulométriques sont plus étroites (diminution du span), ce qui est en accord avec l'élimination des agglomérats millimétriques. Ce résultat est d'autant plus marqué que la taille de maille est faible (GrC-Frew250).

Après brassage dans le mélangeur Turbula, la proportion de fines diminue, la taille moyenne des agglomérats augmente et l'étendue granulométrique devient plus étroite pour la poudre GrC-Frew250-B. Cette observation est cohérente avec l'agglomération des fines et la sphéroïdisation lors de cette étape. Par ailleurs, l'étape de lubrification permet une légère agglomération supplémentaire. Des observations similaires peuvent être faites sur le lot GrC-Frew500-BL mais il semblerait que dans ce cas, la lubrification n'entraîne pas de réagglomération supplémentaire.

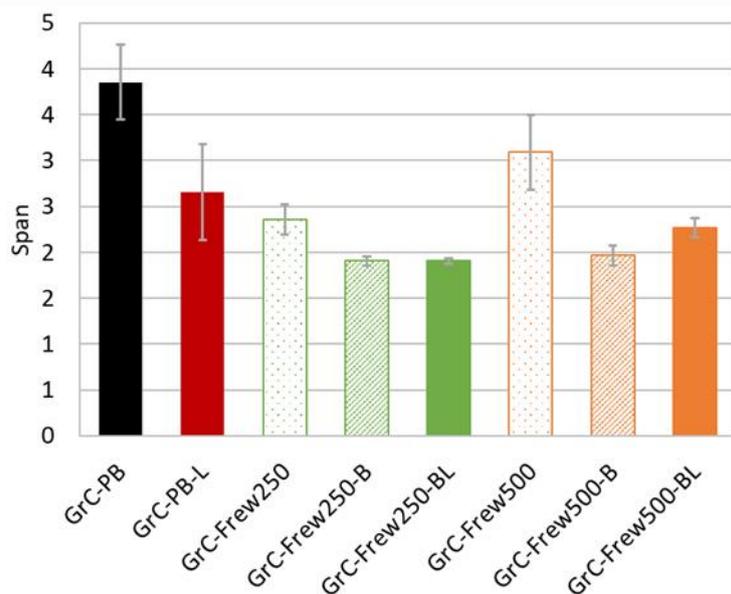


Figure III.20 : Valeurs du span des distributions granulométriques après la voie Frewitt

### 3. 1. 1. 2. Morphologie

Les fréquences cumulées en volume de l'élongation (Figure III.21 et Figure III.23) et de la circularité (Figure III.22 et Figure III.24) des différentes poudres sont étudiées. Les fréquences cumulées de la taille des agglomérats sont représentées en Annexe III.2(c) et (d). Les valeurs des SF<sub>10</sub>, SF<sub>50</sub> et SF<sub>90</sub> sont regroupées dans l'Annexe III.3 et l'Annexe III.4.

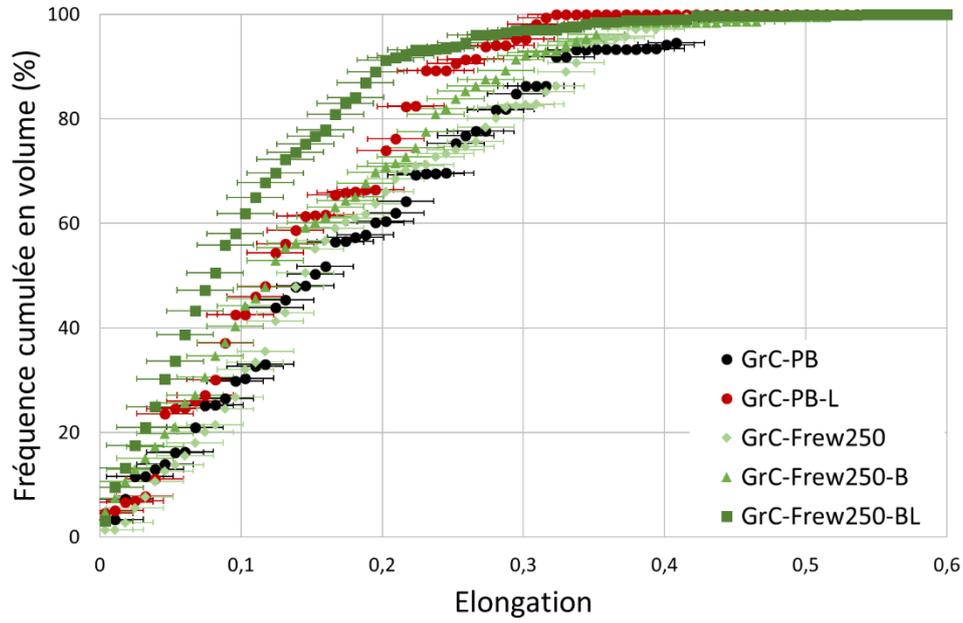


Figure III.21 : Élongation après la voie Frewitt avec un tamis de 250  $\mu\text{m}$

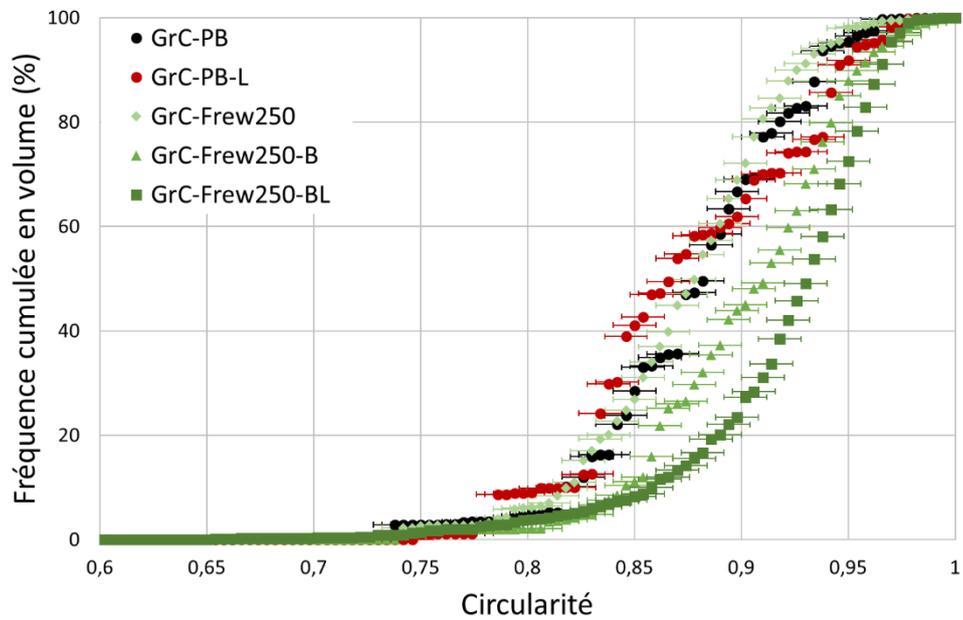


Figure III.22 : Circularité après la voie Frewitt avec un tamis de 250  $\mu\text{m}$

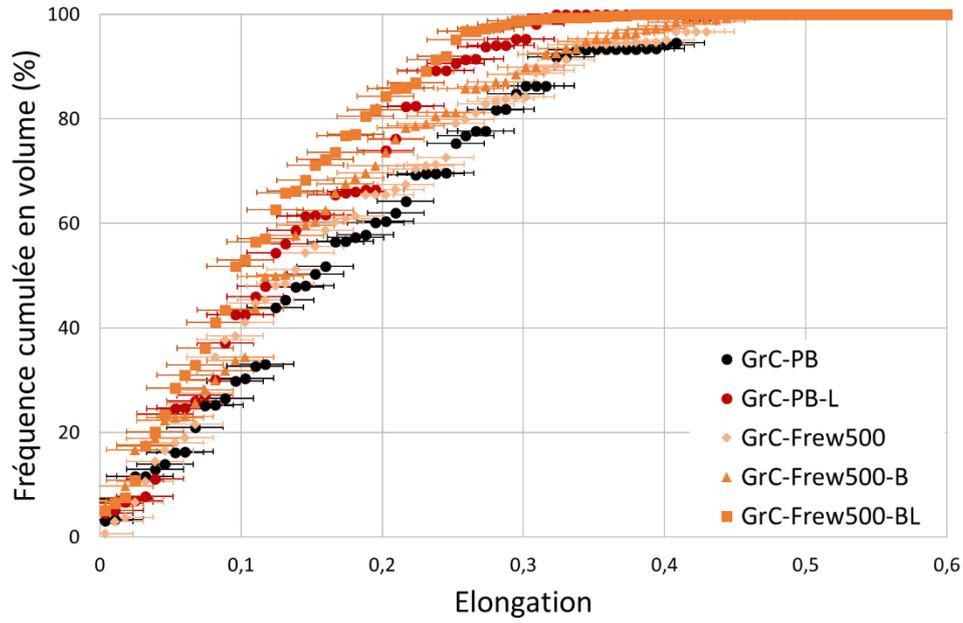


Figure III.23 : Élongation après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm

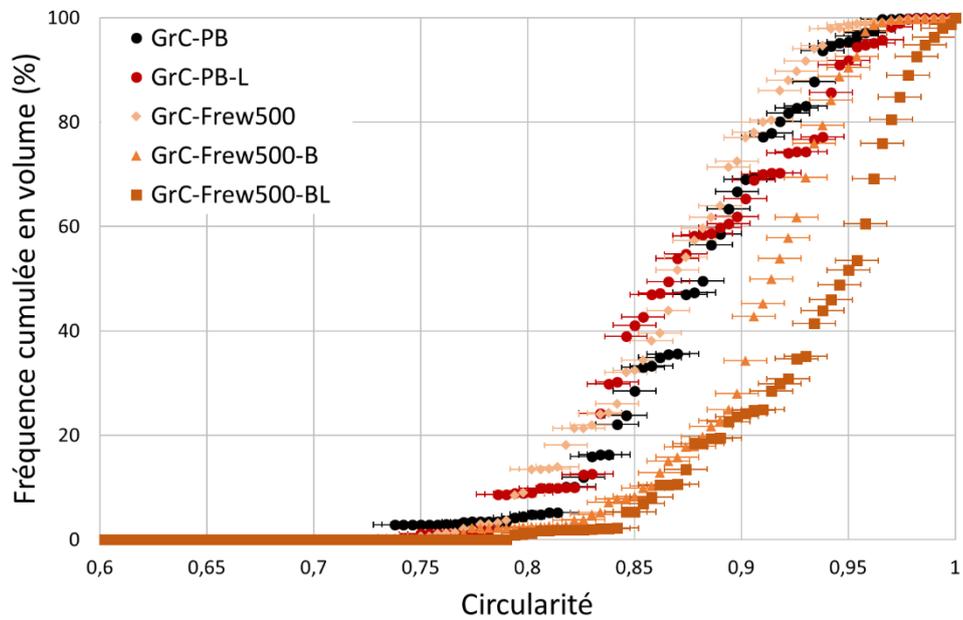


Figure III.24 : Circularité après la voie Frewitt avec un tamis de 500 µm

Lors du tamisage/forçage au Frewitt, l'élongation et la circularité ne sont pas modifiées significativement, quelle que soit la taille de maille du tamis utilisé.

L'étape de brassage permet de diminuer légèrement l'élongation et d'augmenter la circularité des agglomérats pour la poudre issue du tamis de 250  $\mu\text{m}$ . Ce résultat est cohérent avec la grande proportion de fines produite lors du tamisage/forçage et avec la ré-agglomération et la sphéroïdisation lors du brassage. En effet, ces deux phénomènes impactent la morphologie des agglomérats. Pour la poudre passée au tamis de 500  $\mu\text{m}$ , le brassage permet également d'améliorer l'angularité des agglomérats mais leur élongation n'est pas modifiée. En effet, pour ce lot peu de fines sont produites par le tamisage/forçage contrairement au tamis de 250  $\mu\text{m}$  et le phénomène d'agglomération est donc peu visible. Ainsi pour le tamis de 500  $\mu\text{m}$ , la morphologie est donc essentiellement modifiée via la sphéroïdisation des agglomérats (et pas par agglomération des fines).

La lubrification permet de diminuer l'élongation et d'augmenter la circularité quel que soit le tamis utilisé lors du tamisage/forçage. Cette observation est en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de cette étape. Ces variations sont plus marquées pour le lot GrC-Frew250-BL, pour les mêmes raisons que celles décrites précédemment. En effet, le taux de fines étant moins important avec le tamis de 500  $\mu\text{m}$  par rapport au tamis de 250  $\mu\text{m}$ , le phénomène de sphéroïdisation est prépondérant devant l'agglomération des fines.

### 3. 1. 1. 3. Surface spécifique

Le Tableau III.7 regroupe les valeurs de surface spécifique obtenues par BET pour les poudres non lubrifiées. Comme pour le mélangeur en V, la voie Frewitt ne modifie pas la surface spécifique des poudres. Quelle que soit la taille de maille de tamis utilisée, les énergies mises en jeu au sein du Frewitt et du Turbula ne sont pas suffisantes pour casser les agrégats ou les cristallites. La fragmentation qui se produit lors du tamisage est donc majoritairement une fragmentation des agglomérats, sans fragmentation des agrégats ou des cristallites.

Tableau III.7 : Valeurs de la surface spécifique après la voie Frewitt

	GrC-PB	GrC-Frew250	GrC-Frew250-B	GrC-Frew500	GrC-Frew500-B
Surface spécifique ( $\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ )	2,6 $\pm$ 0,2	2,3 $\pm$ 0,2	2,5 $\pm$ 0,2	2,3 $\pm$ 0,2	2,4 $\pm$ 0,2

## 3. 1. 2. Caractéristiques mécaniques des poudres

### 3. 1. 2. 1. Contrainte à la rupture

Les diamètres moyens des agglomérats dans la direction de l'écrasement ainsi que les constantes et les modules de Weibull des agglomérats sont reportés dans le Tableau III.8. Ces mesures ont été réalisées sur les poudres disponibles en quantité suffisante (poudre broyée initiale et poudres lubrifiées). Dans la gamme de taille d'agglomérats étudiés, ces résultats mettent en évidence une amélioration de la résistance à la rupture des agglomérats après la préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt, pour les deux mailles de tamis considérées. Ainsi, ces agglomérats pourraient être plus consolidés après l'opération de tamisage/forçage. Comme pour le mélangeur en V, le module de Weibull est faible ( $m < 20$ ) en raison d'une distribution hétérogène des défauts et d'une forte dispersion des valeurs de résistance à la rupture.

Tableau III.8 : Valeurs des constantes et modules de Weibull après la voie Frewitt

	GrC-PB (420 ± 40 µm)*	GrC-PB-L (430 ± 30 µm)*	GrC-Frew250-BL (420 ± 40 µm)*	GrC-Frew500-BL (440 ± 50 µm)*
<b>Constante de Weibull <math>\sigma_0</math> (kPa)</b>	139	209	268	320
<b>Module de Weibull m</b>	3,6	3,5	4,8	3,9

\* diamètre moyen des agglomérats dans la direction de l'écrasement

### 3. 1. 2. 2. Comportement à l'abrasion

L'évolution du taux d'abrasion est représentée sur la Figure III.25. Ces mesures ont été réalisées sur les poudres disponibles en quantité suffisante.

Comme évoqué précédemment, les poudres broyée et broyée-lubrifiée ont un taux d'abrasion d'environ 73% et sont donc sensibles à l'abrasion. Après la voie Frewitt, une importante diminution des taux d'abrasion est observée. Ceux-ci sont inférieurs à 10% quelle que soit la taille de maille de tamis utilisée. Ces résultats corroborent ceux issus des mesures de résistance à la rupture. Ainsi, il apparaît que le tamisage/forçage augmente la tenue mécanique des agglomérats, les rendant moins sensibles aux phénomènes d'abrasion.

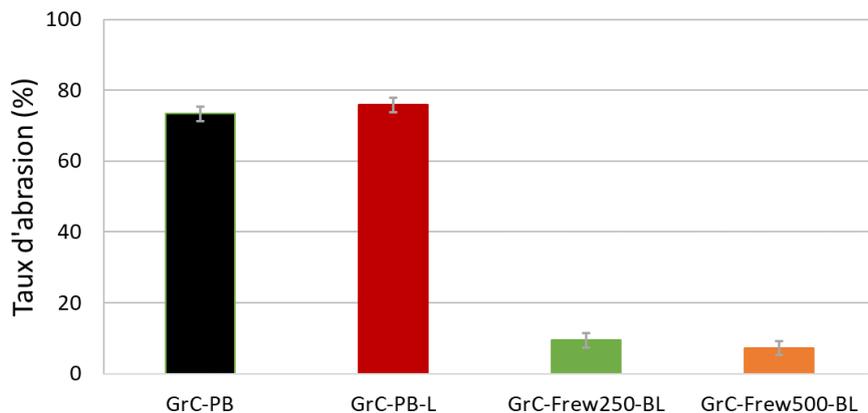


Figure III.25 : Valeurs du taux d'abrasion après la voie Frewitt

### 3. 1. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques après la voie Frewitt

Le Tableau III.9 regroupe les modifications des caractéristiques physiques et mécaniques des poudres lors des opérations de préparation du milieu granulaire Frewitt. Les conclusions principales sont les suivantes :

- impact de l'étape de destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage :
  - o quel que soit le tamis utilisé, l'étendue granulométrique est plus étroite et la population d'agglomérats de 250 µm et de 500 µm augmente respectivement. Des phénomènes de fragmentation et d'abrasion ont lieu lors du tamisage/forçage,

- néanmoins, le tamis de 500  $\mu\text{m}$  n'entraîne pas une augmentation de la proportion de fines,
- impact de l'étape de brassage :
  - quel que soit le tamis utilisé, l'étendue granulométrique est plus étroite, la population d'agglomérats de 250  $\mu\text{m}$  et de 500  $\mu\text{m}$  augmente respectivement et la circularité des agglomérats augmente. Des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation sont engendrés lors du brassage, bien que l'agglomération semble limitée pour le tamis de 500  $\mu\text{m}$ ,
  - cependant, l'élongation n'est pas modifiée pour le tamis de 500  $\mu\text{m}$  en raison de la proportion de fines moins importante pour ce lot,
- impact de l'étape de lubrification :
  - quel que soit le tamis utilisé, l'élongation des agglomérats diminue et leur circularité augmente,
  - des phénomènes d'agglomération sont mis en jeu uniquement avec le tamis de 250  $\mu\text{m}$ , en raison de la quantité de fines plus importante produite lors de l'étape de tamisage/forçage en comparaison avec le tamis de 500  $\mu\text{m}$ .

Enfin, l'étape de préparation de milieu granulaire la voie Frewitt améliore les caractéristiques mécaniques des agglomérats.

Tableau III.9 : Modification des caractéristiques physiques et mécaniques après la voie Frewitt

	Destruction des gros agglomérats		Brassage		Lubrification	
	GrC-Frew250	GrC-Frew500	GrC-Frew250-B	GrC-Frew500-B	GrC-Frew250-BL	GrC-Frew500-BL
Proportion de fines	↗	≈	↘	↘	≈	≈
Proportion de gros agglomérats	↘	↘	↗ population principale (250 µm)	↗ population principale (500 µm)	↗ population principale (250 µm)	↘ population principale (500 µm)
Largeur de l'étendue granulométrique	↘	↘	↘	↘	≈	≈
Élongation	≈	≈	↘	≈	↘	↘
Circularité	≈	≈	↗	↗	↗	↗
Contrainte à la rupture*	×	×	×	×	↗	↗
Taux d'abrasion	×	×	×	×	↘	↘
Phénomènes	Abrasion Fragmentation		Agglomération Sphéroïdisation		Agglomération avec le tamis de 250 µm Sphéroïdisation Amélioration des caractéristiques mécaniques	

\* dans la gamme de taille étudiée

↗ augmentation par rapport à l'étape précédente

↘ diminution par rapport à l'étape précédente

≈ peu de modification par rapport à l'étape précédente

× caractéristique non étudiée

### 3. 2. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES

Comme pour le mélangeur en V, il est à noter que les caractérisations effectuées à l'aide du rhéomètre FT4 sont enchainées sur un même échantillon selon la méthodologie présentée dans le chapitre II. 6. 2. 3. Les écarts relatifs associés aux mesures de perméabilité entre chaque test (Équation II.17) sont présentés dans l'Annexe III.5. Les écarts restent inférieurs à 10% pour les poudres finales après la voie Frewitt.

#### 3. 2. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique)

##### 3. 2. 1. 1. Test de cisaillement

Les fonctions d'écoulement déterminées à partir des essais de cisaillement sont présentées sur la Figure III.26. Les fonctions d'écoulement des poudres finales après la voie Frewitt correspondent à

des indices d'écoulement  $ff_c$  plus élevés (meilleure coulabilité) que ceux de la poudre broyée et broyée-lubrifiée. L'amélioration de la coulabilité (augmentation de  $ff_c$ ) est particulièrement marquée pour la taille de maille de tamis de 250  $\mu\text{m}$ . La cohésion et l'angle de frottement interne (Tableau III.10) sont également plus faibles pour toutes les contraintes normales de pré-consolidation appliquées. Ces observations sont cohérentes avec les phénomènes mis en jeu lors de la préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt : phénomènes de fragmentation et d'abrasion lors de l'étape de tamisage/forçage (distributions granulométriques plus étroites), phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation lors des étapes de brassage et de lubrification (diminution des fines, diminution de l'élongation et de l'angularité des agglomérats). En effet, ces modifications diminuent les forces de cohésion et le frottement entre les agglomérats et améliorent donc la coulabilité [Petit et al. 2017; Madian et al. 2020; Bodhmag 2006].

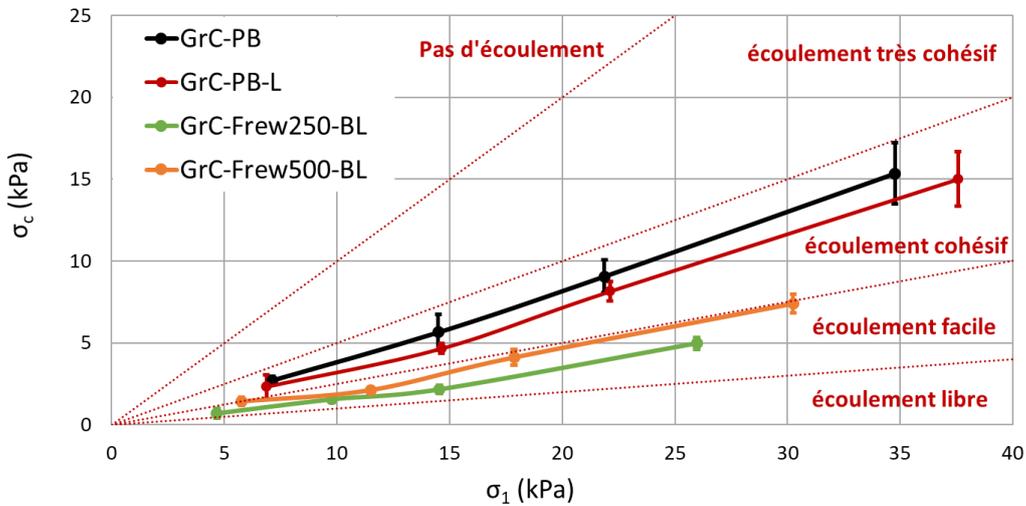


Figure III.26 : Valeurs de la fonction d'écoulement après la voie Frewitt

Tableau III.10 : Indice de coulabilité  $ff_c$ , cohésion et angle de frottement interne AIF après la voie Frewitt

	GrC-PB	GrC-PB-L	GrC-Frew250-BL	GrC-Frew500-BL
$ff_c$ à 3 kPa	2,6 ± 0,1	3,2 ± 1,1	5,6 ± 0,7	4,1 ± 0,7
$ff_c$ à 15 kPa	2,3 ± 0,2	2,5 ± 0,3	5,2 ± 0,4	4,1 ± 0,2
Cohésion à 3 kPa	0,6 ± 0,1	0,6 ± 0,3	0,2 ± 0,1	0,5 ± 0,1
Cohésion à 15 kPa	3,7 ± 0,5	3,5 ± 0,5	1,5 ± 0,1	2,0 ± 0,1
AIF à 3 kPa (°)	40,0 ± 2,4	35,0 ± 5,2	25,9 ± 2,4	28,0 ± 3,3
AIF à 15 kPa (°)	38,9 ± 1,3	40,2 ± 1,9	28,8 ± 1,0	34,4 ± 1,4

### 3. 2. 1. 2. Diamètre d'écoulement spontané

Le diamètre d'écoulement spontané est présenté en Figure III.27.

Le diamètre d'écoulement spontané est plus important après tamisage/forçage, la poudre s'écoule donc plus difficilement par rapport à la poudre broyée due aux phénomènes de fragmentation et d'abrasion (dégradation de la coulabilité). Après le brassage, le diamètre d'écoulement spontané

diminue, synonyme d'une mise en écoulement plus aisée. Enfin, cette amélioration se poursuit après lubrification pour le GrC-Frew250-BL, mais cette dernière étape semble ne pas avoir d'impact pour le GrC-Frew500-BL. Globalement, les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de ces étapes permettent d'améliorer la mise en écoulement des poudres.

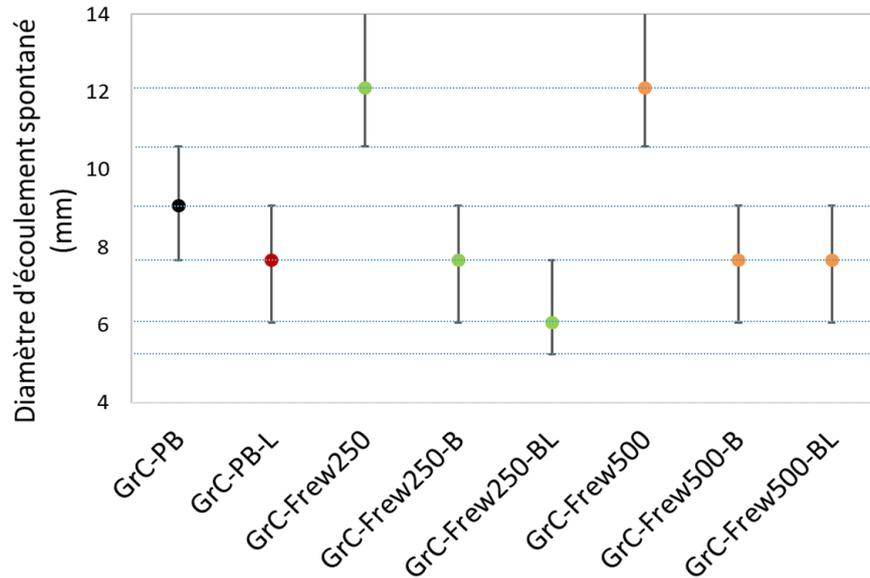


Figure III.27 : Valeurs du diamètre d'écoulement spontané après la voie Frewitt (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette)

### 3. 2. 2. Écoulement dynamique (test VFR)

Le Basic Flow Energy (BFE) et le Flow Index (FRI) sont déterminés à partir des mesures VFR (Figure III.28), à l'aide du rhéomètre FT4.

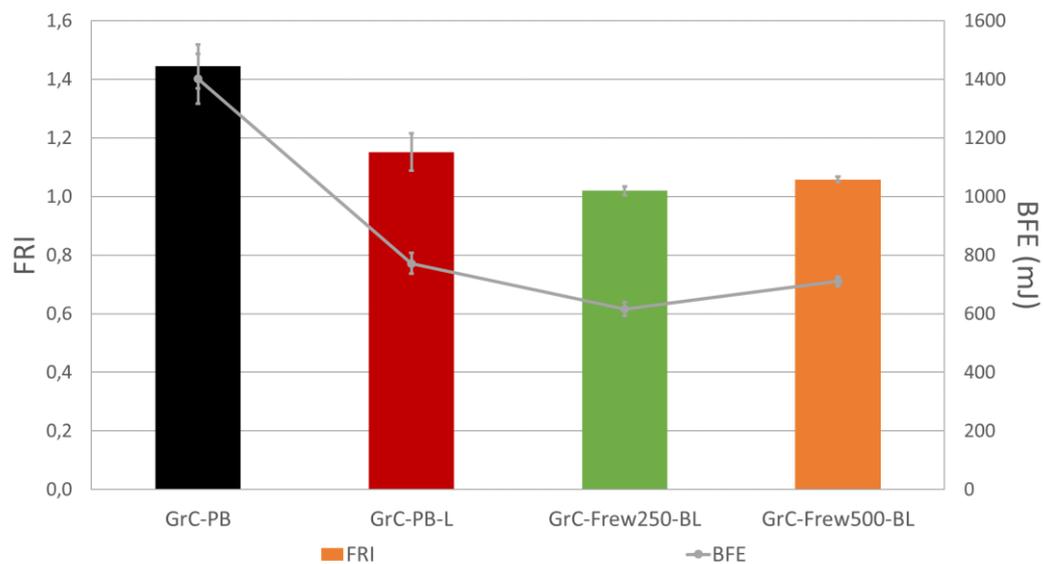


Figure III.28 : Valeurs du FRI et du BFE après la voie Frewitt

Après destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage au Frewitt, brassage et lubrification au Turbula, les valeurs de BFE et de FRI diminuent par rapport à celles de la poudre broyée. Cette variation peut s'expliquer par la présence d'agglomérats moins allongés et moins anguleux et par l'action du lubrifiant. Cela diminue en effet les forces de friction et de cohésion, ce qui réduit donc l'énergie nécessaire pour déplacer le lit de poudre (BFE). De même, après la voie Frewitt, le FRI est inférieur à celui de la poudre broyée et atteint une valeur proche de 1. Ceci est cohérent avec une poudre moins compressible et moins cohésive, pour laquelle les vitesses de rotation de la pale ont un impact négligeable. Ces résultats traduisent donc une amélioration de la coulabilité par la préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt.

### 3. 2. 3. Propriétés du lit de poudre

#### 3. 2. 3. 1. Perméabilité à 2 kPa

Les valeurs de perméabilité à 2 kPa sont représentées sur la Figure III.29. Par rapport à la poudre broyée, la perméabilité est plus importante pour la poudre GrC-Frew250-BL ce qui n'est pas le cas de celle de la poudre GrC-Frew500-BL. Cette observation est probablement due à la distribution granulométrique plus étroite et à l'allongement moindre des agglomérats issus du tamis de 250  $\mu\text{m}$  par rapport au tamis de 500  $\mu\text{m}$ . Ces deux propriétés facilitent en effet la circulation de l'air et permettent une meilleure perméabilité du lit de poudre.

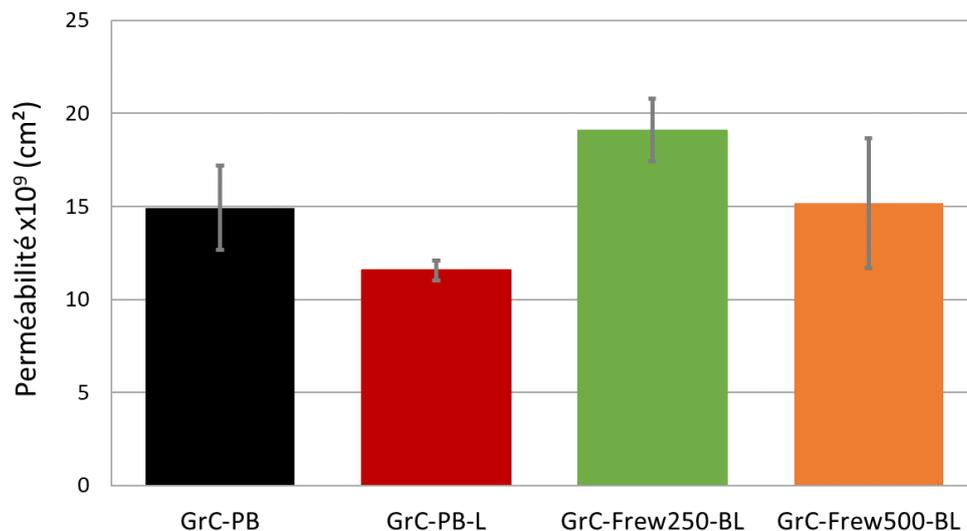


Figure III.29 : Valeurs de la perméabilité après la voie Frewitt

#### 3. 2. 3. 2. Arrangement d'un lit d'agglomérats (indice de Carr/rapport d'Hausner et compressibilité)

L'indice de Carr et le rapport de Hausner sont déterminés après chaque étape et sont présentés dans le Tableau III.11. Ces caractérisations permettent d'évaluer l'arrangement d'un lit d'agglomérats.

L'indice de Carr et le rapport de Hausner augmentent fortement après tamisage/forçage. Cette étape dégrade la coulabilité de la poudre pour les deux tailles de maille de tamis considérées. Cependant, cet impact est plus important avec le tamis de 250  $\mu\text{m}$  qu'avec le tamis de 500  $\mu\text{m}$ , en raison des

phénomènes de fragmentation et d'abrasion (augmentation de la quantité de fines) plus importants lors de l'utilisation du tamis de 250  $\mu\text{m}$ . Le brassage améliore la coulabilité de la poudre, quelle que soit la taille de maille du tamis utilisé, et la lubrification améliore la coulabilité pour le lot GrC-Frew250-BL alors qu'elle n'a pas d'impact significatif pour le lot GrC-Frew500-BL. Ces résultats sont en bon accord avec les caractéristiques physiques discutées dans la section précédente. En effet, les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de ces étapes (agglomérats de taille plus importantes, moins allongés et moins anguleux) permettent un arrangement initial plus compact du lit de poudre.

*Tableau III.11 : Valeurs des indices de Carr et rapports d'Hausner après la voie Frewitt*

<b>Échantillon</b>	<b>Indice de Carr</b>	<b>Rapport d'Hausner</b>
<b>GrC-PB</b>	20 $\pm$ 2	1,26 $\pm$ 0,03
<b>GrC-PB-L</b>	16 $\pm$ 3	1,19 $\pm$ 0,03
<b>GrC-Frew250</b>	43 $\pm$ 2	1,76 $\pm$ 0,05
<b>GrC-Frew250-B</b>	19 $\pm$ 2	1,23 $\pm$ 0,03
<b>GrC-Frew250-BL</b>	14 $\pm$ 2	1,17 $\pm$ 0,02
<b>GrC-Frew500</b>	27 $\pm$ 2	1,37 $\pm$ 0,03
<b>GrC-Frew500-B</b>	18 $\pm$ 2	1,22 $\pm$ 0,03
<b>GrC-Frew500-BL</b>	18 $\pm$ 2	1,23 $\pm$ 0,03

Les valeurs de compressibilité à 15 kPa sont représentées sur la Figure III.30. Avant compression, les densités en vrac des poudres sont du même ordre de grandeur (Annexe III.6).

Par rapport à la poudre broyée, la compressibilité diminue après la voie Frewitt quelle que soit la taille de maille de tamis utilisée. Cette modification est probablement liée à la diminution de l'élongation et de l'angularité des agglomérats permettant de diminuer les forces frictionnelles. L'arrangement initial du lit de poudre est donc plus compact, ce qui entraîne une diminution de la compressibilité. Ces résultats sont en accord avec les valeurs de l'indice de Carr. Cependant, la compressibilité de la poudre GrC-Frew500-BL semble être plus faible que celle de la poudre GrC-Frew250-BL. Ceci pourrait être lié à une résistance mécanique des agglomérats plus importante avec un tamis de 500  $\mu\text{m}$ , qui seraient donc moins modifiés pendant ce test.

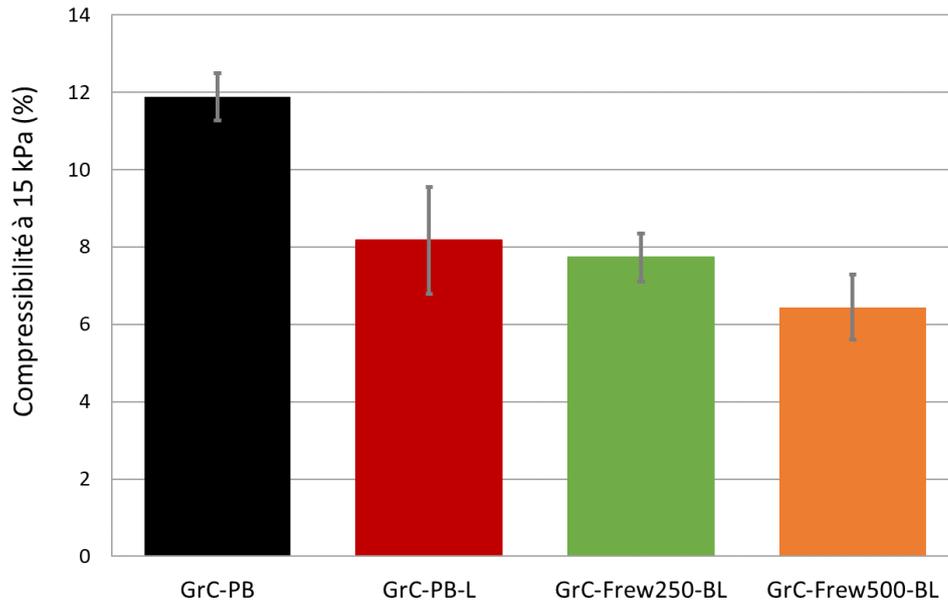


Figure III.30 : Valeurs de la compressibilité après la voie Frewitt

### 3. 2. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques après la voie Frewitt

Le Tableau III.12 regroupe les modifications des propriétés rhéologiques des poudres lors des opérations de préparation du milieu granulaire de la voie Frewitt.

Les phénomènes observés lors de l'analyse des caractéristiques physiques et mécaniques permettent d'expliquer l'évolution des propriétés d'écoulement de la poudre. En effet, la fragmentation et l'abrasion des agglomérats, mises en jeu lors du tamisage/forçage, dégradent la coulabilité alors que les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation, mis en jeu lors des étapes de brassage et de lubrification, l'améliorent. Cette amélioration est plus marquée avec un tamis de 250  $\mu\text{m}$  lors de l'étape de lubrification.

Tableau III.12 : Modification des propriétés rhéologiques après la voie Frewitt

Phénomènes	Destruction des gros agglomérats		Brassage		Lubrification	
	GrC-Frew250	GrC-Frew500	GrC-Frew250-B	GrC-Frew500-B	GrC-Frew250-BL	GrC-Frew500-BL
	Abrasion Fragmentation		Agglomération Sphéroïdisation		Agglomération avec le tamis de 250 µm Sphéroïdisation Amélioration des caractéristiques mécaniques	
$ff_c$	×	×	×	×	↘	↘
Cohésion	×	×	×	×	↘	↘
Angle de frottement interne	×	×	×	×	↘	↘
Diamètre d'écoulement spontané	↗	↗	↘	↘	↘	≈
BFE/FRI	×	×	×	×	↘	↘
Perméabilité	×	×	×	×	↗	≈
Indice de Carr/rapport d'Hausner	↗	↗	↘	↘	↘	≈
Compressibilité	×	×	×	×	↘	↘

↗ augmentation par rapport à l'étape précédente

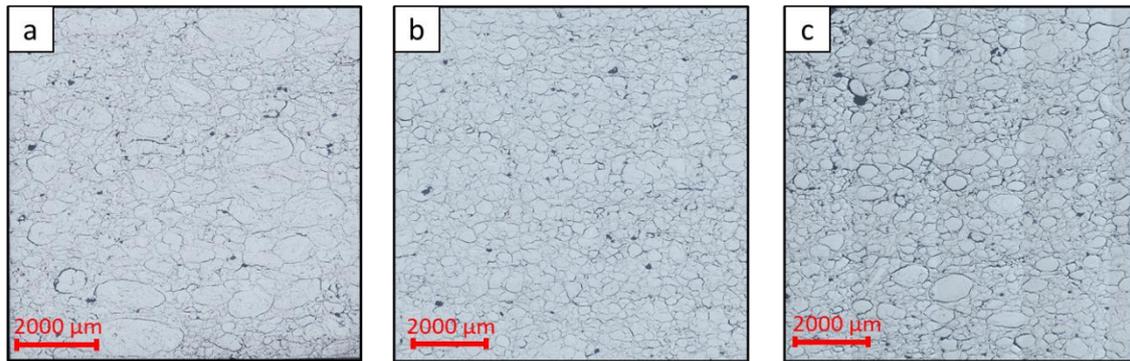
↘ diminution par rapport à l'étape précédente

≈ peu de modification par rapport à l'étape précédente

× propriété non étudiée

### 3. 3. FABRICATION DES PASTILLES

Des pastilles cylindriques ont été réalisées pour les poudres lubrifiées (GrC-PB-L, GrC-Frew250-BL et GrC-Frew500-BL). La Figure III.31 présente les observations céramographiques par microscopie optique des coupes transverses de ces pastilles. Les valeurs de densité apparente, déterminées par pesée hydrostatique de 3 à 5 pastilles après immersion dans du bromobenzène sur trois pastilles pour chaque lot, sont reportées sur la Figure III.32, de même que les valeurs correspondantes de porosité ouverte et fermée (valeurs correspondantes en Annexe III.7).



*Figure III.31 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées (a) GrC-PB-L, (b) GrC-Frew250-BL et (c) GrC-Frew500-BL (microscopie optique)*

Comme précisé dans la section 0, les pastilles issues de la poudre broyée-lubrifiée sont composées de nombreux agglomérats denses qui induisent de la porosité. Leur densité apparente est égale à 91,1% m<sub>th</sub>.

Après préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt, les agglomérats consolidés présents dans la microstructure sont plus petits que ceux de la poudre broyée et dépendent de la taille de maille de tamis utilisé. En effet, ils sont de plus petite taille pour le lot GrC-Frew250-BL que pour le lot GrC-Frew500-BL, ce qui semble cohérent avec les tailles de maille utilisées. De même que pour le mélangeur en V, la voie Frewitt ne permet pas de modifier le type de microstructure obtenue après frittage. La poudre broyée initiale semble contenir des agglomérats consolidés avant frittage, ce qui est probablement lié aux conditions de broyage utilisées pour produire la poudre.

Au sein de la poudre, la structure des agglomérats consolidés obtenus après broyage ne semble donc pas sensiblement modifiée par cette voie de préparation du milieu granulaire. Après la voie Frewitt, la densité hydrostatique des pastilles est plus faible qu'après broyage en raison de l'augmentation de la porosité ouverte, probablement en raison d'une diminution de la taille moyenne des agglomérats. Comme pour le mélangeur en V (section 0), une quantification de la structure des agglomérats pourrait permettre de mieux comprendre la modification des agglomérats lors du pressage ainsi que leur frittabilité. De plus, différentes caractéristiques de la poudre impactent la densité des pastilles, telles que la distribution granulométrique et la morphologie des agglomérats [Ndiaye 2006]. Moins la poudre est agrégée, plus les compacts obtenus sont denses [Liu et al. 1999]. De plus, la densification est impactée par la largeur de la distribution granulométrique, ainsi que la proportion de fines ou ultrafines contenues dans la poudre.

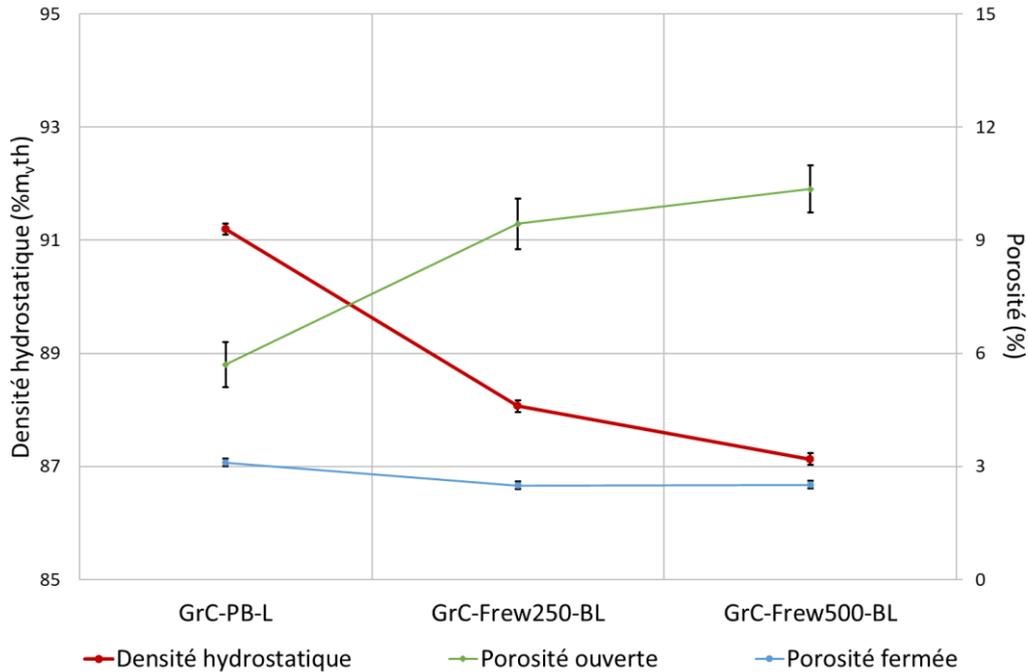


Figure III.32 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités des pastilles après la voie Frewitt

## 4. SYNTHÈSE

Le Tableau III.13 regroupe les différentes caractéristiques physiques, mécaniques et les propriétés rhéologiques étudiées pour les poudres broyée (GrC-PB) et broyée-lubrifiée (GrC-PB-L). Les poudres lubrifiées issues des différentes méthodes de préparation du milieu granulaire étudiées sont également présentées (GrC-MeV2000-BL, GrC-MeV4000-BL, GrC-Frew250-BL et GrC-Frew500-BL). Les différentes poudres sont comparées à la poudre broyée initiale (GrC-PB).

Les caractéristiques physiques et mécaniques sont classées, de gauche à droite dans le tableau, en respectant une amélioration de la coulabilité :

- diminution des fines ( $d_{10}$  croissant),
- augmentation de la taille moyenne des agglomérats ( $d_{50}$  croissant),
- étendue granulométrique plus étroite (span décroissant),
- agglomérats moins allongés ( $SF_{50}$  de l'élongation décroissante),
- agglomérats moins anguleux ( $SF_{50}$  de la circularité croissante),
- amélioration de la solidité des agglomérats (constante de Weibull croissante et taux d'abrasion décroissant).

Les propriétés rhéologiques des poudres sont également classées par amélioration de la coulabilité. Les densités hydrostatiques des pastilles sont toutes faibles et inférieures à la spécification généralement requise pour du MOX (densité > 94% m<sub>v</sub> th), en raison des conditions de broyage utilisées. Elles ne sont donc pas classées.

Tableau III.13 : Récapitulatif des différentes caractéristiques et propriétés étudiées



Caract. physiques	Granulométrie	d <sub>10</sub>	PB / Frew250-BL		MeV2000-BL / MeV4000-BL / Frew500-BL		PB-L	
		d <sub>50</sub>	Frew250-BL	PB / Frew500-BL		MeV4000-BL	MeV2000-BL	PB-L
		span	MeV4000-BL	MeV2000-BL	PB	PB-L	Frew500-BL	Frew250-BL
	Élongation	SF <sub>50</sub>	PB	PB-L	Frew500-BL	Frew250-BL	MeV2000-BL	MeV4000-BL
	Circularité	SF <sub>50</sub>	PB / PB-L		MeV2000-BL/MeV4000-BL		Frew250-BL	Frew500-BL
Caract. méca.	Constante de Weibull		PB / MeV2000-BL / MeV4000-BL		PB-L		Frew250-BL	Frew500-BL
	Taux d'abrasion		MeV4000-BL	PB-L	PB	MeV2000-BL	Frew250-BL	Frew500-BL
Propriétés rhéologiques	Mise en écoulement	Indice de coulabilité ffc	Contrainte faible	PB / PB-L / MeV2000-BL / MeV4000-BL			Frew500-BL	Frew250-BL
			Contrainte élevée	MeV4000-BL	PB / PB-L / MeV2000-BL		Frew500-BL	Frew250-BL
		Diamètre d'écoulement spontané	PB	PB-L / Frew500-BL		MeV2000-BL / MeV4000-BL / Frew250-BL		
	Écoulement dynamique	BFE	PB	PB-L	Frew500-BL	MeV4000-BL	Frew250-BL	MeV2000-BL
		FRI	PB	MeV2000-BL	MeV4000-BL	PB-L	Frew500-BL	Frew250-BL
	Propriétés du lit de poudre	Perméabilité	PB-L / MeV2000-BL		PB / MeV4000-BL / Frew500-BL		Frew250-BL	
		Indice de Carr	MeV4000-BL	PB / MeV2000-BL / Frew500-BL			PB-L / Frew250-BL	
		Rapport d'Hausner	MeV4000-BL	PB / MeV2000-BL / Frew500-BL			PB-L / Frew250-BL	
		Compressibilité	PB	MeV4000-BL	PB-L / MeV2000-BL		Frew250-BL	Frew500-BL
	Pastilles	Densité hydrostatique	PB-L / MeV2000-BL / MeV4000-BL / Frew250-BL / Frew500-BL					

L'ensemble des résultats reportés dans le Tableau III.13 met en évidence que la méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt semble plus pertinente que le mélangeur en V pour améliorer les caractéristiques mécaniques et les propriétés rhéologiques de la poudre broyée initiale. Plus particulièrement, la poudre GrC-Frew250-BL présente globalement les meilleures propriétés d'écoulement. Cette poudre se distingue essentiellement par une étendue granulométrique resserrée, des paramètres de circularité et des caractéristiques mécaniques favorables à une bonne coulabilité. Comparativement aux autres poudres, la taille des agglomérats et la distribution d'élongation de ses agglomérats ne sont pas classées parmi les meilleures. La poudre GrC-Frew500-BL présente également de bonnes caractéristiques mais ses propriétés rhéologiques sont légèrement moins bonnes que celles du lot GrC-Frew250-BL.

## 5. BILAN

L'objectif était de comparer deux méthodes de préparation du milieu granulaire en vue d'améliorer la coulabilité d'une poudre broyée. Les caractéristiques physiques, mécaniques et rhéologiques ont été étudiées après chaque étape afin de déterminer la méthode la plus apte à améliorer les propriétés de la poudre. Les principales conclusions sont les suivantes :

- le mélangeur en V entraîne la formation d'agglomérats millimétriques et réduit la proportion de fines et l'étendue granulométrique est plus large comparée à la poudre broyée. Les agglomérats sont moins allongés et moins anguleux. La coulabilité à l'état dynamique et la compressibilité sont améliorées. La vitesse de la turbine a un impact négligeable sur les

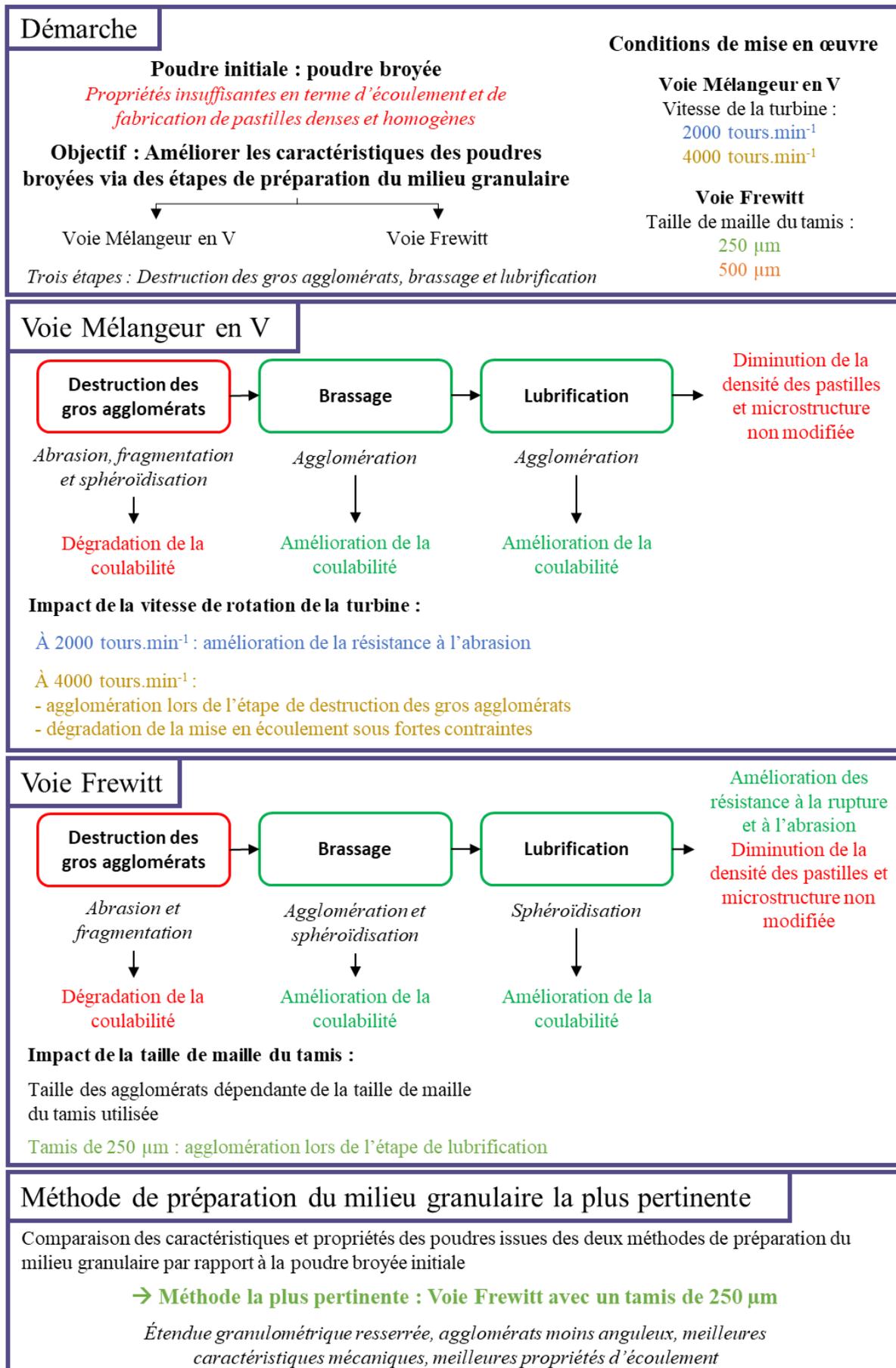
caractéristiques physiques et la coulabilité dans le domaine étudié. En revanche, concernant les caractéristiques mécaniques, les agglomérats obtenus avec une vitesse de turbine de 4000 tours.min<sup>-1</sup> sont plus fragiles,

- la voie Frewitt modifie sensiblement les caractéristiques de la poudre. Les distributions granulométriques sont plus étroites et les principales populations se situent autour de la taille de maille de tamis utilisée au Frewitt. Après toutes les étapes, les agglomérats sont moins allongés et moins anguleux. Ils présentent une meilleure résistance mécanique et sont moins cohésifs, ce qui signifie que la coulabilité de la poudre est améliorée. La taille initiale des mailles du tamis a un impact notable sur la distribution granulométrique et la morphologie des agglomérats.

Ces résultats montrent que la préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt avec un tamis de 250 µm permet une amélioration notable de la coulabilité de la poudre broyée. Ces conditions de méthode de préparation du milieu granulaire correspondent donc au meilleur compromis testé.

Cependant, les pastilles obtenues avec ces différentes poudres présentent des densités inférieures aux spécifications généralement requises pour du MOX et des porosités importantes. Les impuretés présentes dans le mélange broyé ainsi que les conditions de broyage utilisées peuvent justifier ce comportement au frittage. Un nouveau lot de poudre broyée a donc été réalisé (lot FaC). La même étape au Frewitt avec une taille de maille de 250 µm, suivie des étapes de brassage et lubrification à l'aide du Turbula ont été effectuées. Les poudres obtenues à l'issue de ces différentes étapes ont été caractérisées de manière plus complète et sont présentées dans le chapitre suivant.

## Fiche résumé du chapitre III



**CHAPITRE IV : ÉTUDE DE DEUX LOTS DE  
POUDRE BROYÉE ET DU LIEN ENTRE  
CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET  
PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT**



# CHAPITRE IV : ÉTUDE DE DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE ET DU LIEN ENTRE CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT

---

*Ce chapitre a un double objectif. Le premier est d'étudier l'impact de la voie de préparation du milieu granulaire Frewitt sur les caractéristiques physiques, mécaniques et les propriétés rhéologiques des poudres à partir de deux lots de poudre broyée. Le second objectif de ce chapitre est de faire le lien entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés rhéologiques.*

<b>1. IMPACT DE LA VOIE FREWITT SUR DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE.....</b>	<b>134</b>
1. 1. DÉMARCHE ET PRÉSENTATION DES DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE .....	134
1. 2. IMPACT DE LA VOIE FREWITT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES .....	136
1. 3. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES .....	147
1. 4. FABRICATION DES PASTILLES .....	156
1. 5. CONCLUSION.....	159
<b>2. LIEN ENTRE LES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET LEURS PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT. 160</b>	
2. 1. DÉFINITIONS ET NOTATIONS .....	160
2. 2. DÉMARCHE .....	162
2. 3. ANALYSE PAR RÉGRESSION LINÉAIRE MULTIPLE .....	163
2. 4. CONCLUSION.....	172
<b>3. BILAN .....</b>	<b>173</b>

# 1. IMPACT DE LA VOIE FREWITT SUR DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE

## 1. 1. DÉMARCHE ET PRÉSENTATION DES DEUX LOTS DE POUDRE BROYÉE

Dans le chapitre 3, il a été montré que la voie Frewitt avec une maille de 250  $\mu\text{m}$  correspondait à la préparation du milieu granulaire permettant d'obtenir les meilleures propriétés d'écoulement pour la poudre GrC. Cette méthode de préparation du milieu granulaire a donc été appliquée à une seconde poudre broyée (lot FaC). L'objectif est ici de comparer l'impact de cette voie sur deux lots différents de poudre broyée (Figure IV.1). Il s'agit d'étudier l'évolution de la poudre au cours de chaque étape intermédiaire, notamment lors des étapes de destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage et de brassage, via notamment, la détermination de caractéristiques physiques, mécaniques ou de mesures de propriétés rhéologiques à l'aide du rhéomètre FT4. Par rapport au lot GrC, des caractérisations supplémentaires ont été effectuées sur le lot FaC : observations au MEB de la structure des agglomérats, porosimétrie à mercure et test de cisaillement poudre-paroi.

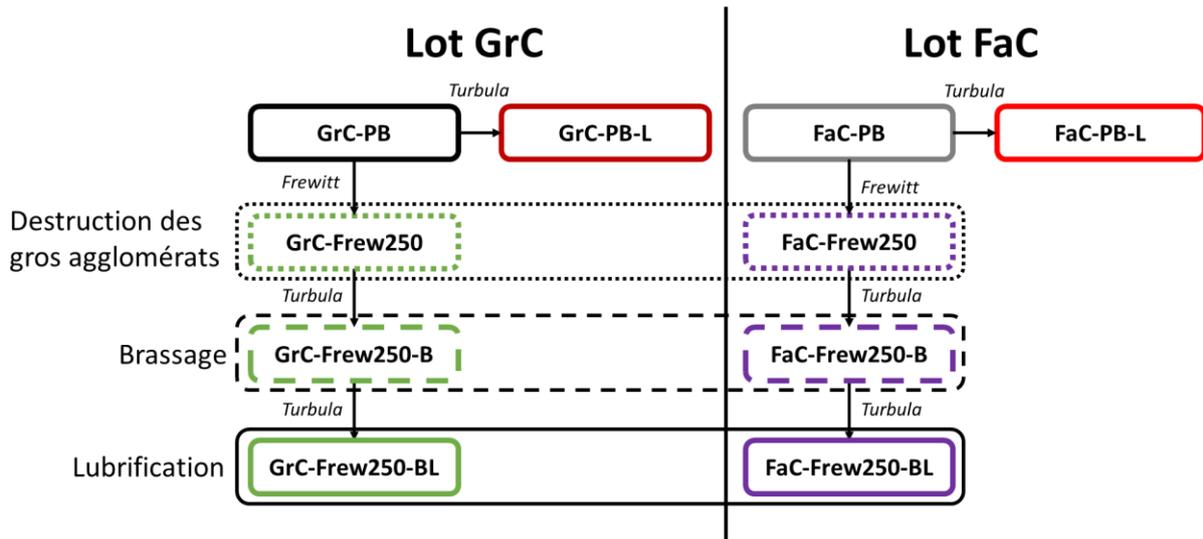


Figure IV.1 : Application de la voie Frewitt aux lots GrC et FaC

Les deux lots de poudre broyée ont été obtenus à partir d'un broyage dans des broyeurs à boulets de tailles différentes : 10 L pour le lot GrC et 2,1 L pour le lot FaC (Chapitre 2. 2. 2). Ce changement d'échelle peut induire des différences de caractéristiques sur les poudres obtenues, de même que l'utilisation de deux lots de chamotte distincts. Il est également à noter que la poudre du lot GrC contient des impuretés carbonées initialement présentes dans la chamotte utilisée pour ce lot.

La Figure IV.2 représente les distributions granulométriques des poudres broyées pour les deux lots (GrC et FaC) et le Tableau IV.1 (section 1. 2. 1. 1) regroupe les valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et Span.

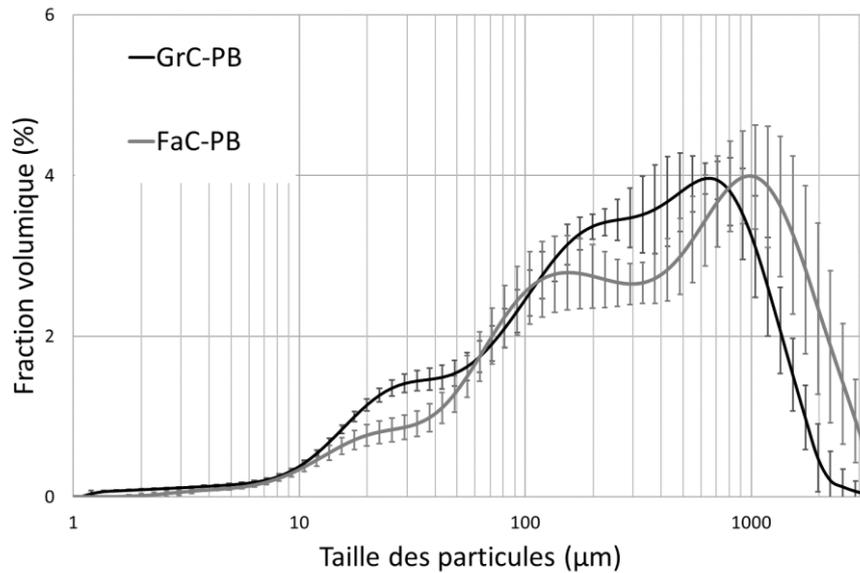


Figure IV.2 : Distributions granulométriques des poudres broyées des lots GrC et FaC

L'allure globale des distributions granulométriques de ces deux poudres broyées est proche. En effet, leurs distributions granulométriques contiennent toutes deux des agglomérats millimétriques et leurs étendues granulométriques sont proches (valeurs de Span similaires dans le Tableau IV.1). Cependant, la poudre broyée du lot FaC contient moins de fines ( $d_{10}$  plus élevé) et semble contenir une proportion d'agglomérats millimétriques plus importante (taille limite du granulomètre laser).

Des différences plus marquées sont observées pour la morphologie des deux poudres broyées (Figure IV.3). En effet, l'élongation semble plus élevée pour le lot FaC, ce qui correspond à des agglomérats plus allongés. Cependant, il a été vu précédemment que ces poudres contenaient des agglomérats millimétriques. Ainsi, la répartition en volume donne plus de poids à ces agglomérats et les valeurs d'élongation dépendent donc fortement de ces derniers. Par ailleurs, la circularité du lot FaC est significativement plus faible que celle du lot GrC. Les agglomérats sont donc plus anguleux pour le lot FaC. Les conditions de broyage appliquées au lot GrC semblent donc conduire à des agglomérats moins allongés et moins anguleux par rapport à ceux du lot FaC.

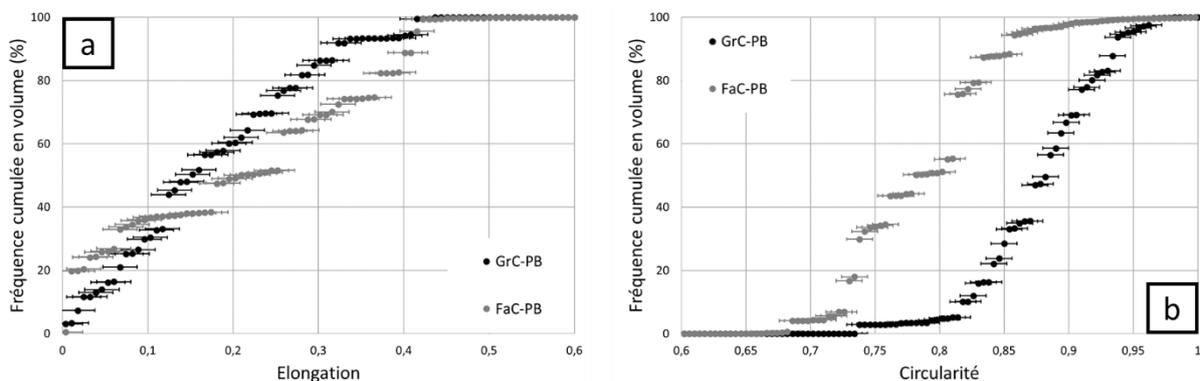


Figure IV.3 : Élongation (a) et circularité (b) des poudres broyées des lots GrC et FaC

Les conditions de broyage impactent également les caractéristiques mécaniques des agglomérats, comme discuté dans la section 1. 2. 2. Les agglomérats de la poudre broyée du lot FaC présentent des résistances à l'écrasement et à l'abrasion plus élevées que la poudre broyée du lot GrC.

En conclusion, les deux poudres broyées présentent certaines différences : la poudre broyée du lot FaC contient moins de fines et une proportion d'agglomérats millimétriques plus importantes, les agglomérats sont plus allongés et plus anguleux et présentent de meilleures caractéristiques mécaniques que pour le lot GrC.

## 1. 2. IMPACT DE LA VOIE FREWITT SUR LES CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES ET MÉCANIQUES DES POUDRES

### 1. 2. 1. Impact sur les caractéristiques physiques des poudres

#### 1. 2. 1. 1. Distribution granulométrique

Les distributions granulométriques des différentes poudres issues des deux lots (GrC et FaC) sont présentées en Figure IV.4 et Figure IV.5. Les valeurs du Span sont résumées en Figure IV.6 et le Tableau IV.1 regroupe les valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et Span. La comparaison des distributions granulométriques des deux lots après chaque étape intermédiaire est présentée en Annexe IV.1.

Comme discuté en section 1. 1, la poudre broyée du lot FaC contient moins de fines et une proportion d'agglomérats millimétriques plus importante. Après lubrification, la distribution de la poudre FaC broyée évolue peu (différences entre les distributions granulométriques comprises dans les barres d'erreur). En revanche, pour la poudre GrC-PB-L, une agglomération (en particulier des fines) conduit à la présence d'agglomérats de taille plus importante et donc à une distribution granulométrique plus étroite (diminution du Span, Tableau IV.1). À l'issue de cette étape, les distributions granulométriques des deux poudres lubrifiées sont proches (Annexe IV.1 (a)).

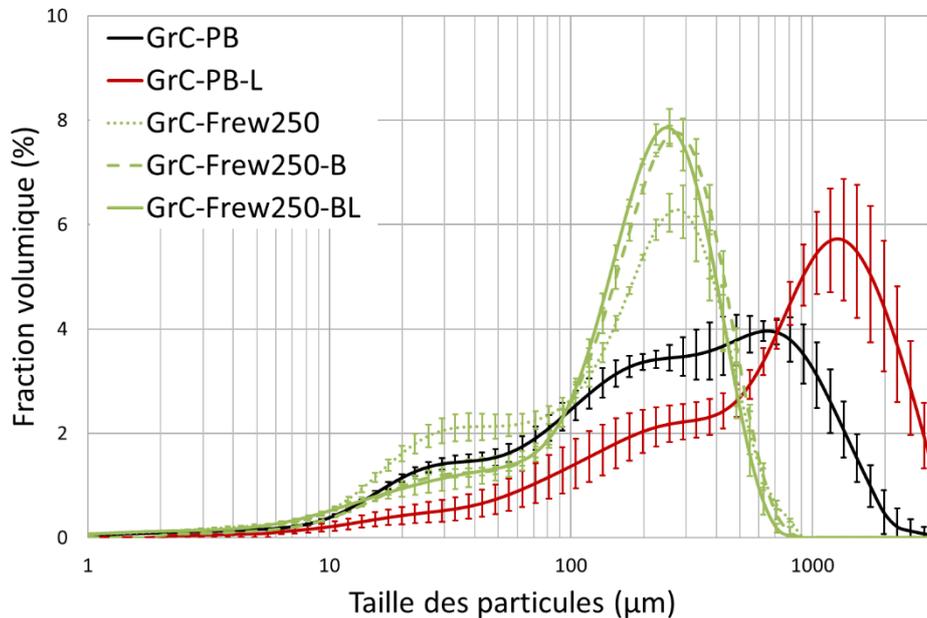


Figure IV.4 : Distributions granulométriques des poudres issues du lot GrC

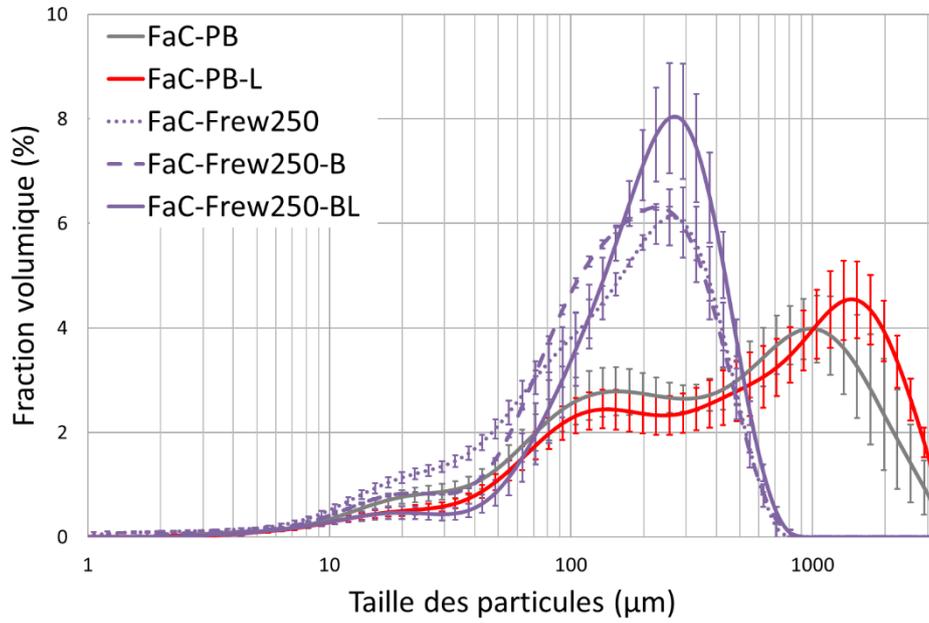


Figure IV.5 : Distributions granulométriques des poudres issues du lot FaC

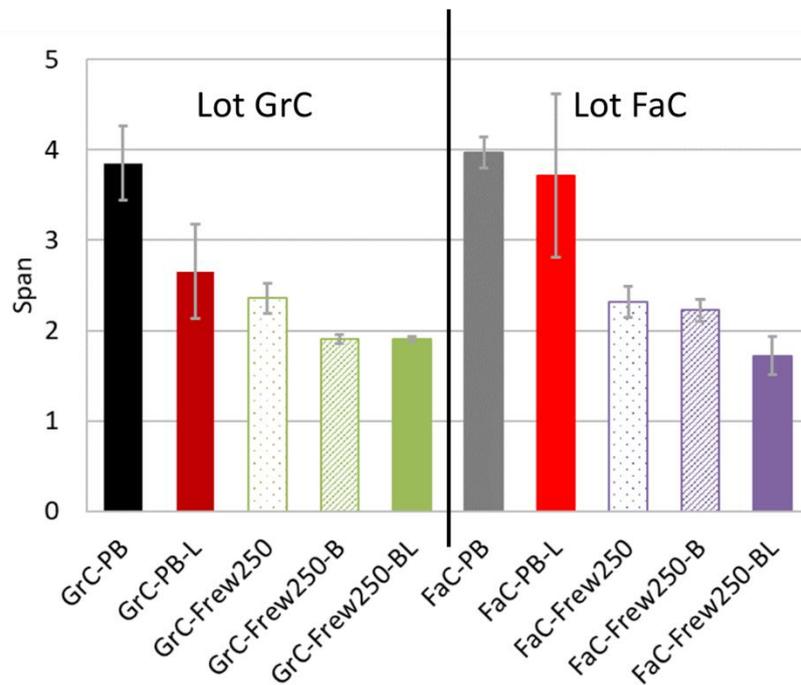


Figure IV.6 : Valeurs du Span pour les poudres issues des lots GrC et FaC

Tableau IV.1 : Valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et du Span pour les échantillons des 2 lots de poudre

Lot	Échantillon	$d_{10}$ (µm)	$d_{50}$ (µm)	$d_{90}$ (µm)	$d_{3,2}$ (µm)	Span
	<b>GrC-PB</b>	28 ± 2	259 ± 41	1021 ± 143	61 ± 6	3,9 ± 0,4
	<b>GrC-PB-L</b>	89 ± 50	768 ± 223	2050 ± 195	163 ± 89	2,7 ± 0,5
<b>GrC</b>	<b>GrC-Frew250</b>	22 ± 1	168 ± 19	416 ± 21	44 ± 4	2,4 ± 0,2
	<b>GrC-Frew250-B</b>	33 ± 2	207 ± 10	428 ± 10	74 ± 3	1,9 ± 0,1
	<b>GrC-Frew250-BL</b>	27 ± 1	194 ± 7	396 ± 18	47 ± 1	1,9 ± 0,1
	<b>FaC-PB</b>	43 ± 4	382 ± 43	1557 ± 134	93 ± 7	4,0 ± 0,2
	<b>FaC-PB-L</b>	61 ± 9	548 ± 156	2007 ± 96	125 ± 24	3,7 ± 0,9
<b>FaC</b>	<b>FaC-Frew250</b>	26 ± 3	158 ± 19	391 ± 21	50 ± 9	2,3 ± 0,2
	<b>FaC-Frew250-B</b>	40 ± 2	165 ± 4	407 ± 30	72 ± 4	2,2 ± 0,1
	<b>FaC-Frew250-BL</b>	68 ± 15	212 ± 21	430 ± 10	104 ± 20	1,7 ± 0,2

Quelle que soit la poudre broyée initiale (GrC-PB ou FaC-PB), lors de la destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage à l'aide du Frewitt, la proportion de fines augmente alors que le nombre de particules supérieures à 500 µm diminue. Ceci est dû aux phénomènes de fragmentation et d'abrasion mis en jeu lors de cette étape. Dans les deux cas, la population principale est d'environ 250 µm et les distributions granulométriques sont plus étroites (diminution du Span), en accord avec la diminution de la quantité des agglomérats millimétriques. Il est donc intéressant de noter qu'après tamisage/forçage à l'aide du Frewitt, les distributions granulométriques obtenues sont proches, alors que celles des poudres broyées initiales sont relativement différentes (Annexe IV.1 (b)). Néanmoins, de même que les lots initiaux, le lot FaC présente toujours moins de fines (autour de 30 µm) que le lot GrC après tamisage/forçage et possède une proportion plus importante d'agglomérats autour de 100 µm.

Après brassage dans le mélangeur Turbula, la proportion de fines diminue, en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. En comparaison à la poudre GrC-Frew250-B, la population d'agglomérats autour de 30 µm est plus faible pour la poudre FaC-Frew250-B (Annexe IV.1 (c)). Cependant, avec le lot FaC, l'agglomération entraîne une augmentation des agglomérats d'environ 100 µm alors qu'avec le lot GrC, la population des agglomérats de 250 µm augmente. L'étendue granulométrique n'est pas significativement modifiée pour la poudre FaC-Frew250-B alors qu'elle diminue légèrement pour la poudre GrC-Frew250-B.

La lubrification après brassage permet une agglomération et une sphéroïdisation importante pour le lot FaC. La proportion des agglomérats inférieurs à 150 µm diminue et la population autour de 250 µm augmente. Les poudres finales issues des deux lots sont donc proches ainsi que leur étendue granulométrique bien que le lot FaC présente une proportion d'agglomérats autour de 30 µm toujours plus faible que le lot GrC (Annexe IV.1 (d)). Après lubrification, la largeur de l'étendue granulométrique diminue pour le lot FaC alors qu'elle n'est pas significativement modifiée pour le lot GrC.

Bien que les poudres broyées initiales soient différentes, la voie de préparation du milieu granulaire Frewitt permet d'obtenir des distributions granulométriques de poudres relativement proches. Cette voie semble donc être robuste du point de vue de la variabilité des poudres en entrée.

### 1. 2. 1. 2. Morphologie

Les fréquences cumulées en volume de l'élongation (Figure IV.7 et Figure IV.9) et de la circularité (Figure IV.8 et Figure IV.10) pour les poudres issues des deux lots ont été évaluées. Les fréquences cumulées de la taille des agglomérats étudiés sont représentées en Annexe IV.2. Les valeurs des SF<sub>10</sub>, SF<sub>50</sub> et de SF<sub>90</sub> sont regroupées en Annexe IV.3 et Annexe IV.4. La comparaison des élongations et des circularités des deux lots après chaque étape est présentée en Annexe IV.5 et Annexe IV.6 respectivement.

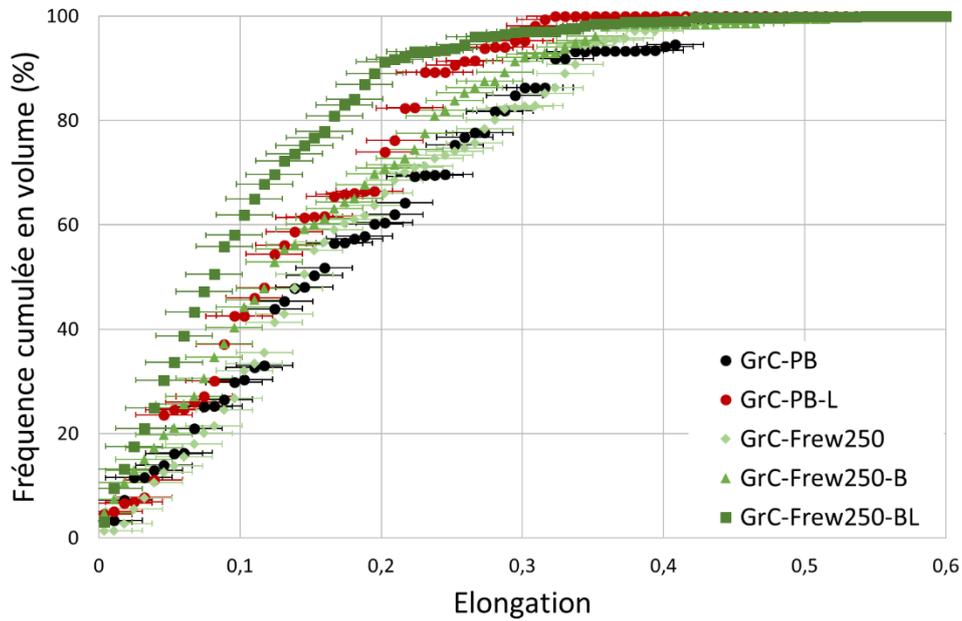


Figure IV.7 : Élongation après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot GrC

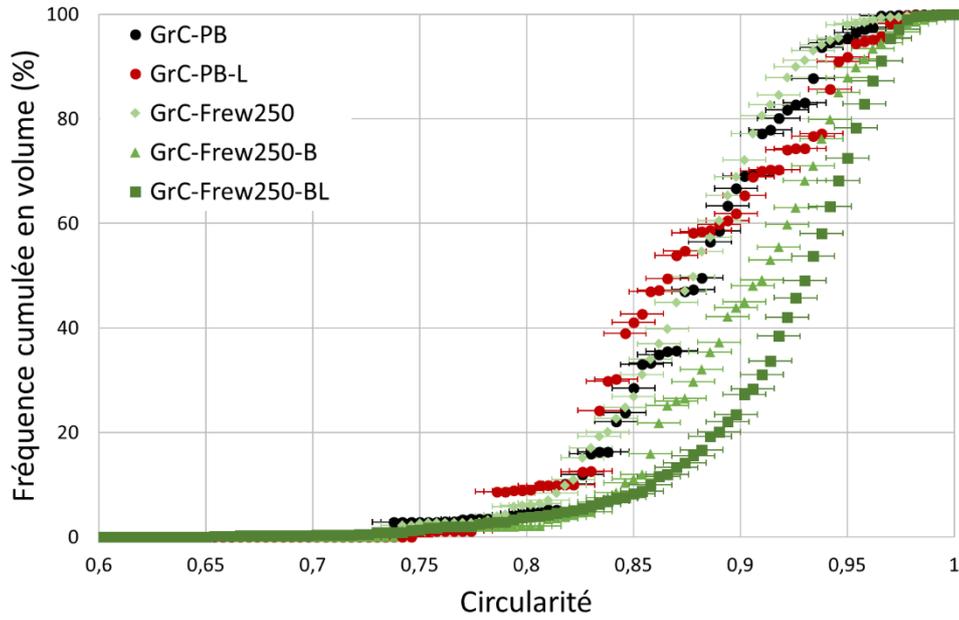


Figure IV.8 : Circularité après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot GrC

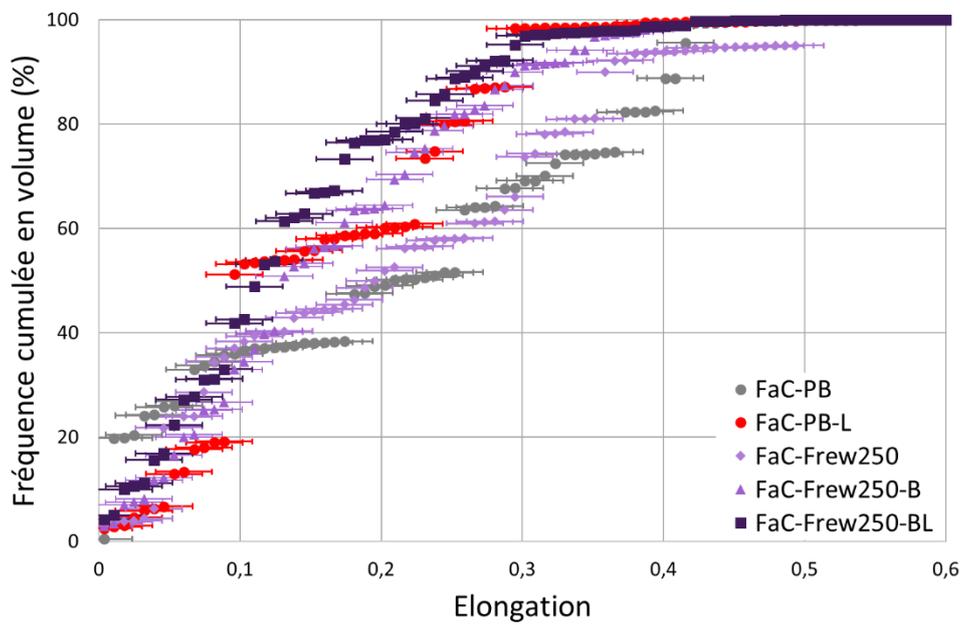


Figure IV.9 : Élongation après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot FaC

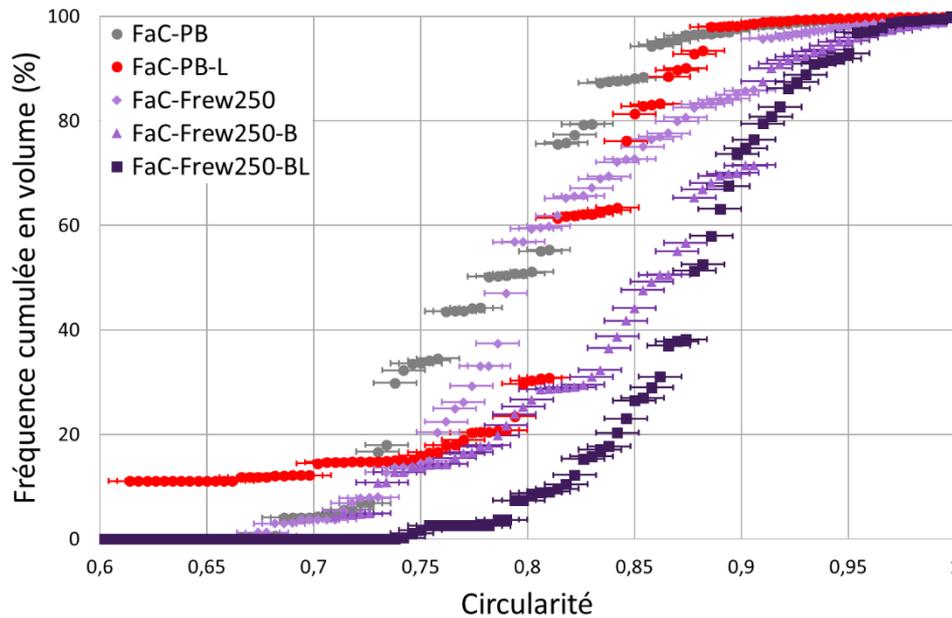


Figure IV.10 : Circularité après les différentes étapes de la voie Frewitt pour le lot FaC

Comme discuté dans la section 1. 1, des différences marquées de morphologie entre les deux poudres broyées sont observées. Les agglomérats sont plus allongés et plus anguleux pour le lot FaC.

Par rapport aux poudres broyées initiales, la lubrification provoque une diminution de l'élongation pour les deux lots et une augmentation de la circularité pour la poudre FaC-PB-L. Les agglomérats sont donc moins allongés pour les deux lots de poudre et moins anguleux pour le lot FaC après lubrification. Ceci s'explique par l'agglomération et la sphéroïdisation ayant lieu lors de cette étape. À l'issue de cette étape, la forme des agglomérats des deux lots est similaire (même élongation) mais les agglomérats sont plus anguleux pour le lot FaC que le lot GrC (circularité plus faible) (Annexe IV.5(a) et Annexe IV.6(a)).

Après tamisage/forçage au Frewitt, l'élongation et la circularité ne sont pas modifiées significativement pour les deux lots en comparaison aux poudres broyées initiales. Les agglomérats restent plus allongés et plus anguleux pour la poudre issue du lot FaC, par rapport à celle issue du lot GrC (Annexe IV.5(b) et Annexe IV.6(b)).

L'étape de brassage permet de diminuer l'élongation et d'augmenter la circularité des agglomérats pour les deux lots, probablement en raison des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de cette étape. Ces phénomènes semblent avoir un impact plus important sur la morphologie des agglomérats du lot FaC, les agglomérats étant initialement plus allongés et plus anguleux. Après cette étape, l'élongation est similaire pour les deux lots et la circularité reste plus faible pour le lot FaC (Annexe IV.5(c) et Annexe IV.6(c)).

La lubrification de la poudre après brassage permet de diminuer l'élongation et d'augmenter la circularité pour les deux lots. Comme précédemment, les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation permettent de diminuer l'élongation et l'angularité des agglomérats. À l'issue de cette étape, l'élongation des agglomérats est similaire pour les deux lots mais la circularité du lot FaC est légèrement plus faible que celle du lot GrC (Annexe IV.5(d) et Annexe IV.6(d)).

En conclusion, la voie Frewitt tend à réduire les écarts de morphologie mais les caractéristiques morphologiques de la poudre broyée semblent néanmoins avoir un impact sur l'angularité des

agglomérats après cette méthode de préparation du milieu granulaire. En effet, bien que les valeurs d'élongation de la poudre FaC-PB soient plus importantes que celles de la poudre GrC-PB, les élongations finales sont similaires. À noter par ailleurs que les différences d'angularité entre les poudres broyées initiales et les poudres finales sont certes réduites grâce à cette voie mais les agglomérats du lot FaC restent plus anguleux que ceux du lot GrC.

### 1. 2. 1. 3. Surface spécifique

Le Tableau III.7 regroupe les valeurs de surface spécifique obtenues par BET pour les poudres non lubrifiées. Quel que soit le lot de poudre étudié, la surface spécifique n'est pas modifiée. En effet, comme indiqué dans le Chapitre III. 3. 1. 1. 3 , les énergies mises en jeu au sein du Frewitt ne sont pas suffisantes pour rompre les agrégats ou les cristallites des agglomérats. La fragmentation qui se produit lors du tamisage/forçage a donc très majoritairement lieu sur les agglomérats.

Tableau IV.2 : Valeurs de surface spécifique pour le lot GrC et le lot FaC

Lot	GrC			FaC		
Échantillon	GrC-PB	GrC-Frew250	GrC-Frew250-B	FaC-PB	FaC-Frew250	FaC-Frew250-B
Surface spécifique (m <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> )	2,6 ± 0,2	2,3 ± 0,2	2,5 ± 0,2	2,2 ± 0,2	2,5 ± 0,2	2,5 ± 0,2

### 1. 2. 1. 4. Structure et densité des agglomérats

La Figure IV.11 présente des micrographies d'agglomérats de poudre FaC et de chamotte effectuées après polissage et enrobage à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). Ces observations ont également été réalisées sur les sous-lots FaC issus de chaque étape intermédiaire. Les structures observées pour chaque sous-lot sont similaires pour chaque sous-lot et sont présentés en Annexe IV.7.

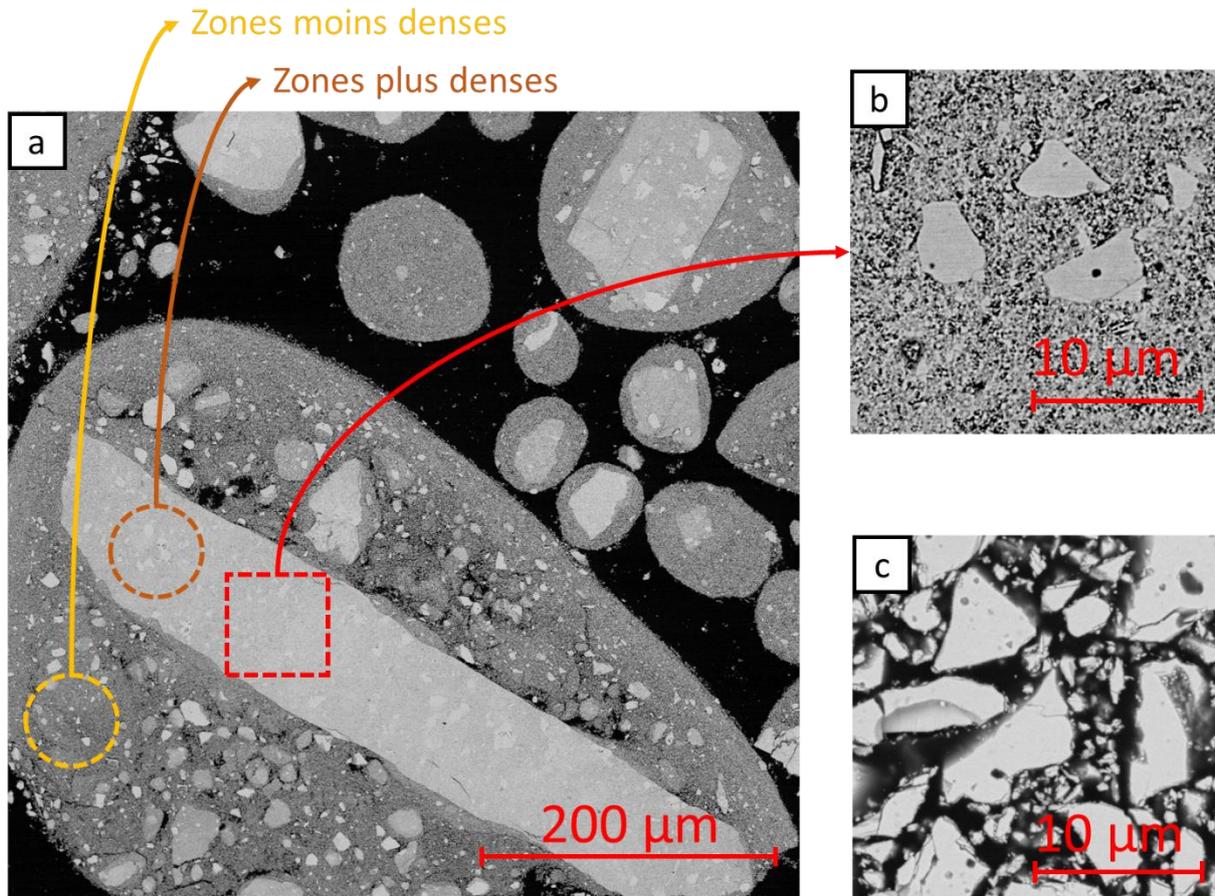


Figure IV.11 : Micrographie MEB de la structure des agglomérats (FaC-PB) (a), zoom sur une partie dense (b) et micrographie MEB de la chamotte (c) (microscopie électronique à balayage).

Remarque : les zones qui apparaissent plus claires ont des densités plus élevées.

Les agglomérats sont composés de zones de différentes densités (visualisées selon le niveau de gris sur les clichés). Certains agglomérats sont constitués d'une zone centrale anguleuse ayant une densité plus élevée que celle des zones situées en périphérie. Ces zones denses peuvent contenir des agglomérats anguleux de plus petite taille (micrographie (b)), dont la densité est encore supérieure, et qui pourraient correspondre à de la chamotte (micrographie (c)). Elles semblent être formées lors du broyage initial probablement via des phénomènes de compaction/consolidation entre les boulets ou entre les boulets et la paroi du broyeur.

Des mesures au porosimètre à mercure ont été réalisées sur les poudres issues du lot FaC et les compacités des agglomérats sont regroupées dans le Tableau IV.3. Les valeurs de compacité des agglomérats n'évoluent pas significativement après chaque étape de préparation du milieu granulaire. Les masses volumiques des agglomérats sont donc semblables, ce qui indique que les structures d'agglomérats restent identiques après chaque étape de préparation du milieu granulaire.

Tableau IV.3 : Valeurs des compacités des agglomérats pour le lot FaC

Échantillon	FaC-PB	FaC-PB-L	FaC-Frew250	FaC-Frew250-B	FaC-Frew250-BL
Compacité	0,54 ± 0,03	0,56 ± 0,03	0,57 ± 0,03	0,56 ± 0,03	0,55 ± 0,03

## 1. 2. 2. Impact sur les caractéristiques mécaniques des poudres

### 1. 2. 2. 1. Contrainte à la rupture

Les diamètres moyens des agglomérats dans la direction de l'écrasement ainsi que les constantes et les modules de Weibull des agglomérats sont reportés dans le Tableau IV.4. Ces mesures ont été réalisées sur les poudres disponibles en quantité suffisante pour le lot GrC et pour toutes les étapes intermédiaires pour le lot FaC.

Tableau IV.4 : Valeurs des constantes et modules de Weibull pour le lot GrC et le lot FaC

Lot	Échantillon	Constante de Weibull $\sigma_0$ (kPa)	Module de Weibull m
GrC	GrC-PB (420 ± 40 µm)*	139	3,6
	GrC-PB-L (410 ± 30 µm)*	209	3,5
	GrC-Frew250-BL (420 ± 40 µm)*	268	4,8
FaC	FaC-PB (390 ± 80 µm)*	245	1,8
	FaC-PB-L (410 ± 50 µm)*	352	1,9
	FaC-Frew250 (340 ± 60 µm)*	481	3,0
	FaC-Frew250-B (350 ± 40 µm)*	578	2,3
	FaC-Frew250-BL (350 ± 50 µm)*	598	3,5

\* diamètre moyen des agglomérats dans la direction de l'écrasement

La poudre broyée initiale du lot FaC présente une meilleure résistance à la rupture que la poudre broyée initiale du lot GrC. Les conditions de broyage associées à la chamotte utilisée pour le lot GrC semblent donc diminuer la résistance à l'écrasement des agglomérats. Pour les deux lots, la lubrification permet d'améliorer la résistance à la rupture des agglomérats, comme évoqué dans le Chapitre III. 3. 1. 2. 1.

La réalisation des tests d'écrasement sur tous les échantillons issus du lot FaC permet de mettre en évidence l'impact de chacune des étapes intermédiaires de la voie Frewitt. Ces dernières permettent progressivement d'améliorer la résistance à la rupture des agglomérats, notamment les étapes de tamisage/forçage et de brassage. Les modules de Weibull restent faibles ( $m < 20$ ), en raison d'une distribution hétérogène des défauts entraînant une forte dispersion des résistances à la rupture. Après la voie Frewitt, les agglomérats issus du lot FaC gardent une meilleure résistance à la rupture que ceux du lot GrC.

### 1. 2. 2. 2. Comportement à l'abrasion

L'évolution du taux d'abrasion est représentée en Figure IV.12. Ces mesures ont été réalisées sur les poudres disponibles en quantité suffisante pour le lot GrC et pour toutes les étapes pour le lot FaC.

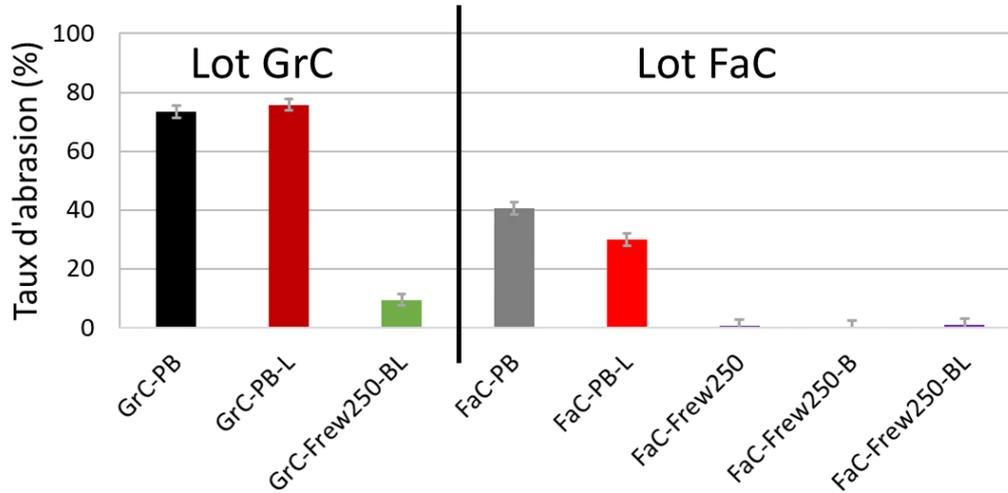


Figure IV.12 : Valeurs du taux d'abrasion pour le lot GrC et le lot FaC

Conformément aux mesures de résistance à l'écrasement, la poudre broyée du lot FaC présente un taux d'abrasion plus faible que le lot GrC, ce qui correspond à des agglomérats plus résistants à l'abrasion. La lubrification n'impacte pas significativement le taux d'abrasion pour le lot GrC, mais celui-ci diminue légèrement pour le lot FaC.

La réalisation des tests d'abrasion sur tous les échantillons issus du lot FaC permet de mettre en évidence l'impact de chaque étape intermédiaire. L'étape de destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage permet de diminuer drastiquement le taux d'abrasion, alors que les contributions des étapes de brassage et de lubrification semblent négligeables. Cela confirme que les agglomérats semblent être plus consolidés après l'opération de tamisage/forçage. Cette hypothèse déjà formulée dans le Chapitre III. 0 est ainsi confirmée.

Quelle que soit la poudre broyée initiale, la voie étudiée permet d'améliorer la résistance à l'abrasion des agglomérats. La poudre finale du lot GrC présente un taux d'abrasion de 10%, beaucoup plus faible que celui de la poudre broyée. De même, le lot FaC après la voie Frewitt n'est pratiquement pas sensible aux phénomènes d'abrasion (dans les conditions testées) alors que le taux d'abrasion se situait autour de 40% initialement. Le comportement des agglomérats à l'abrasion dépend donc de la méthode de préparation, mais aussi des caractéristiques initiales de la poudre broyée.

### 1. 2. 3. Synthèse des caractéristiques physiques et mécaniques pour les deux lots de poudre

Au cours des différentes étapes de préparation du milieu granulaire, différents phénomènes sont observés :

- la lubrification de la poudre broyée entraîne un phénomène d'agglomération qui est plus marqué pour le lot GrC et un phénomène de sphéroïdisation pour le lot FaC. Cette étape permet

également d'améliorer la contrainte à la rupture mais ne modifie pas significativement la résistance à l'abrasion des agglomérats,

- la destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage engendre des phénomènes de fragmentation et d'abrasion des agglomérats. D'après les caractérisations mécaniques réalisées sur le lot FaC, cette étape améliore les résistances à la rupture et à l'abrasion des agglomérats,
- le brassage permet une agglomération et une sphéroïdisation des agglomérats. D'après les caractérisations mécaniques réalisées sur le lot FaC, il permet également d'augmenter la contrainte à la rupture sans modification de la résistance à l'abrasion des agglomérats,
- la lubrification après tamisage/forçage et brassage entraîne des phénomènes d'agglomération uniquement pour le lot FaC et un phénomène de sphéroïdisation pour les deux lots. D'après les caractérisations mécaniques réalisées sur le lot FaC, elle permet également d'augmenter la contrainte à la rupture mais ne modifie pas la résistance à l'abrasion des agglomérats.

De plus, au cours des étapes intermédiaires, des points communs et des différences ont pu être observés entre les poudres issues des deux lots GrC et FaC, ils sont regroupés dans le Tableau IV.5.

*Tableau IV.5 : Points communs et différences entre les poudres du lot GrC et FaC après chaque étape de préparation du milieu granulaire*

Étapes	Points communs	Différences du lot FaC par rapport au lot GrC
<b>Poudres broyées initiales</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Allure globale des distributions granulométriques proche</li> <li>• Étendues granulométriques proches</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Moins de fines et plus d'agglomérats millimétriques</li> <li>• Agglomérats plus allongés</li> <li>• Agglomérats plus anguleux</li> <li>• Meilleures résistances à l'écrasement* et à l'abrasion</li> </ul>
<b>Lubrification de la poudre broyée</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Allure globale des distributions granulométriques proche</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Étendue granulométrique plus large</li> <li>• Agglomérats plus allongés</li> <li>• Agglomérats plus anguleux</li> <li>• Meilleures résistances à l'écrasement* et à l'abrasion</li> </ul>
<b>Destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Allure globale des distributions granulométriques proche</li> <li>• Étendues granulométriques proches</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Moins de fines et plus d'agglomérats d'environ 100 µm</li> <li>• Agglomérats plus allongés</li> <li>• Agglomérats plus anguleux</li> </ul>
<b>Brassage</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Élongations similaires</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Moins de fines et plus d'agglomérats d'environ 100 µm</li> <li>• Étendue granulométrique légèrement plus large</li> <li>• Agglomérats plus anguleux</li> </ul>
<b>Lubrification de la poudre après tamisage/forçage et brassage</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Allure globale des distributions granulométriques proche</li> <li>• Étendues granulométriques proches</li> <li>• Élongations similaires</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Moins de fines</li> <li>• Agglomérats plus anguleux</li> <li>• Meilleures résistances à l'écrasement* et à l'abrasion</li> </ul>

\* dans la gamme de taille étudiée

Au regard de ces résultats, la voie Frewitt permet d'obtenir des poudres finales globalement similaires à partir de poudres broyées différentes. Néanmoins, certaines caractéristiques des poudres initiales semblent être conservées après application de cette méthode. Par exemple, la poudre broyée du lot FaC, composée initialement d'agglomérats plus gros, plus anguleux et de meilleures caractéristiques mécaniques, conserve globalement ces caractéristiques après application de la voie Frewitt. Cependant, les différences d'angularité sont diminuées par rapport aux écarts observés sur les poudres broyées initiales.

### **1. 3. IMPACT SUR LES PROPRIÉTÉS RHÉOLOGIQUES DES POUDRES**

Les caractérisations effectuées à l'aide du rhéomètre FT4 sont enchainées sur un même échantillon selon la méthodologie présentée dans le Chapitre II. 6. 2. 3. Les écarts relatifs associés aux mesures de perméabilité entre chaque test (Équation II.17) sont présentés en Annexe IV.8. Les écarts relatifs restent inférieurs à 10% pour tous les échantillons du lot FaC. Ceci indique que la poudre évolue peu au cours des tests. Ce comportement est probablement favorisé par les bonnes propriétés mécaniques de ce lot.

#### **1. 3. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique)**

##### ***1. 3. 1. 1. Test de cisaillement***

Les fonctions d'écoulement déterminées à partir des essais de cisaillement sont présentées en Figure IV.13. Les valeurs des indices d'écoulement, des cohésions et des angles de frottement interne sont reportées dans le Tableau IV.6.

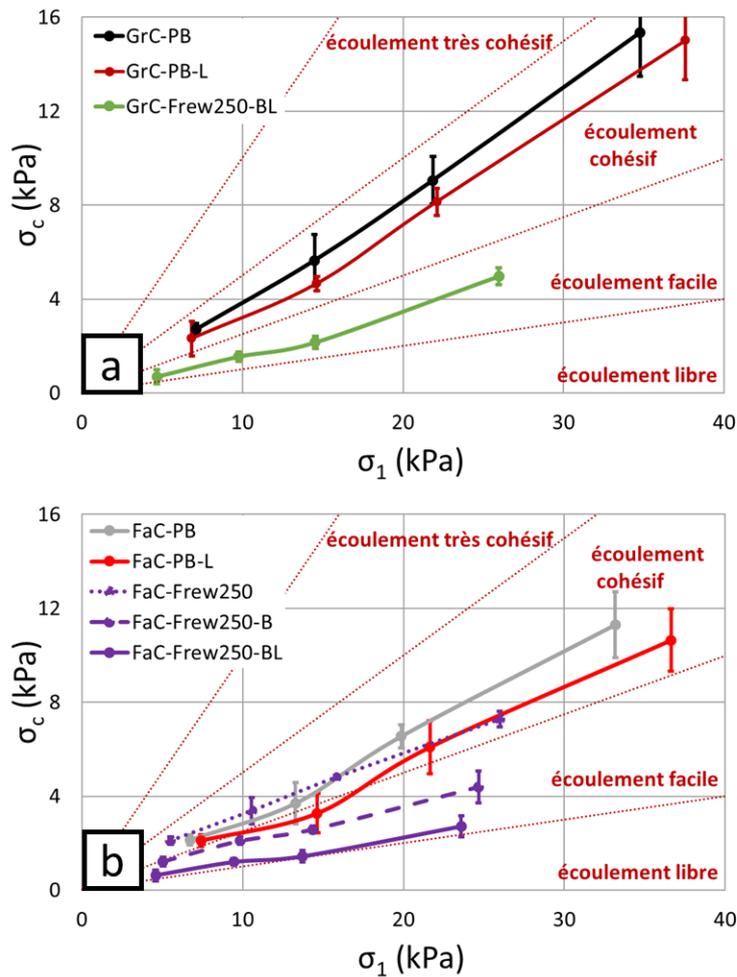


Figure IV.13 : Fonction d'écoulement des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour le lot GrC (a) et le lot FaC (b)

Tableau IV.6 : Indice de coulabilité  $ff_c$ , cohésion et angle de frottement interne AIF des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés

Lot	Échantillon	$ff_c$ à 3 kPa	$ff_c$ à 15 kPa	Cohésion à 3 kPa	Cohésion à 15 kPa	AIF à 3 kPa (°)	AIF à 15 kPa (°)
GrC	GrC-PB	2,6 ± 0,1	2,3 ± 0,2	0,6 ± 0,1	3,7 ± 0,5	40,0 ± 2,4	38,9 ± 1,3
	GrC-PB-L	3,2 ± 1,1	2,5 ± 0,3	0,6 ± 0,3	3,5 ± 0,5	35,0 ± 5,2	40,2 ± 1,9
	GrC-Frew250-BL	5,6 ± 0,7	5,2 ± 0,4	0,2 ± 0,1	1,5 ± 0,1	25,9 ± 2,4	28,8 ± 1,0
FaC	FaC-PB	3,1 ± 0,3	3,0 ± 0,2	0,6 ± 0,1	2,7 ± 0,3	35,9 ± 2,2	37,5 ± 0,8
	FaC-PB-L	3,6 ± 0,2	3,5 ± 0,3	0,5 ± 0,1	2,4 ± 0,3	35,6 ± 2,4	39,7 ± 1,4
	FaC-Frew250	2,7 ± 0,2	3,5 ± 0,2	0,6 ± 0,1	2,1 ± 0,1	27,9 ± 3,6	31,7 ± 0,5
	FaC-Frew250-B	4,0 ± 0,5	5,8 ± 0,7	0,4 ± 0,1	1,3 ± 0,2	27,0 ± 0,9	29,0 ± 0,5
	FaC-Frew250-BL	7,4 ± 2,9	9,1 ± 1,3	0,2 ± 0,1	0,8 ± 0,1	24,2 ± 2,3	26,9 ± 0,9

Pour toutes les contraintes normales de pré-consolidation appliquées, les indices de coulabilité  $ff_c$  de la poudre broyée initiale FaC sont supérieurs à ceux de la poudre broyée initiale issue du lot GrC. De plus, les valeurs d'angle de frottement interne et de cohésion (à forte contrainte) sont inférieures dans le cas du lot FaC. Ces résultats traduisent une meilleure coulabilité pour la poudre broyée FaC, ce qui correspond à une mise en écoulement plus aisée. Ceci est en accord avec la proportion de fines moins importante et probablement avec les meilleures propriétés mécaniques de cette poudre (moins de rupture et d'abrasion des agglomérats).

L'étape de lubrification de la poudre broyée ne modifie pas de manière significative la fonction d'écoulement, l'indice d'écoulement, la cohésion et l'angle de frottement interne. En effet, quel que soit le lot étudié, ces valeurs restent semblables à celles mesurées sur la poudre broyée initiale (différences globalement inférieures aux écarts-types des mesures).

Pour les deux lots étudiés, par rapport à la poudre initiale, l'indice d'écoulement augmente tandis que la cohésion et l'angle de frottement interne diminuent à l'issue de la voie Frewitt. Ainsi, cette méthode entraîne une amélioration très nette des propriétés d'écoulement. Il est à noter que la poudre finale issue du lot FaC semble avoir une mise en écoulement plus facile que celle issue du lot GrC. Ceci s'explique de nouveau par une proportion de fines plus faible et probablement par les meilleures propriétés mécaniques du lot FaC.

Les mesures réalisées sur les étapes intermédiaires pour le lot FaC permettent de mettre en évidence l'impact de chacune de ces étapes. Lors de la destruction des agglomérats par tamisage/forçage, la mise en écoulement est très légèrement améliorée pour les contraintes les plus élevées (augmentation du  $ff_c$ , diminution de la cohésion et de l'angle de frottement interne). Cette amélioration pourrait être due à la meilleure résistance à la rupture et à l'abrasion des agglomérats de poudre tamisée/forcée par rapport à ceux de la poudre broyée. Ainsi, pour les contraintes élevées, des agglomérats de faible tenue mécanique (cas de la poudre broyée) peuvent subir des phénomènes d'abrasion entraînant la formation de fines au cours du test. Les résultats issus des mesures à forte contrainte sont alors dégradés. Les étapes de brassage et de lubrification améliorent nettement la mise en écoulement, notamment en raison des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. Comme indiqué précédemment, ces phénomènes entraînent une diminution des fines, de l'élongation et de l'angularité des agglomérats, ce qui se traduit par une amélioration des propriétés d'écoulement.

### ***1. 3. 1. 2. Diamètre d'écoulement spontané***

Les valeurs de diamètre d'écoulement spontané sont présentées sur la Figure IV.14.

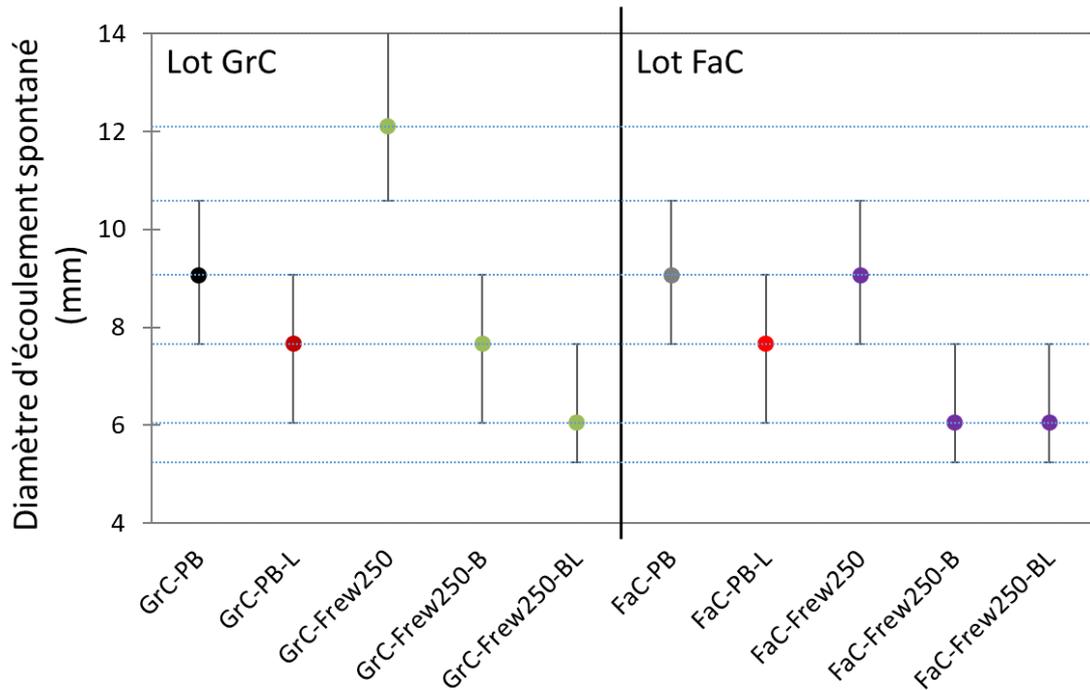


Figure IV.14 : Valeurs du diamètre d'écoulement des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés (les traits pointillés correspondent aux diamètres des orifices de la réglette)

Les valeurs de diamètre d'écoulement spontané sont similaires pour les deux lots de poudre broyée et la lubrification permet d'améliorer la mise en écoulement grâce au phénomène d'agglomération (section 1. 2. 3).

Après tamisage/forçage, le diamètre d'écoulement spontané augmente par rapport à la poudre broyée pour le lot GrC mais reste pratiquement constant pour le lot FaC. Après brassage et lubrification, les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation (diminution des fines, diminution de l'élongation et de l'angularité des agglomérats) permettent d'améliorer la mise en écoulement, et donc de diminuer le diamètre d'écoulement spontané, quelle que soit la poudre broyée initiale. Le diamètre de 6,05 mm correspond au diamètre minimal possible en géométrie annulaire, une diminution du diamètre d'écoulement spontané en-deçà de cette valeur, si elle existe, ne peut donc pas être observée. Au vu des valeurs obtenues pour les lots après Frewitt/Brassage et après Frewitt/Brassage/Lubrification, cela pourrait suggérer que la mise en écoulement du lot FaC-Frew250-BL pourrait potentiellement être meilleure que celle du lot GrC-Frew250-BL. Cela serait en accord avec les résultats des tests de cisaillement.

### 1. 3. 1. 3. Frottements aux parois

La Figure IV.15 présente les valeurs d'angles de frottement obtenues lors des tests de cisaillement poudre-paroi réalisés uniquement sur le lot FaC.

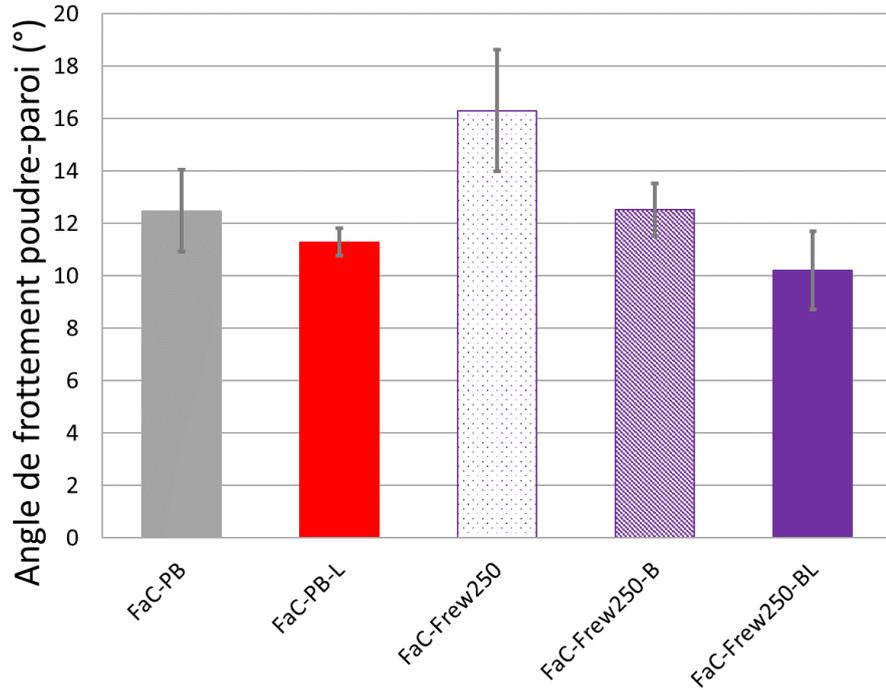


Figure IV.15 : Valeurs des angles de frottement poudre-paroi pour le lot FaC

Après lubrification de la poudre broyée, l'angle de frottement aux parois semble légèrement diminuer bien que les différences soient comprises dans les écarts-type de mesure. Ceci est en accord avec la modification de la morphologie des agglomérats et l'ajout de lubrifiant [Shinohara and Golman 2002]. Après tamisage/forçage, l'angle de frottement aux parois augmente. En effet, les phénomènes de fragmentation et d'abrasion augmentent la quantité de fines, ce qui engendre une augmentation des frottements aux parois. Les étapes de brassage et de lubrification diminuent l'angle de frottement aux parois, ce qui est en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. De plus, l'ajout de lubrifiant lors de la dernière étape peut également diminuer les frottements poudre-paroi [Israelachvili 2011].

### 1. 3. 2. Écoulement dynamique (test VFR)

Le Basic Flow Energy (BFE) et le Flow Index (FRI) sont déterminés à partir des mesures des tests VFR (Figure IV.16), effectuées à l'aide du rhéomètre FT4.

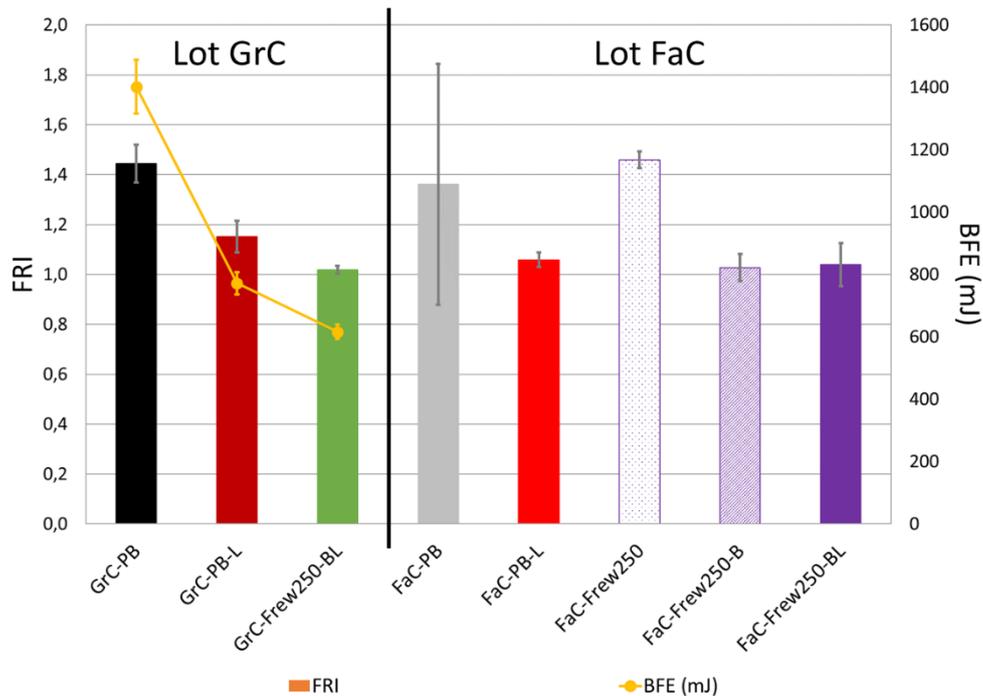


Figure IV.16 : Valeurs du FRI et du BFE des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots de poudres

Des difficultés d'exploitation ont été rencontrées pour les mesures de VFR (en particulier le BFE), dans le cas du lot FaC. En effet, seulement 2 mesures ont pu être effectuées pour ce lot, en raison de la quantité limitée de poudre disponible (Chapitre II. 6. 2. 3). Pour la plupart des poudres issues de ce lot, les 2 mesures effectuées ont donné des résultats significativement différents, entraînant des écarts-type de mesure importants. Compte tenu de ces problèmes de répétabilité, les résultats obtenus pour le BFE ne seront pas présentés et interprétés dans la suite de ce chapitre. Les valeurs de FRI seront quant à elles à interpréter avec prudence.

Après lubrification des poudres broyées, le FRI semble diminuer, ce qui est en accord avec l'amélioration des propriétés d'écoulement liée à la diminution de la proportion de fines et de l'élongation des agglomérats. Les poudres finales issues de la voie Frewitt présentent des valeurs de FRI similaires, quel que soit le lot étudié.

Les mesures réalisées sur les étapes intermédiaires pour le lot FaC permettent de mettre en évidence l'impact de chaque étape intermédiaire. Après destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage, le FRI semble augmenter de manière significative (compte tenu des problèmes de répétabilité, ce résultat est à considérer avec prudence). Les phénomènes de fragmentation et d'abrasion engendrés par le Frewitt dégradent la coulabilité de la poudre en raison de l'augmentation des fines. Après brassage, le FRI diminue et se rapproche de 1, ce qui correspond à une amélioration des propriétés d'écoulement dynamique. En effet, comme indiqué précédemment, cette étape permet de diminuer la quantité de fines et de rendre les agglomérats plus sphériques (diminution de l'élongation et augmentation de la circularité), via des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. La lubrification ne semble pas permettre de diminuer le FRI. En effet, ce dernier est déjà proche de 1 après brassage, l'impact de la vitesse de la pale est donc relativement faible et ne peut être significativement amélioré.

### 1. 3. 3. Propriétés du lit de poudre

#### 1. 3. 3. 1. Perméabilité

Les valeurs de perméabilité à 2 kPa sont représentées en Figure IV.17.

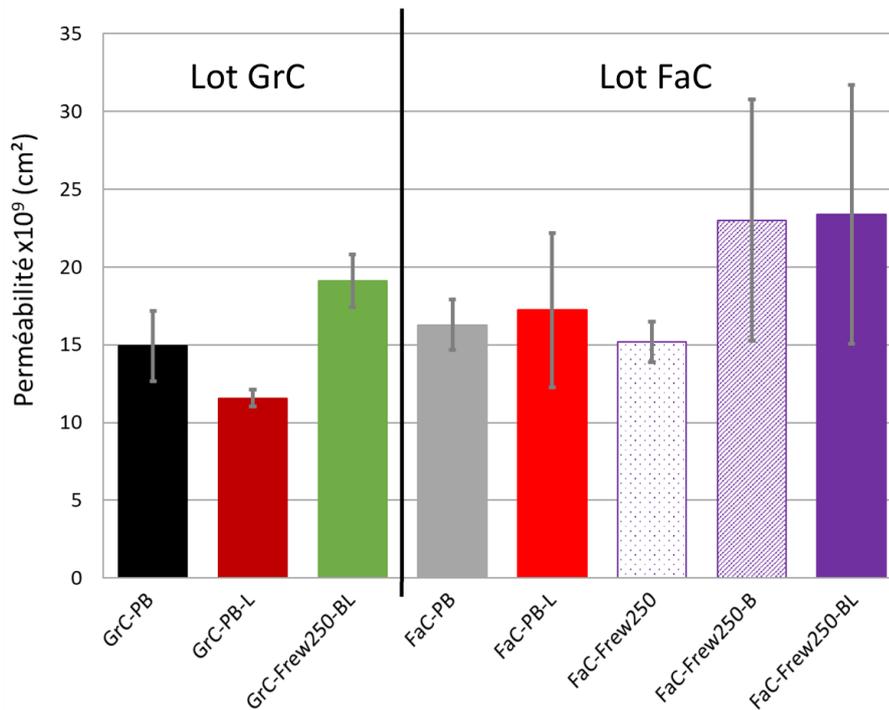


Figure IV.17 : Valeurs de la perméabilité des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots de poudres

Les poudres broyées initiales ont une perméabilité similaire, pour les deux lots étudiés. Après lubrification des poudres broyées, la perméabilité diminue légèrement pour le lot GrC. Comme évoqué dans le Chapitre III. 3. 2. 3. 1, ce résultat semble contre-intuitif. En effet, la lubrification entraîne des phénomènes d'agglomération : augmentation de la taille des agglomérats, diminution de l'étendue granulométrique, diminution de l'élongation. Chacune de ces modifications devrait permettre une augmentation de la perméabilité du lit de poudre. Cependant, des agglomérats millimétriques de grande taille mais relativement faibles en nombre ont été observés pour ce lot. Ainsi, d'éventuels problèmes de ségrégation lors du stockage des poudres peuvent avoir eu lieu (percolation des fines) et avoir ainsi impacté fortement les mesures de perméabilité. Concernant le lot FaC, la perméabilité n'est pas significativement modifiée. En effet, comme indiqué précédemment, les propriétés physiques de la poudre sont peu modifiées lors de la lubrification du lot FaC.

À l'issue de la voie Frewitt, les résultats obtenus montrent que la perméabilité est supérieure à celle de la poudre broyée initiale. En outre, compte tenu des barres d'erreur, cette perméabilité finale est du même ordre de grandeur pour les deux poudres étudiées.

Par ailleurs, les mesures réalisées sur le lot FaC permettent d'étudier l'impact de chaque étape. Après tamisage/forçage, la perméabilité n'est pas significativement modifiée (différences inférieures

aux écarts-types de mesure). Après les étapes de brassage et de lubrification, la perméabilité augmente de manière importante. Ce résultat est en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de ces étapes.

### 1. 3. 3. 2. Arrangement d'un lit d'agglomérats (indice de Carr/rapport d'Hausner et compressibilité)

L'indice de Carr et le rapport d'Hausner sont déterminés après chacune des étapes intermédiaires de la voie Frewitt. Ces caractérisations permettent d'évaluer l'arrangement des agglomérats et les résultats sont présentés dans le Tableau IV.7.

*Tableau IV.7 : Valeurs des indices de Carr et rapports d'Hausner des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés*

Lot	Échantillon	Indice de Carr	Rapport d'Hausner
GrC	GrC-PB	20 ± 2	1,26 ± 0,03
	GrC-PB-L	16 ± 3	1,19 ± 0,03
	GrC-Frew250	43 ± 2	1,76 ± 0,05
	GrC-Frew250-B	19 ± 2	1,23 ± 0,03
	GrC-Frew250-BL	14 ± 2	1,17 ± 0,02
FaC	FaC-PB	21 ± 3	1,26 ± 0,04
	FaC-PB-L	15 ± 3	1,18 ± 0,04
	FaC-Frew250	22 ± 2	1,28 ± 0,04
	FaC-Frew250-B	18 ± 2	1,23 ± 0,04
	FaC-Frew250-BL	13 ± 2	1,15 ± 0,04

Les valeurs de l'indice de Carr et du rapport d'Hausner sont similaires pour les deux lots de poudres broyées. Après lubrification de la poudre broyée, ces indices diminuent et sont toujours similaires quel que soit le lot étudié. Ce résultat est en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation, qui entraînent une amélioration des propriétés d'écoulement, donc une diminution de l'indice de Carr et du rapport d'Hausner.

Après tamisage/forçage, l'indice de Carr et le rapport d'Hausner augmentent très fortement pour le lot GrC, mais beaucoup plus légèrement pour le lot FaC. Ceci pourrait potentiellement s'expliquer par les différences de caractéristiques mécaniques des agglomérats de ces poudres. En effet, le test de tassement permettant de déterminer l'indice de Carr et le rapport d'Hausner a été défini comme destructif (Chapitre II. 6. 1. 2. 3). Les poudres du lot GrC possèdent de moins bonnes résistances à la rupture et à l'abrasion que celles du lot FaC. Des phénomènes de fragmentation et d'abrasion pourraient se produire au cours du test et engendrer la formation de fines. Cela pourrait justifier l'augmentation marquée de l'indice de Carr et du rapport d'Hausner pour le lot GrC par rapport au lot FaC. Les étapes de brassage et de lubrification diminuent l'indice de Carr et le rapport d'Hausner. Ces étapes permettent une diminution des fines, de l'élongation et de l'angularité des agglomérats via les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation mis en jeu lors de ces étapes. Ces modifications favorisent l'arrangement des agglomérats et permettent donc d'obtenir un arrangement initial des agglomérats plus

compact. Il est à noter qu'après la voie Frewitt, l'indice de Carr et le rapport d'Hausner sont similaires pour les deux poudres broyées initiales.

Les valeurs de compressibilité à 15 kPa sont présentées en Figure IV.18. Avant compression, les densités en vrac des poudres sont du même ordre de grandeur (Annexe IV.9).

La compressibilité à 15 kPa de la poudre broyée du lot FaC est légèrement plus faible que celle du lot GrC. Ceci peut s'expliquer par une plus faible proportion de fines pour le lot FaC. Après lubrification, la compressibilité du lot GrC diminue de manière significative alors que celle du lot FaC semble peu modifiée. En effet, cette étape entraîne une diminution de l'étendue granulométrique et de l'élongation des agglomérats pour le lot GrC, alors que les agglomérats de la poudre broyée lubrifiée du lot FaC sont peu modifiés.

À l'issue de la voie Frewitt, la compressibilité diminue quel que soit le lot étudié. Cette diminution est plus marquée pour le lot FaC. Ceci est en accord avec les phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. En effet, ces modifications diminuent les forces cohésives et frictionnelles, ce qui permet un arrangement initial plus compact des agglomérats, et donc une diminution de la compressibilité.

Les mesures réalisées sur le lot FaC permettent d'étudier l'impact de chaque étape intermédiaire. Après destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage, la compressibilité augmente en raison des phénomènes de fragmentation et d'abrasion (diminution des agglomérats supérieurs à 250 µm et augmentation des fines). Le brassage et la lubrification engendrent des phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation permettant de diminuer la proportion de fines et d'obtenir des agglomérats moins allongés et moins anguleux. Les forces cohésives et frictionnelles sont donc moins importantes à l'issue de ces étapes, ce qui permet un arrangement initial des agglomérats plus compact et donc une diminution de la compressibilité. Elle est cependant plus marquée après lubrification. En effet, l'ajout de lubrifiant permet de réduire les frottements entre les agglomérats. Ceci permettrait donc d'obtenir un arrangement initial du lit d'agglomérats plus compact et donc une compressibilité plus faible.

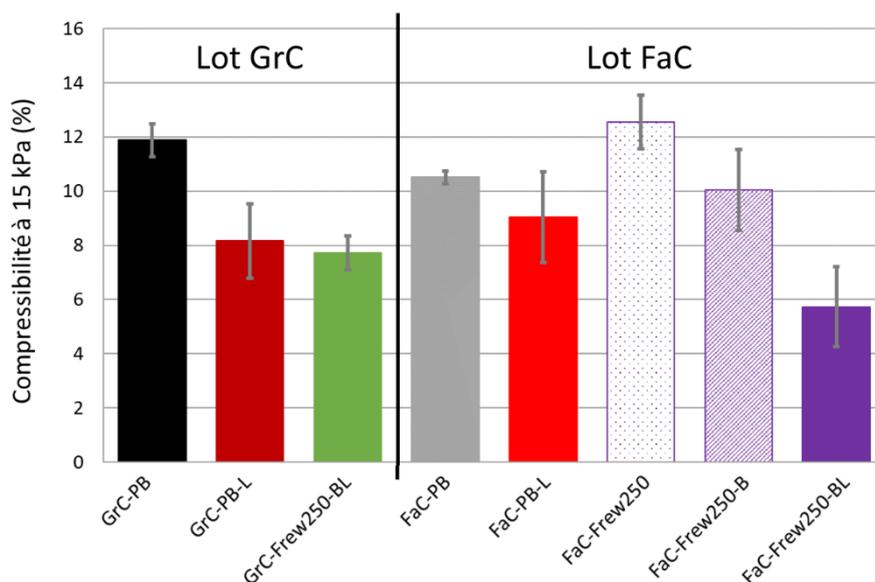


Figure IV.18 : Valeurs de la compressibilité des sous-lots obtenus après les étapes intermédiaires de la voie Frewitt pour les deux lots étudiés

### 1. 3. 4. Synthèse des propriétés rhéologiques pour les deux lots de poudre

Au cours des différentes étapes de préparation du milieu granulaire, les propriétés rhéologiques des poudres évoluent. Ainsi, les résultats obtenus mettent en évidence les points suivants :

- la lubrification de la poudre broyée entraîne un phénomène d'agglomération. Ceci permet d'améliorer légèrement la mise en écoulement (diminution du diamètre d'écoulement spontané), l'écoulement dynamique (diminution du FRI) et l'arrangement des agglomérats (diminution de l'indice de Carr et du rapport d'Hausner). Cette étape n'a pas d'impact sur la perméabilité,
- la destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage engendre des phénomènes de fragmentation et d'abrasion des agglomérats. Ceux-ci semblent légèrement dégrader la mise en écoulement (augmentation du diamètre d'écoulement spontané) et dégradent l'écoulement dynamique (augmentation du FRI). La perméabilité du lit de poudre augmente et l'arrangement des agglomérats est dégradé (augmentation de la compressibilité),
- le brassage permet une agglomération et une sphéroïdisation des agglomérats. Ces phénomènes permettent d'améliorer la mise en écoulement (augmentation de l'indice de coulabilité, diminution de la cohésion, de l'angle de frottement interne et du diamètre d'écoulement spontané) ainsi que l'écoulement dynamique (diminution du FRI). Le lit de poudre est plus perméable et l'arrangement initial des agglomérats est plus compact (diminution de l'indice de Carr, du rapport d'Hausner et de la compressibilité),
- la lubrification après tamisage et brassage entraîne également des phénomènes d'agglomération et des phénomènes de sphéroïdisation. De même que pour l'étape de brassage, la mise en écoulement est améliorée (augmentation de l'indice de coulabilité, diminution de la cohésion, de l'angle de frottement interne et du diamètre d'écoulement spontané) ainsi que l'écoulement dynamique (diminution du FRI). Le lit de poudre est plus perméable et l'arrangement initial des agglomérats est plus compact (diminution de l'indice de Carr, du rapport d'Hausner et de la compressibilité).

De plus, les différences de caractéristiques observées pour les deux lots de poudre GrC et FaC ont une influence sur leur comportement. Il en résulte les principaux résultats suivants :

- la mise en écoulement est plus aisée pour le lot FaC (poudre broyée et finale) en raison de la proportion de fines moins importante et probablement des meilleures propriétés mécaniques de cette poudre,
- l'écoulement dynamique est similaire pour les deux poudres finales,
- concernant les propriétés du lit d'agglomérats :
  - la perméabilité est similaire pour les poudres broyées et finales,
  - l'arrangement initial du lit d'agglomérats est plus compact pour le lot FaC (poudre broyée et finale), ce qui entraîne des tassements et compressibilités inférieures en raison d'une plus faible proportion de fines et probablement d'une meilleure résistance à la rupture et à l'abrasion de cette poudre.

## 1. 4. FABRICATION DES PASTILLES

Des pastilles cylindriques ont été réalisées pour les poudres lubrifiées (initiales et finales) sur les deux lots de poudre. La Figure IV.19 présente les observations céramographiques par microscopie optique de coupes transverses de ces pastilles. Les valeurs moyennes de densité apparente, déterminées par pesée hydrostatique de 3 à 5 pastilles après immersion dans du bromobenzène, sont reportées sur la Figure IV.20, de même que les valeurs correspondantes de porosité ouverte et fermée.

Comme évoqué dans le Chapitre III. 3. 3, la microstructure de la pastille issue de la poudre broyée-lubrifiée du lot GrC est constituée d'agglomérats denses entourés de porosités interconnectées. La densité apparente des pastilles obtenues pour la poudre broyée lubrifiée est égale à 91,1% $m_v$ ,th, valeur en accord avec la microstructure observée. Concernant le lot FaC, la pastille obtenue à partir de la poudre broyée lubrifiée est plus dense (densité apparente de 95,3% $m_v$ ,th) que celle du lot GrC, en raison d'une porosité ouverte plus faible pour le lot FaC, les porosités fermées étant similaires pour ces deux lots. Les agglomérats restent néanmoins visibles dans la microstructure de la pastille.

Après préparation du milieu granulaire selon la voie Frewitt, la densité des pastilles n'est pas modifiée pour le lot FaC alors qu'elle diminue pour le lot GrC (Chapitre III. 3. 3). Comme évoqué en section 1. 2. 1. 4, la structure et la porosité des agglomérats sont similaires après application de la voie Frewitt. En outre, les granulométries laser (section 1. 2. 1. 1) ont montré que le lot GrC contenait plus de fines, et potentiellement plus d'ultrafines (de l'ordre du micromètre) que le lot FaC. Si cela est le cas, les agglomérats du lot GrC seraient donc composés de plus de fines/ultrafines que le lot FaC, ce qui entraînerait une densification des agglomérats sur eux-mêmes plus importante pour le lot GrC que pour le lot FaC. Cette densification des agglomérats sur eux-mêmes, agglomérats visibles sur les observations céramographiques (Figure IV.19), engendrerait alors une porosité ouverte plus importante, ce qui justifierait les microstructures obtenues pour les pastilles [Ndiaye 2006]. Des granulométries laser en voie liquide après application d'ultrasons aux poudres permettraient de déterminer la taille et la quantité d'ultrafines présentes dans les différents échantillons. Enfin, le taux d'agrégation joue également un impact sur la densification des pastilles [Liu et al. 1999]. Les conditions de broyage étant différentes entre les deux lots, le taux d'agrégation peut alors être différent et impacter la densification. Pour finir, la présence d'impuretés carbonées dans la chamotte du lot GrC peut également entraîner de la porosité lors du frittage.

À noter néanmoins que les pastilles issues du lot FaC possèdent une densité en accord avec les spécifications généralement requises pour du MOX (densité > 94% $m_v$ ,th) contrairement aux pastilles issues du lot GrC qui possèdent une très faible densité.

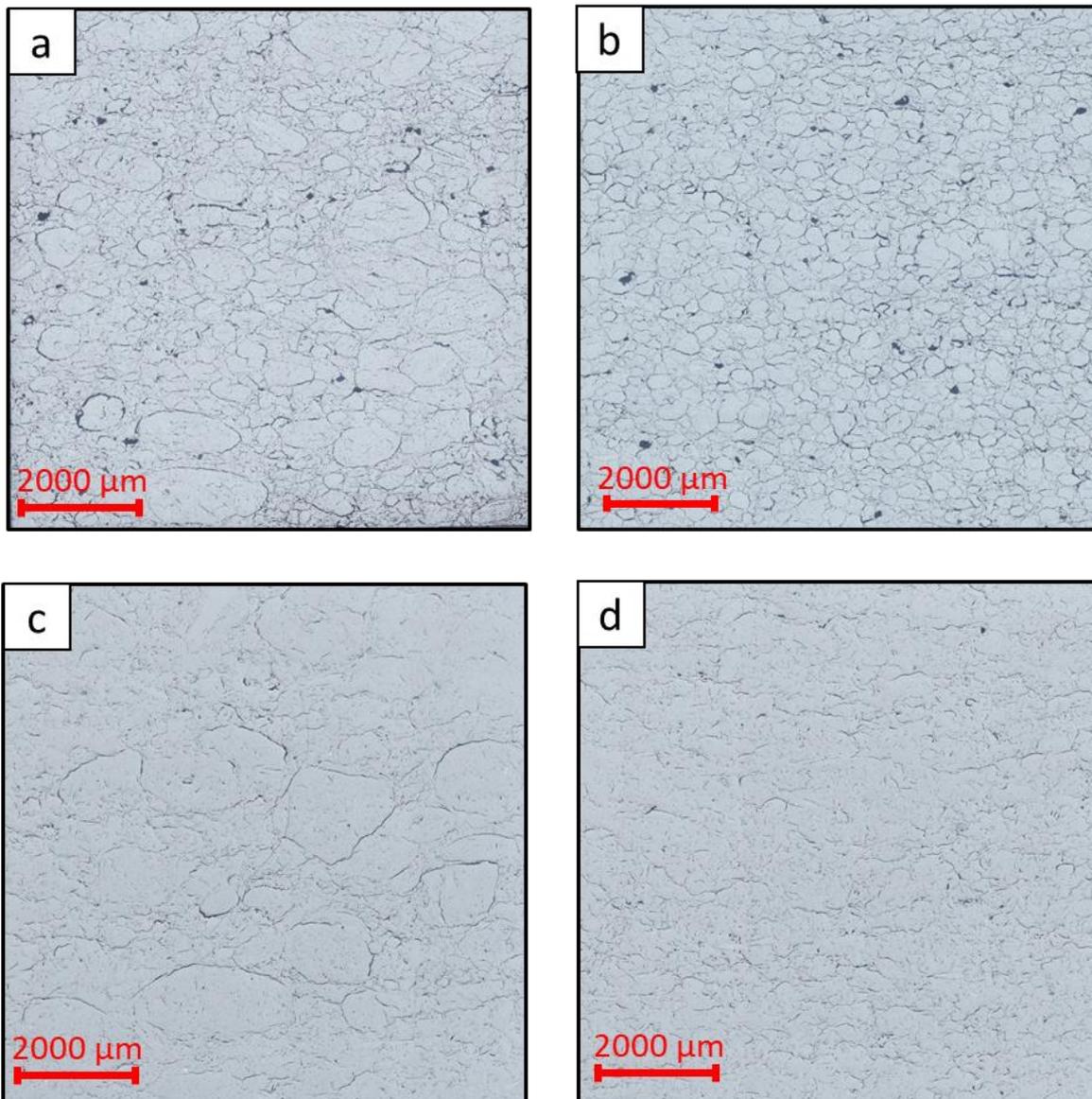


Figure IV.19 : Microstructure des pastilles après frittage pour les poudres lubrifiées  
(a) GrC-PB-L, (b) GrC-Frew250-BL, (c) FaC-PB-L et (d) FaC-Frew250-BL (microscopie optique)

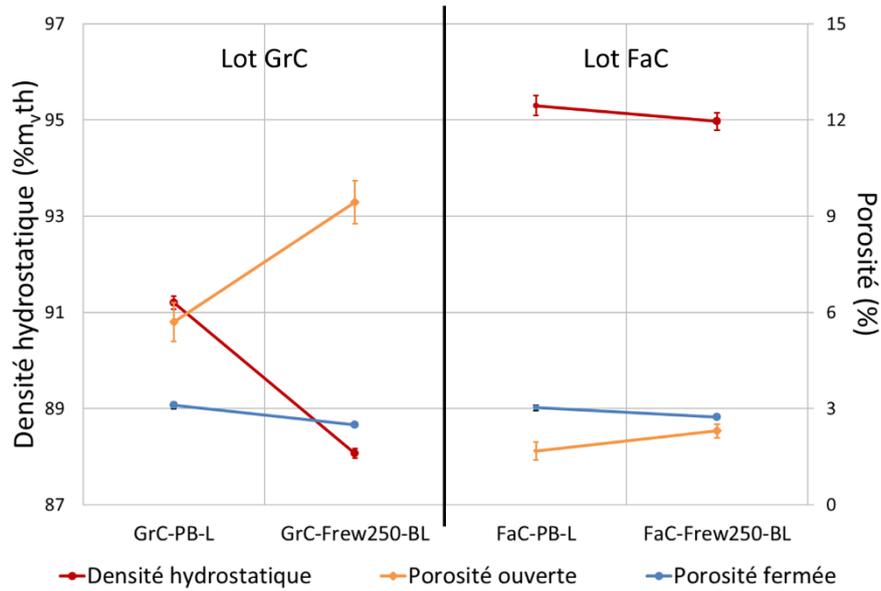


Figure IV.20 : Valeurs de la densité hydrostatique et des porosités des pastilles frittées pour les poudres lubrifiées

## 1. 5. CONCLUSION

L'objectif de cette partie était de comparer l'impact de la préparation du milieu granulaire Frewitt avec un tamis de 250  $\mu\text{m}$  sur deux lots de poudre broyée. Il s'agissait également d'étudier plus précisément l'impact de chacune des étapes intermédiaires de la voie Frewitt. Les principales conclusions sont les suivantes :

- impact de la méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt sur des poudres broyées différentes :
  - o la voie Frewitt permet d'obtenir des poudres avec des caractéristiques et des propriétés similaires. En effet, les distributions granulométriques, l'étendue granulométrique et l'élongation des agglomérats sont proches pour les deux poudres finales obtenues. Cela permet aussi d'obtenir deux propriétés rhéologiques semblables : l'écoulement dynamique et la perméabilité. Ceci montre une certaine robustesse de cette méthode de préparation du milieu granulaire,
  - o certaines différences, dues notamment au broyage, restent néanmoins observées bien qu'atténuées grâce à cette méthode de préparation du milieu granulaire. Par exemple, la poudre broyée et la poudre finale du lot FaC contiennent plus de fines, leurs agglomérats sont plus anguleux et elles possèdent de meilleures caractéristiques mécaniques par rapport aux poudres du lot GrC. Ces différences se traduisent par des résultats différents sur la mise en écoulement et l'arrangement initial des agglomérats.
- influence des étapes intermédiaires de la méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt :
  - o la destruction des gros agglomérats par tamisage/forçage diminue la taille des agglomérats et l'étendue granulométrique via des phénomènes de fragmentation et d'abrasion. La morphologie des agglomérats n'est pas significativement modifiée. Cette étape permet également d'améliorer significativement la résistance mécanique des agglomérats à l'écrasement et à l'abrasion. Cette étape ne semble pas impacter la

mise en écoulement mais semble dégrader l'écoulement dynamique. La perméabilité du lit de poudre n'est pas modifiée mais la propension au tassement semble plus élevée,

- le brassage et la lubrification permettent de diminuer la quantité de fines et d'obtenir des agglomérats plus sphériques grâce aux phénomènes d'agglomération et de sphéroïdisation. Ces étapes augmentent également la résistance à la rupture des agglomérats mais de manière moins significative que l'étape de tamisage/forçage. Ces étapes permettent également d'améliorer la mise en écoulement, l'écoulement dynamique et les propriétés du lit d'agglomérats.
- enfin, l'observation de la structure des agglomérats et la compacité des agglomérats ont permis d'apprendre que les agglomérats issus du broyage sont composés de parties denses qui ne sont pas modifiées au cours de la voie Frewitt.

La méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt semble donc relativement robuste : les poudres issues de cette voie possèdent des caractéristiques semblables malgré des caractéristiques initiales différentes. Elle permet également d'améliorer les caractéristiques physiques et les propriétés rhéologiques des poudres.

## 2. LIEN ENTRE LES CARACTÉRISTIQUES DES POUDRES ET LEURS PROPRIÉTÉS D'ÉCOULEMENT

---

L'objectif de cette partie est d'évaluer l'importance relative des caractéristiques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques et d'étudier la possibilité d'établir des lois prédictives. Pour ce faire, une analyse par régression linéaire multiple est réalisée.

### 2. 1. DÉFINITIONS ET NOTATIONS

L'objectif de la régression linéaire multiple est d'établir mathématiquement le lien entre des variables indépendantes et une variable dépendante, afin de prédire la variable dépendante grâce aux variables indépendantes [Frost 2019]. Ce lien mathématique est exprimé sous forme linéaire :

$$Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \dots + \beta_k X_k + \varepsilon \quad (\text{Équation IV.18})$$

où  $Y$  est la variable dépendante (variable à expliquer ou prédire),  $X_i$  sont les variables indépendantes (variables incluses dans le modèle pour expliquer ou prédire la variable dépendante),  $\beta_i$  sont les coefficients et  $\varepsilon$  est l'erreur ne pouvant être expliquée par le modèle.

Afin de pouvoir comparer et interpréter les coefficients de la régression, les variables indépendantes sont normalisées selon l'équation [Bring 1994] :

$$X_{normalisé,i} = \frac{X_i - \mu(X_i)}{\sigma(X_i)} \quad (\text{Équation IV.19})$$

où  $X_{normalisé,i}$  correspond à la variable indépendante normalisée,  $X_i$  correspond à la variable indépendante (non normalisée),  $\mu(X_i)$  et  $\sigma(X_i)$  désignent la moyenne et l'écart-type de la variable indépendante  $X_i$ , respectivement. Les coefficients obtenus par régression linéaire multiple sont alors également normalisés, ce qui permet de comparer l'impact relatif des différentes variables indépendantes.

Cependant, les différentes variables indépendantes ( $X_i$ ) ne permettent pas toujours d'expliquer la variable dépendante étudiée ( $Y$ ) de manière significative. Afin de s'assurer que les variables indépendantes ont une influence notable sur la variable dépendante, des tests d'hypothèses statistiques sont réalisés [Schiller et al. 2013]. Pour cela, une hypothèse, appelée hypothèse nulle et notée  $H_0$ , est formulée. Cette dernière est alors acceptée ou rejetée. Il existe alors deux types d'erreur : soit l'hypothèse est rejetée alors qu'elle est vraie (erreur de type I), soit l'hypothèse est acceptée alors qu'elle devrait être rejetée (erreur de type II). Ces erreurs doivent être minimisées afin de garantir la validité du test d'hypothèse. Un niveau de significativité est alors défini et correspond à la probabilité maximale acceptée de commettre une erreur de type I. Cette probabilité est notée valeur-p (« p-value ») [Wasserstein and Lazar 2016]. Un niveau de significativité de 0,05 est généralement choisi et signifie qu'il y a 5% de chance de commettre une erreur de type I (rejeter l'hypothèse nulle alors qu'elle est vraie). Lorsque la valeur-p est inférieure au niveau de significativité, l'hypothèse nulle est rejetée alors que si la valeur-p est supérieure au niveau de significativité, l'hypothèse nulle est acceptée. Dans le cas de cette étude par régression linéaire multiple, l'hypothèse nulle  $H_0$  pour chaque variable indépendante est : « il n'y a pas de relation linéaire entre la variable indépendante et la variable dépendante » [Frost 2019]. Le niveau de significativité est fixé à 0,05. Lorsque la valeur-p d'une variable indépendante est inférieure à 0,05, cette variable est significative et permet d'expliquer (en partie) la variable dépendante.

De plus, le modèle de régression linéaire multiple doit être précis et ne doit pas être biaisé. Pour s'en assurer, les résidus ainsi que le coefficient de détermination ajusté  $R_{ajusté}^2$  sont analysés.

Les résidus correspondent à la différence entre les valeurs observées (dans le cas présent, les valeurs expérimentales) et les valeurs prédites par le modèle (valeurs calculées à partir du modèle de régression). Ils représentent donc l'erreur dans le modèle [Frost 2019]. Les résidus permettent de vérifier que le modèle n'est pas biaisé. En effet, les résidus doivent être répartis de manière aléatoire, c'est-à-dire qu'ils doivent être répartis aléatoirement autour de zéro.

Le coefficient de détermination ajusté  $R_{ajusté}^2$  est utilisé, plutôt que le coefficient de détermination  $R^2$ . Ils sont calculés à partir des relations suivantes [Wooldridge 1991] :

$$R^2 = 1 - \frac{SSR}{SST} \quad \text{et} \quad R_{ajusté}^2 = 1 - \frac{SSR/(T - K - 1)}{SST/(T - 1)} \quad (\text{Équation IV.20})$$

avec  $SSR$  la somme des carrés des résidus,  $SST$  la somme totale des carrés de la régression (somme des carrés des différences entre les valeurs expérimentales et la moyenne de la variable dépendante),  $T$  le nombre de valeurs de la variable dépendante étudiée et  $K$  le nombre de variables indépendantes prises en compte dans le modèle.

Le coefficient de détermination  $R^2$  présente certaines limites [Frost 2019]. Il ne garantit pas que le modèle de régression obtenu soit précis. De petites valeurs de  $R^2$  ne sont pas toujours problématiques, de même que des valeurs élevées ne sont pas systématiquement bonnes. Lors de l'ajout de variables indépendantes dans un modèle de régression linéaire multiple, le  $R^2$  augmente systématiquement. Cependant, en incluant un nombre de variables indépendantes trop important, le modèle peut être sur-ajusté, ce qui diminue la précision du modèle. C'est pourquoi le coefficient de détermination ajusté  $R_{ajusté}^2$  est fréquemment utilisé. En effet, il permet d'ajuster le nombre de variables indépendantes à prendre en compte pour la régression linéaire multiple. Sa valeur augmente si la variable indépendante ajoutée permet d'expliquer significativement l'évolution de la variable dépendante. Dans le cas contraire, il diminue.

## 2. 2. DÉMARCHE

Les analyses par régression linéaire multiple sont effectuées à partir des résultats obtenus pour les différentes poudres disponibles en quantité suffisante : GrC-PB, GrC-PB-L, GrC-MeV2000-L, GrC-MeV4000-L, GrC-Frew250-L, GrC-Frew500-L, FaC-PB, FaC-PB-L, FaC-Frew250, FaC-Frew250-B et FaC-Frew250-L. Cela représente donc un total de 11 échantillons, ce qui reste faible compte tenu du nombre de variables indépendantes  $X_i$  disponibles (caractéristiques physiques des poudres).

Différentes caractéristiques physiques des poudres, qui seront considérées comme les variables indépendantes ( $X_i$ ) de la régression linéaire multiple, sont prises en compte :

- la proportion de fines à l'aide du  $d_{10}$ ,
- la largeur de l'étendue granulométrique à l'aide du Span,
- la forme des agglomérats à l'aide du  $SF_{50}$  de l'élongation,
- l'angularité des agglomérats à l'aide du  $SF_{50}$  de la circularité.

Les propriétés rhéologiques étudiées, considérées comme les variables dépendantes ( $Y$ ) dans la régression linéaire multiple, sont les suivantes :

- l'indice de coulabilité  $ff_c$  et l'angle de frottement interne AIF à 3 kPa,
- le FRI obtenu à l'aide du test VFR,
- la perméabilité,
- l'indice de Carr,
- la compressibilité à 15 kPa.

Le diamètre d'écoulement spontané n'est pas étudié en raison de son manque de sensibilité et son caractère discontinu et le BFE n'est pas étudié compte tenu des problèmes de répétabilité de mesure décrits précédemment (section 1. 3. 2).

La méthode utilisée pour établir les régressions linéaires multiples est la réduction du modèle [Frost 2019]. Une régression linéaire avec les quatre variables indépendantes est réalisée. La variable indépendante ayant la valeur-p la plus élevée est supprimée jusqu'à ce que chaque variable indépendante soit significative (valeur-p < 0,05). De plus, le coefficient de détermination ajusté  $R_{ajusté}^2$  est évalué, le modèle ayant ce coefficient maximal étant le plus précis. Enfin, une analyse des résidus est réalisée afin de s'assurer que le modèle ne soit pas biaisé : les résidus doivent être répartis aléatoirement autour de zéro. Néanmoins, il est à noter que certaines variables indépendantes peuvent être conservées dans le modèle même si leurs valeurs-p sont supérieures à 0,05. En effet, il est important de conserver le sens physique des modèles établis et une variable dépendante peut être conservée s'il est généralement admis dans la littérature qu'elle impacte la variable dépendante étudiée.

Pour finir, la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales est présentée, avec des barres d'erreur représentant les intervalles de confiance à 95%, et le modèle ainsi obtenu est analysé.

## 2. 3. ANALYSE PAR RÉGRESSION LINÉAIRE MULTIPLE

### 2. 3. 1. Mise en écoulement (transition statique/dynamique)

Le lien entre les caractéristiques physiques des poudres et leur mise en écoulement est réalisé à partir des résultats obtenus à l'aide des tests de cisaillement : l'indice de coulabilité  $ff_c$  et l'angle de frottement interne AIF à 3 kPa sont analysés. L'analyse de la cohésion  $\tau_c$  ne sera pas présentée car elle aboutit à des résultats similaires à ceux de l'indice de coulabilité  $ff_c$ .

Le Tableau IV.8 présente les régressions linéaires multiples réalisées avec différents nombres de variables indépendantes pour le  $ff_c$  à 3 kPa, avec les valeurs-p correspondantes et le  $R_{ajusté}^2$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 3 variables indépendantes est retenue : le  $R_{ajusté}^2$  est maximal, bien que les valeurs-p du  $d_{10}$  et du  $SF_{50, \text{élongation}}$  soient supérieures à 0,05. Cependant, selon la bibliographie [Madian 2019; Shinohara and Golman 2002], il est communément admis que ces paramètres impactent le  $ff_c$  et ceux-ci sont donc conservés.

Tableau IV.8 : Régression linéaire multiple pour le  $ff_c$  à 3 kPa

Variables indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du $SF_{50}$ élongation	Valeur-p du $SF_{50}$ circularité	$R_{ajusté}^2$
4 paramètres	0,293	0,026	0,133	0,695	0,419
3 paramètres	<b>0,280</b>	<b>0,017</b>	<b>0,081</b>	<b>*</b>	<b>0,488</b>
2 paramètres	<b>*</b>	0,014	0,115	<b>*</b>	0,464

\* : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

Le modèle de régression linéaire multiple obtenu pour le  $ff_c$  à 3 kPa est le suivant :

$$ff_c = 3,80 + 0,41 d_{10} - 1,09 \text{ Span} - 0,74 SF_{50, \text{élongation}} \quad (\text{Équation IV.21})$$

D'après ce modèle, lorsque le  $d_{10}$  augmente (diminution de la proportion de fines), le Span diminue (distribution granulométrique plus étroite) et le  $SF_{50}$  de l'élongation diminue (agglomérats moins allongés), l'indice de coulabilité  $ff_c$  augmente. La mise en écoulement est donc plus aisée. En effet, lorsque la poudre contient moins de fines, la largeur de l'étendue granulométrique est plus étroite et les agglomérats sont moins allongés, le nombre de points de contact entre les agglomérats est moins important et la cohésivité diminue, ce qui se traduit par une meilleure coulabilité (augmentation du  $ff_c$ ). La largeur de l'étendue granulométrique semble avoir le plus d'impact sur la mise en écoulement (le coefficient  $\beta_i$  du Span étant le plus élevé).

La Figure IV.21 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs mesurées expérimentalement (barres d'erreur représentant l'intervalle de confiance à 95%) ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. L'analyse des résidus montre que ces derniers ne sont pas répartis aléatoirement. Il semble donc que le modèle obtenu à partir de cette régression linéaire multiple soit biaisé. Cela peut être dû à une dépendance non linéaire à l'une des variables indépendantes considérées, à une variable indépendante non prise en compte dans le modèle, à un terme polynomial ou d'interaction entre deux variables indépendantes manquant. En conséquence, le modèle présenté par l'(Équation IV.21 et les interprétations décrites dans le paragraphe précédent sont à prendre avec précaution.

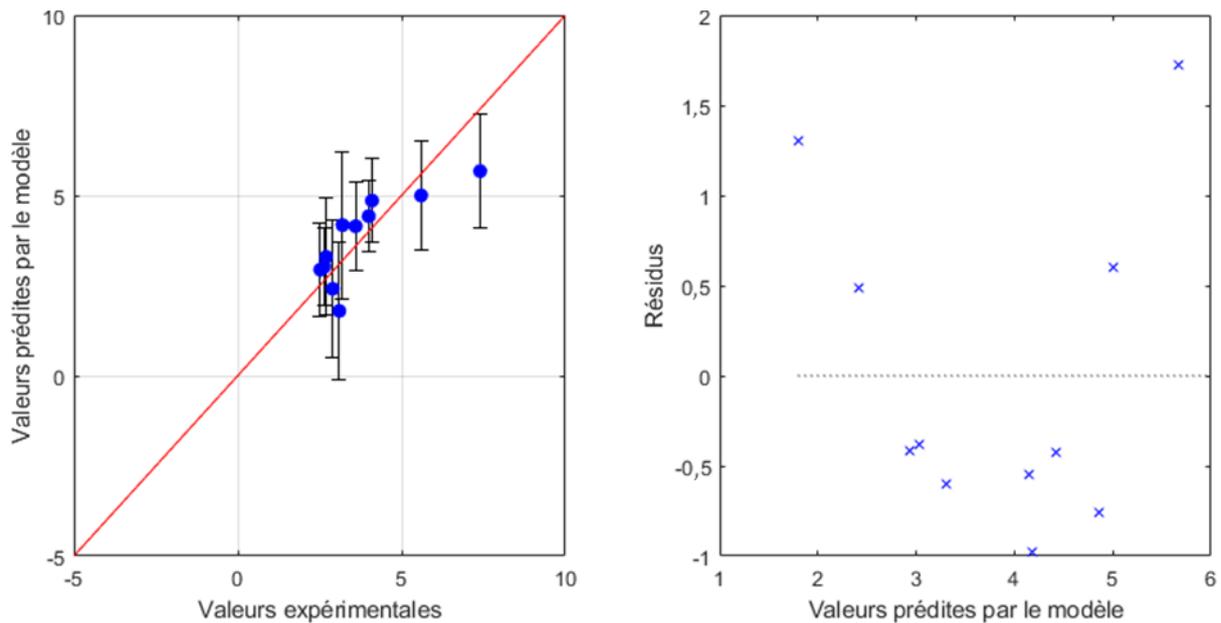


Figure IV.21 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le  $f_{fc}$  à 3 kPa

Concernant l'angle de frottement interne AIF à 3 kPa, le Tableau IV.9 présente les régressions linéaires multiples réalisées avec différents nombres de variables indépendantes, avec les valeurs-p correspondantes et le  $R_{ajusté}^2$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 2 variables indépendantes est retenue : le  $R_{ajusté}^2$  est maximal, bien que la valeur-p du  $SF_{50}$  de l'élongation soit supérieure à 0,05. De même que pour le  $f_{fc}$ , l'élongation est conservée dans ce modèle dans la mesure où il est généralement admis que la forme des agglomérats présente un impact significatif sur l'angle de frottement interne AIF [Shinohara and Golman 2002].

Tableau IV.9 : Régression linéaire multiple pour l'AIF à 3 kPa

Variables indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du $SF_{50}$ élongation	Valeur-p du $SF_{50}$ circularité	$R_{ajusté}^2$
4 paramètres	0,682	0,102	0,401	0,812	0,093
3 paramètres	0,684	0,071	0,183	✘	0,215
2 paramètres	✘	<b>0,057</b>	<b>0,125</b>	✘	<b>0,295</b>
1 paramètre	✘	0,137	✘	✘	0,143

✘ : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

Le modèle issu de la régression linéaire multiple donne :

$$AIF = 6,45 + 3,13 \text{ Span} + 2,42 SF_{50, \text{élongation}} \quad (\text{Équation IV.22})$$

D'après ce modèle, lorsque le Span diminue (distribution granulométrique plus étroite) et le  $SF_{50}$  de l'élongation diminue (agglomérats moins allongés), l'angle de frottement interne diminue, ce qui signifie que les frottements poudre-poudre (forces frictionnelles) diminuent. Ce résultat semble en accord avec la diminution du nombre de points de contact et des forces de friction entre les agglomérats.

La Figure IV.22 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (barres d'erreur représentant l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. Les résidus semblent être répartis aléatoirement autour de zéro. Le modèle obtenu à partir de cette régression linéaire multiple ne semble donc pas biaisé.

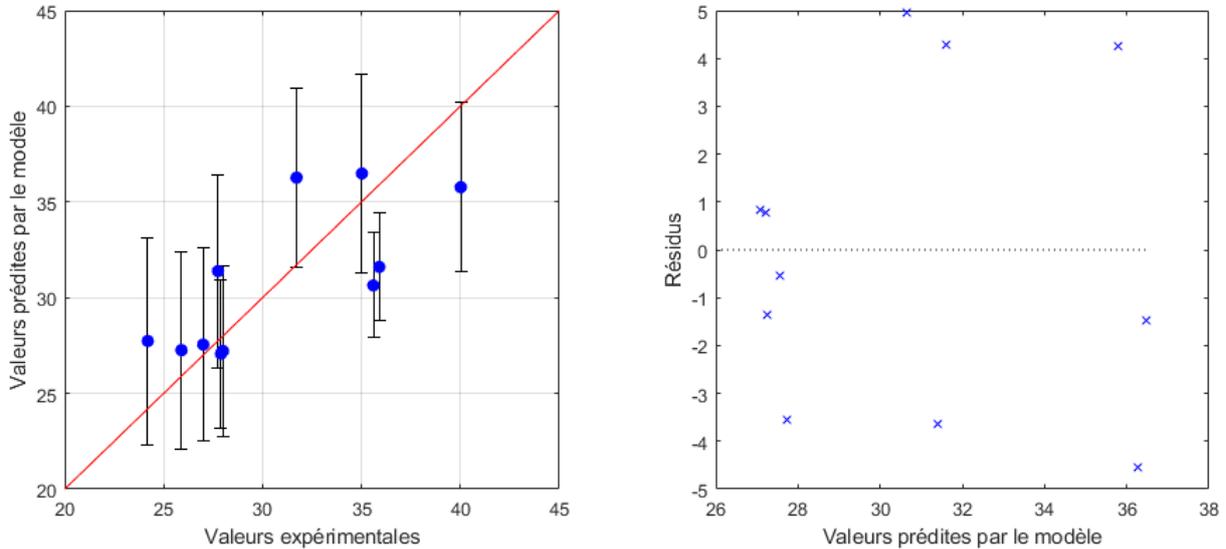


Figure IV.22 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le AIF à 3 kPa

En complément de cette première analyse basée sur les propriétés physiques des poudres, une analyse des caractéristiques mécaniques a été menée pour l'indice de coulabilité  $ff_c$  et l'angle de frottement interne AIF. Seuls les résultats concernant l'angle de frottement interne AIF seront présentés. Un lien entre ce dernier et le taux d'abrasion est observé. La valeur-p du taux d'abrasion est de 0,01 et le  $R_{ajusté}^2$  est de 0,51. La Figure IV.23 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (barres d'erreur représentant l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. Les résidus sont répartis aléatoirement.

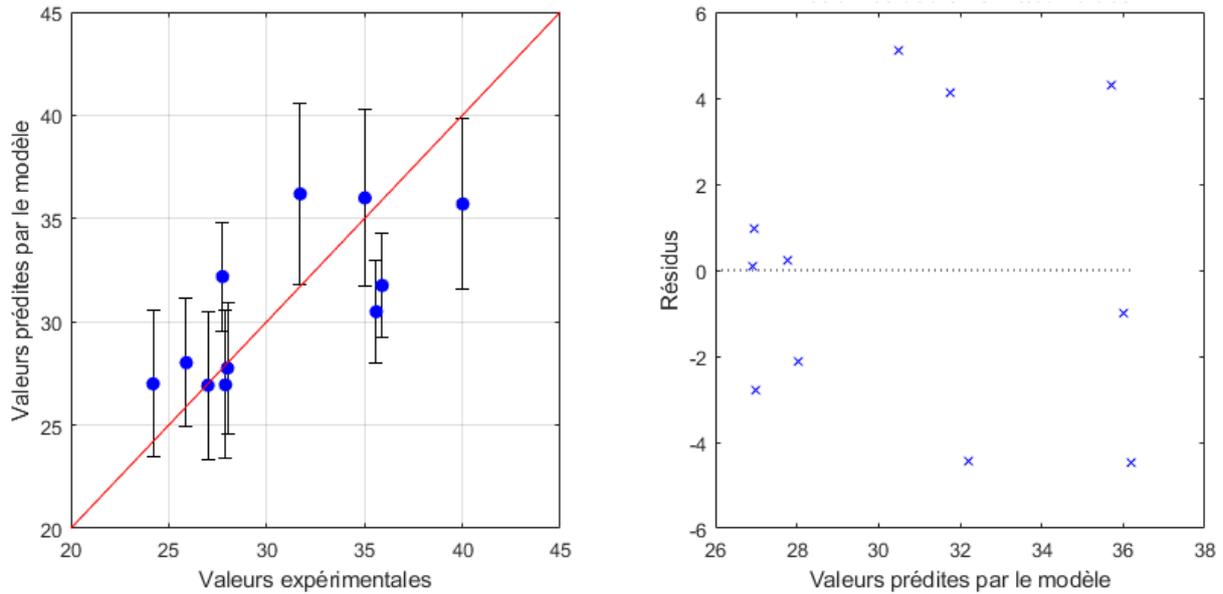


Figure IV.23 : Valeurs calculées par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et variation de l'AIF à 3 kPa en fonction du taux d'abrasion (à droite)

La régression linéaire donne :

$$AIF = 30,82 + 3,80 \text{ Taux d'abrasion} \quad (\text{Équation IV.23})$$

D'après ce modèle, lorsque le taux d'abrasion augmente, l'angle de frottement interne augmente. Ceci laisse supposer que des phénomènes d'abrasion ont lieu dans la zone de cisaillement lors du test, bien que cela n'ait pas été observé lors de l'étude de destructivité (Chapitre II. 6. 2. 1. 4). Dans ce cas, les caractéristiques physiques des poudres peuvent être modifiées au cours du test et ne correspondent plus exactement à celles mesurées avant d'effectuer le test.

### 2. 3. 2. Écoulement dynamique

Le lien entre les caractéristiques physiques des poudres et l'écoulement dynamique est réalisé à partir des résultats obtenus à l'aide du test VFR. Seul le FRI est analysé compte tenu des problèmes de répétabilité obtenus pour les résultats de BFE (Chapitre IV. 1. 3. 2).

Le Tableau IV.10 présente les régressions linéaires multiple réalisées avec différents nombres de variables indépendantes pour le FRI, avec les valeurs-p correspondantes et le  $R_{ajusté}^2$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 3 variables indépendantes est retenue : le  $R_{ajusté}^2$  est maximal et les valeurs-p de chaque variable indépendante sont inférieures à 0,05.

Tableau IV.10 : Régression linéaire multiple pour le FRI

Variabiles indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du $SF_{50}$ élongation	Valeur-p du $SF_{50}$ circularité	$R^2_{ajusté}$
4 paramètres	0,062	0,058	0,0055	0,900	0,529
3 paramètres	<b>0,043</b>	<b>0,040</b>	<b>0,015</b>	✕	<b>0,595</b>
2 paramètres	✕	0,064	0,068	✕	0,336

✕ : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

Le modèle obtenu par régression linéaire multiple pour le FRI donne :

$$FRI = 1,20 - 0,09 d_{10} + 0,09 Span + 0,11 SF_{50,élongation} \quad (\text{Équation IV.24})$$

D'après ce modèle, lorsque le  $d_{10}$  augmente (diminution de la proportion de fines), le Span diminue (distribution granulométrique plus étroite) et le  $SF_{50}$  de l'élongation diminue (agglomérats moins allongés), le FRI diminue. L'écoulement dynamique est donc amélioré, ce qui est en accord avec les observations faites lors de cette étude. En effet, la diminution des fines, de la largeur de l'étendue granulométrique et de l'élongation des agglomérats permet de réduire les forces cohésives et frictionnelles et donc d'améliorer la coulabilité (diminution du FRI).

Les trois paramètres étudiés semblent impacter l'écoulement dynamique de manière pratiquement égale (coefficients relativement proches), bien que l'élongation des agglomérats semble légèrement plus importante.

La Figure IV.24 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (barres d'erreur représentant l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. L'analyse des résidus montre qu'ils sont répartis aléatoirement autour de zéro. Le modèle obtenu à partir de cette régression linéaire multiple ne semble donc pas biaisé.

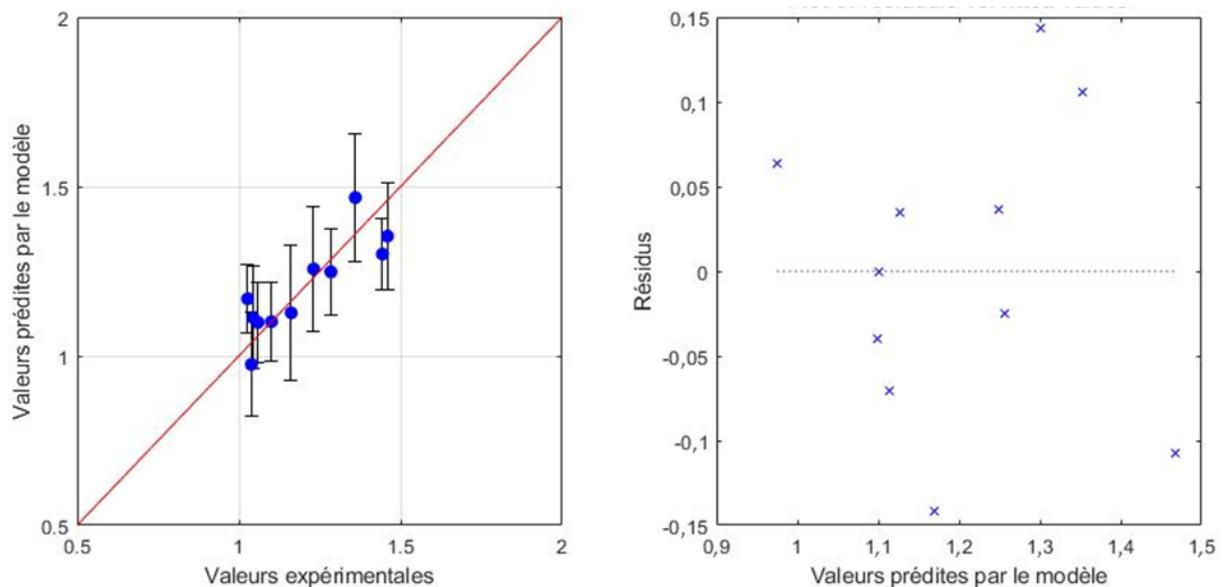


Figure IV.24 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour le FRI

### 2. 3. 3. Propriétés du lit de poudre

Le lien entre les caractéristiques physiques des poudres et les propriétés du lit de poudre est réalisé à partir des résultats obtenus de perméabilité dans un premier temps, puis de l'indice de Carr et des tests de compressibilité dans un second temps. L'analyse du rapport d'Hausner est similaire à celle de l'indice de Carr et ne sera donc pas présentée.

#### 2. 3. 3. 1. Perméabilité

L'analyse des résultats montre deux points aberrants. Ils ont donc été retirés des données pour réaliser ces régressions linéaires multiples à partir de 9 échantillons. Le Tableau IV.11 présente les régressions linéaires multiples effectuées avec différents nombres de variables indépendantes pour la perméabilité, les valeurs-p pour chacune d'entre elles et le  $R^2_{ajusté}$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 2 variables indépendantes est retenue : le  $R^2_{ajusté}$  n'est pas maximal, néanmoins, les valeurs-p des variables indépendantes sont plus significatives (plus proches de 0,05).

Tableau IV.11 : Régression linéaire multiple pour la perméabilité

Variabiles indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du SF <sub>50</sub> élongation	Valeur-p du SF <sub>50</sub> circularité	$R^2_{ajusté}$
4 paramètres	0,132	0,089	0,252	0,052	0,642
3 paramètres	0,054	0,149	✗	0,068	0,585
2 paramètres	<b>0,077</b>	✗	✗	<b>0,082</b>	<b>0,454</b>
1 paramètre	0,133	✗	✗	✗	0,192

✗ : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

Le modèle obtenu par régression linéaire multiple pour la perméabilité donne :

$$\text{Perméabilité} = 15,93 - 1,77 d_{10} - 1,74 SF_{50,circularité} \quad (\text{Équation IV.25})$$

D'après ce modèle, lorsque le  $d_{10}$  diminue (augmentation de la proportion de fines), et le SF<sub>50</sub> de la circularité diminue (agglomérats plus anguleux), la perméabilité augmente. Ce résultat est contre-intuitif. En effet, l'inverse serait attendu : une augmentation de la proportion de fines et des agglomérats plus anguleux entraîne une augmentation de la surface de frottement entre le gaz et les agglomérats, ce qui devrait provoquer une augmentation de la perte de charge. Ces caractéristiques physiques devraient alors augmenter la résistance au passage de l'air, ce qui signifie que la perméabilité devrait donc diminuer.

La Figure IV.25 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (barres d'erreur représentant l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. Les résidus semblent répartis aléatoirement autour de zéro.

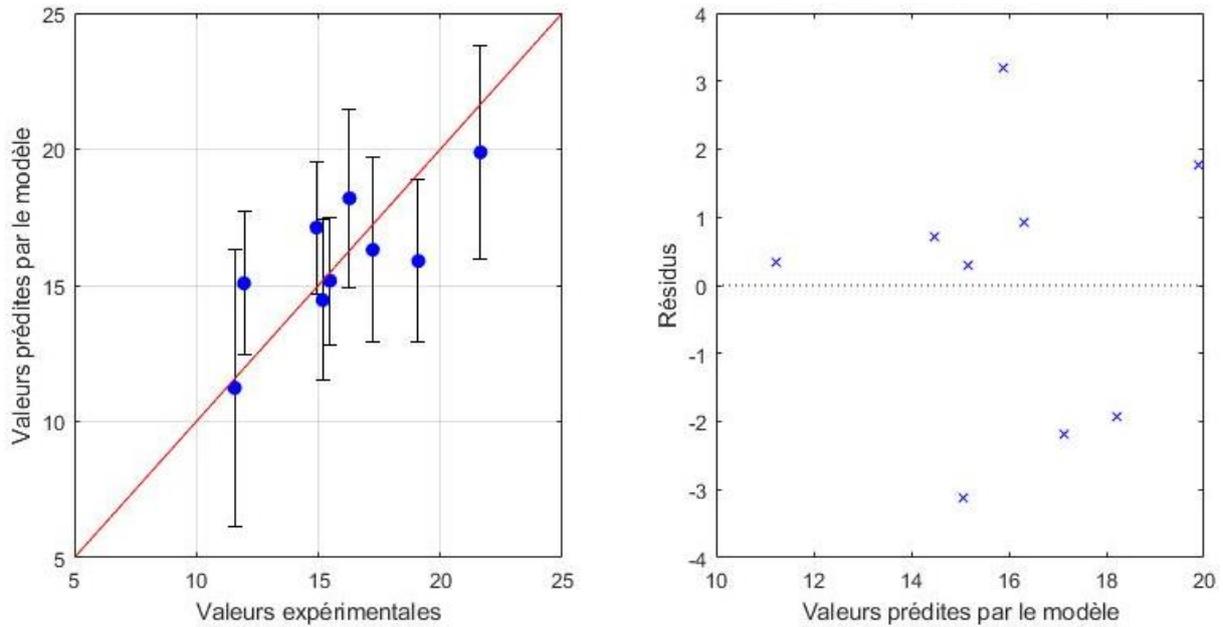


Figure IV.25 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour la perméabilité

Cependant, d'après la littérature, la perméabilité dépend du diamètre de Sauter  $d_{3,2}$  et de la sphéricité  $\Psi$  au carré [Pinto et al. 2009] :

$$k = \frac{(d_{3,2}\Psi)^2 \varepsilon^3}{150(1 - \varepsilon)^2} \quad (\text{Équation IV.26})$$

Dans notre cas, une régression linéaire multiple en fonction du diamètre de Sauter  $d_{3,2}$  au carré et du SF<sub>50</sub> de la circularité au carré n'améliore pas le modèle. Le modèle de régression linéaire multiple ne permet donc pas d'expliquer l'évolution de la perméabilité en fonction des caractéristiques étudiées. Un autre modèle (vraisemblablement non linéaire) devrait être étudié. Il est à noter que l'Équation IV.26 montre un lien important entre la perméabilité et la porosité du lit de poudre ( $\varepsilon$ ). Pour des poudres contenant une plus grande proportion de fines ou des agglomérats allongés ou anguleux, les forces interparticulaires augmentent. Ceci se traduit généralement par une augmentation de la porosité du lit de poudre, en particulier lorsque celui-ci est soumis à de faibles contraintes de consolidation (Chapitre I. 2. 2. 3. 3). Par ailleurs, l'Équation IV.26 montre qu'une porosité de lit élevée se traduit pas une augmentation de la perméabilité. De plus, comme précisé précédemment, une augmentation de la proportion de fines et des agglomérats plus anguleux entraîne une augmentation de la surface de frottement entre le gaz et les agglomérats, ce qui engendre une diminution de la perméabilité. Dans le cadre de ce travail, la contrainte normale appliquée pour mesurer la perméabilité des poudres étant faible (2 kPa), la porosité du lit de poudre dépend de l'arrangement des agglomérats (porosité  $\varepsilon$ ) et son impact peut alors être important. Cette porosité peut donc être prédominante sur les frottements entre le gaz et les agglomérats et entraîner une augmentation de la perméabilité. Cela peut également justifier que la régression linéaire multiple, en tenant compte uniquement de la proportion de fines et de la circularité des agglomérats, ne s'applique pas dans ce cas.

### 2. 3. 3. 2. Arrangement d'un lit d'agglomérats (indice de Carr/rapport d'Hausner et compressibilité)

#### 2. 3. 3. 2. 1. Indice de Carr

Le Tableau IV.12 présente les régressions linéaires multiples réalisées avec différents nombres de variables indépendantes pour l'indice de Carr, les valeurs-p correspondantes et le  $R^2_{ajusté}$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 3 variables indépendantes est retenue : le  $R^2_{ajusté}$  est maximal et les valeurs-p de chaque variable indépendante sont inférieures à 0,05.

Tableau IV.12 : Régression linéaire multiple pour l'indice de Carr

Variabiles indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du $SF_{50}$ élongation	Valeur-p du $SF_{50}$ circularité	$R^2_{ajusté}$
4 paramètres	0,020	0,018	0,057	0,566	0,652
3 paramètres	<b>0,014</b>	<b>0,013</b>	<b>0,032</b>	✘	<b>0,683</b>
2 paramètres	0,078	0,074	✘	✘	0,44

✘ : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

Le modèle obtenu par régression linéaire multiple donne :

$$\text{Indice de Carr} = 18,07 - 1,84 d_{10} + 1,89 \text{ Span} + 1,56 SF_{50,\text{élongation}} \quad (\text{Équation IV.27})$$

D'après ce modèle, lorsque le  $d_{10}$  augmente (diminution de la proportion de fines), le Span diminue (distribution granulométrique plus étroite) et le  $SF_{50}$  de l'élongation diminue (agglomérats moins allongés), l'indice de Carr diminue. En effet, lorsque le taux de fines diminue, la distribution granulométrique est plus étroite et les agglomérats sont moins allongés, les forces cohésives et frictionnelles diminuent. Ceci permet donc d'obtenir un arrangement initial du lit d'agglomérats plus compact et donc de diminuer l'indice de Carr.

Chacun des paramètres étudiés semble avoir un impact relativement fort sur l'arrangement des agglomérats. Le taux de fines et la largeur de l'étendue granulométrique semblent cependant avoir un impact légèrement plus important que l'élongation des agglomérats.

La Figure IV.26 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle et les valeurs expérimentales (barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. L'analyse des résidus montre que ces derniers sont répartis aléatoirement autour de zéro. Le modèle obtenu à partir de cette régression linéaire multiple ne semble donc pas biaisé.

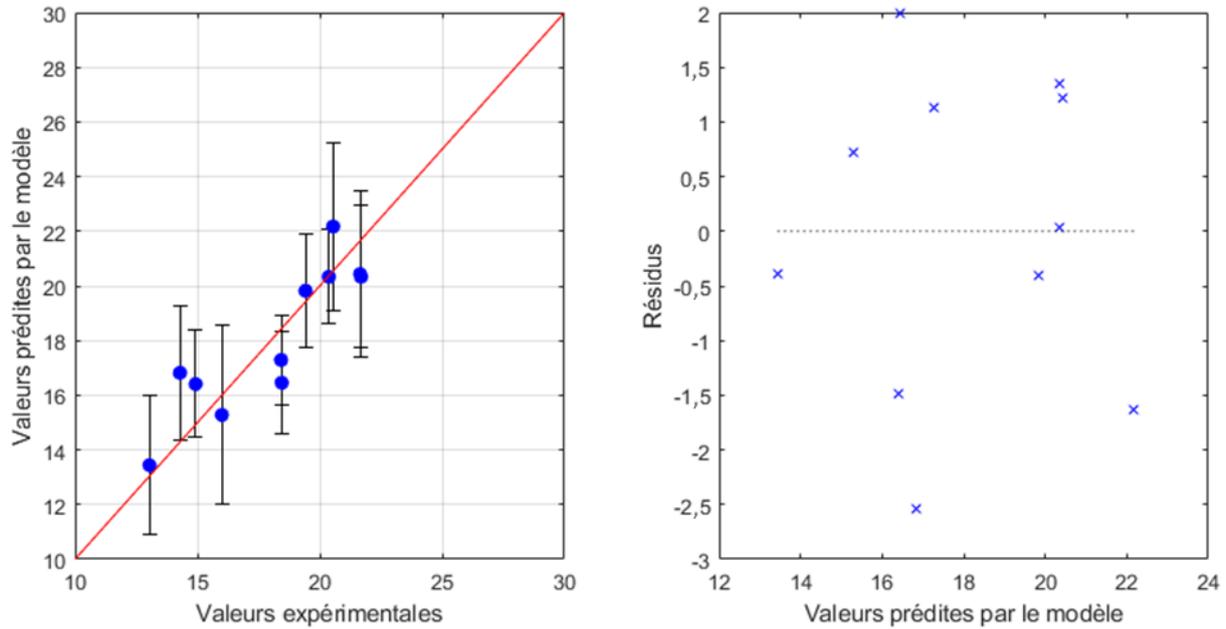


Figure IV.26 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour l'indice de Carr

### 2. 3. 3. 2. 2. Compressibilité à 15 kPa

Le Tableau IV.13 présente les régressions linéaires multiples réalisées avec différents nombres de variables indépendantes pour la compressibilité à 15 kPa, les valeurs-p correspondantes et le  $R^2_{ajusté}$  du modèle. La régression linéaire multiple avec 3 variables indépendantes est retenue : le  $R^2_{ajusté}$  n'est pas maximal mais la diminution par rapport à 4 paramètres est faible. Cependant, les valeurs-p des variables indépendantes sont plus proches de 0,05.

Tableau IV.13 : Régression linéaire multiple pour la compressibilité à 15 kPa

Variables indépendantes	Valeur-p du $d_{10}$	Valeur-p du Span	Valeur-p du $SF_{50}$ élongation	Valeur-p du $SF_{50}$ circularité	$R^2_{ajusté}$
4 paramètres	0,053	0,121	0,217	0,216	0,572
3 paramètres	<b>0,089</b>	<b>0,206</b>	<b>x</b>	<b>0,028</b>	<b>0,517</b>
2 paramètres	0,069	<b>x</b>	<b>x</b>	0,035	0,460

X : variable non retenue pour la régression linéaire multiple

La régression linéaire multiple pour la compressibilité à 15 kPa donne :

$$\text{Compressibilité} = 9,13 - 0,93 d_{10} + 0,66 \text{ Span} - 1,28 SF_{50, \text{circularité}} \quad (\text{Équation IV.28})$$

D'après le modèle, lorsque le  $d_{10}$  augmente (diminution de la proportion de fines), que le Span diminue (distribution granulométrique plus étroite), que le  $SF_{50}$  de la circularité augmente (agglomérats moins anguleux), la compressibilité diminue. De même que pour l'indice de Carr, ces modifications diminuent les forces cohésives et frictionnelles. L'arrangement initial du lit d'agglomérats est donc plus compact, ce qui diminue la compressibilité. Compte tenu des coefficients  $\beta_i$ , la circularité des

agglomérats semble avoir un impact plus important que le taux de fines et que la largeur de l'étendue granulométrique.

La Figure IV.27 présente la répartition des valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%), ainsi que les résidus sur les valeurs prédites. Les résidus semblent être répartis aléatoirement autour de zéro. Le modèle obtenu à partir de cette régression linéaire multiple ne semble donc pas biaisé.

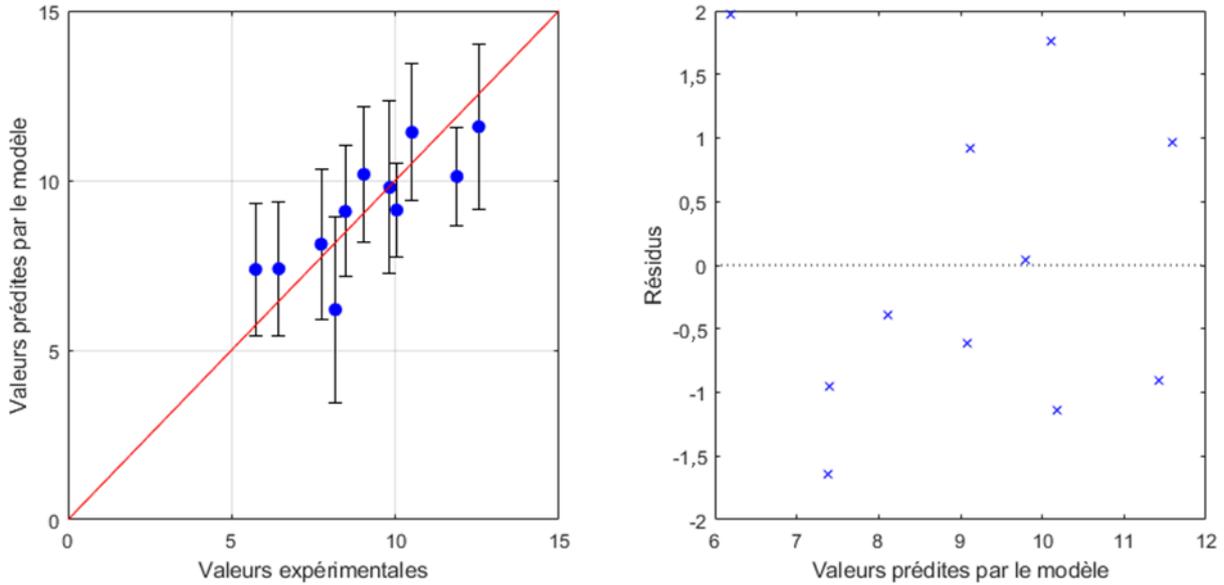


Figure IV.27 : Valeurs prédites par le modèle en fonction des valeurs expérimentales (à gauche) et analyse des résidus (à droite) pour la compressibilité à 15 kPa

## 2. 4. CONCLUSION

L'évaluation de l'importance relative des caractéristiques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques et des lois prédictives ont pu être établies par régression linéaire multiple. Les principales conclusions sont les suivantes :

- mise en écoulement :
  - indice de coulabilité  $ff_c$  : la diminution de la proportion de fines, une étendue granulométrique plus étroite et des agglomérats moins allongés permettent d'augmenter l'indice de coulabilité  $ff_c$  et donc d'améliorer la mise en écoulement. La largeur de l'étendue granulométrique semble avoir le plus d'impact sur la mise en écoulement. Cependant, ce modèle semble biaisé (résidus non répartis aléatoirement) et un impact des propriétés mécaniques (taux d'abrasion) sur l'indice de coulabilité  $ff_c$  a été observé. Ces interprétations sont donc à prendre avec précaution,
  - angle de frottement interne AIF : une étendue granulométrique plus étroite et des agglomérats moins allongés permettent de diminuer l'angle de frottement interne. Cependant, un impact des propriétés mécaniques (taux d'abrasion) sur l'angle de frottement interne AIF a été observé. Ces interprétations sont donc à prendre avec précaution.
- écoulement dynamique (FRI) : la diminution de la proportion de fines, une étendue granulométrique plus étroite et des agglomérats moins allongés permettent de diminuer le FRI et donc d'améliorer l'écoulement dynamique. Ces paramètres semblent impacter l'écoulement dynamique de manière quasiment égale, bien que l'élongation des agglomérats semble un facteur légèrement plus important,

- arrangement du lit d'agglomérats (indice de Carr et compressibilité) : la diminution de la proportion de fines, une étendue granulométrique plus étroite et des agglomérats moins allongés ou moins anguleux permettent d'obtenir un arrangement initial du lit d'agglomérats plus compact et donc de diminuer l'indice de Carr et la compressibilité. Pour l'indice de Carr, le taux de fines et la largeur de l'étendue granulométrique semblent cependant avoir un impact légèrement plus important que l'élongation des agglomérats. En revanche, la circularité des agglomérats semble avoir un impact légèrement plus important que le taux de fines et que la largeur de l'étendue granulométrique pour la compressibilité.

Pour la perméabilité, le lien entre les caractéristiques et les propriétés rhéologiques des poudres n'a pas pu être réalisé par régression linéaire multiple. En effet, cette propriété ne dépend pas linéairement de la taille des particules et de leur sphéricité. D'autres modèles tels que des modèles polynomiaux pourront donc par la suite être étudiés.

Il est à noter que le nombre d'échantillons pour effectuer cette analyse est faible (seulement 11 échantillons) et les plages de variation des valeurs dépendantes et indépendantes sont relativement faibles également. Par la suite, il serait donc nécessaire d'augmenter le nombre d'échantillons et d'obtenir une plus grande plage de variation des différentes variables. Pour ce faire, une étude en contrôlant les caractéristiques des poudres pourrait être envisagée. De plus, d'autres caractéristiques de poudres impactent également l'écoulement, telles que la rugosité de surface, la densité apparente, l'énergie de surface, etc. Quantifier ces caractéristiques permettrait une analyse plus complète du lien entre les caractéristiques des poudres et leur comportement rhéologique. Enfin, cette analyse a été effectuée à partir du  $d_{10}$  et du Span pour caractériser la granulométrie et du  $SF_{50}$  de l'élongation et de la circularité pour quantifier la morphologie. Ces paramètres ne permettent pas de traduire complètement l'ensemble des distributions (distribution de taille, de forme, etc.) à partir desquelles ils sont obtenus. Une analyse permettant de traduire l'ensemble de ces distributions serait donc nécessaire.

### 3. BILAN

---

L'objectif de ce chapitre était double : d'une part étudier l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire Frewitt sur deux lots de poudre broyée, d'autre part établir un lien entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés rhéologiques.

L'étude de l'impact de la voie Frewitt montre que cette méthode permet d'obtenir des poudres avec des caractéristiques et des propriétés similaires (distributions granulométrique, étendue granulométrique et élongation des agglomérats, écoulement dynamique et perméabilité). Cette méthode de préparation du milieu granulaire semble donc relativement robuste, ce qui est important lors d'une production à l'échelle industrielle. Cependant, certaines différences entre les poudres broyées initiales sont conservées au cours de ces étapes, comme le taux de fines, l'angularité des agglomérats et les caractéristiques mécaniques. La méthode permet cependant de réduire ces différences et dans tous les cas elle conduit à une amélioration notable des propriétés rhéologiques des poudres.

L'étude du lien entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés rhéologiques a permis de mettre en évidence différents impacts des caractéristiques de poudre. En effet, la diminution des fines, de la largeur de l'étendue granulométrique et de l'élongation des agglomérats permettent d'améliorer l'écoulement dynamique et l'arrangement du lit d'agglomérats. Cependant, différentes améliorations sont à envisager :

- augmenter le nombre d'échantillons,
- augmenter la plage de variation des caractéristiques physiques des poudres,

- prendre en compte davantage de caractéristiques des poudres,
- traduire l'ensemble des distributions granulométriques et morphologiques,
- tester d'autres modèles que la régression linéaire multiple.

## Fiche résumé du chapitre IV

### Influence des caractéristiques d'une poudre broyée sur celles obtenues après application de la voie Frewitt

**Objectif : comparer l'impact de la préparation du milieu granulaire Frewitt avec un tamis de 250 µm sur deux lots de poudres broyées différents**

**Après cette voie de préparation du milieu granulaire**

**Certaines différences sont gommées**

*Caractéristiques : distributions granulométrique, étendue granulométrique et élongation des agglomérats  
Propriétés rhéologiques : écoulement dynamique et perméabilité*

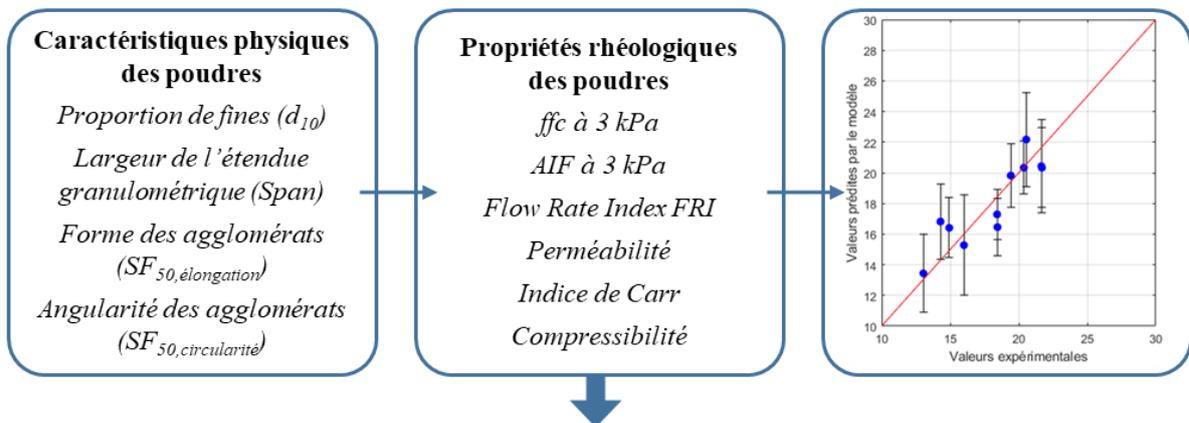
**Certaines différences sont maintenues bien qu'atténuées**

*Caractéristiques : proportion de fines, angularité des agglomérats, caractéristiques mécaniques  
Propriétés rhéologiques : mise en écoulement et arrangement initial des agglomérats*

### Lien entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés d'écoulement

**Objectif : évaluer l'importance relative des caractéristiques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques et étudier la possibilité d'établir des lois prédictives**

Étude par régression linéaire multiple :  $Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \dots + \beta_k X_k + \varepsilon$



**Premières propositions de lois prédictives pour 6 propriétés rhéologiques**





**CHAPITRE V : CALIBRATION DES  
PARAMÈTRES DE SIMULATION PAR  
LHS-KRIGEAGE-EGO POUR DES  
SIMULATIONS DEM**



# CHAPITRE V : CALIBRATION DES PARAMÈTRES DE SIMULATION PAR LHS-KRIGEAGE-EGO POUR DES SIMULATIONS DEM

---

*Ce chapitre présente une méthode de calibration des paramètres de simulations par LHS-Krigeage-EGO pour la réalisation de simulations DEM. Ces travaux ont été réalisés en collaboration avec Farheez Mohamed, stagiaire pendant 6 mois. Deux essais pour calibrer les paramètres de simulation sont utilisés : l'angle de repos et le test de tassement. La calibration par méthode LHS-Krigeage-EGO a ensuite été appliquée sur un exemple.*

<b>1. MATÉRIEL ET MÉTHODE.....</b>	<b>180</b>
1. 1. LIGGGHTS.....	180
1. 2. PARAVIEW .....	180
1. 3. ONSHAPE .....	180
1. 4. PACKAGE PYTHON SURROGATE MODELING TOOLBOX .....	180
<b>2. ESSAIS POUR CALIBRER LES PARAMÈTRES DE SIMULATION .....</b>	<b>180</b>
2. 1. ANGLE DE REPOS.....	181
2. 2. TEST DE TASSEMENT .....	184
<b>3. CALIBRATION DES PARAMÈTRES PAR LHS-KRIGEAGE-EGO .....</b>	<b>186</b>
3. 1. PARAMÈTRES DE SIMULATION.....	186
3. 2. ALGORITHME DE SIMULATION.....	189
3. 3. APPLICATION DE LA MÉTHODE DE CALIBRATION.....	190
<b>4. BILAN .....</b>	<b>191</b>

## **1. MATÉRIEL ET MÉTHODE**

---

### **1. 1. LIGGGHTS**

LIGGGHTS est un logiciel open source de simulation par la Méthode des Éléments Discrets (DEM). Il sera utilisé dans ce travail. Un fichier source est réalisé pour effectuer les simulations. Ce dernier contient différentes parties :

- définition du type de particules,
- définition du domaine de simulation,
- définition des propriétés des particules et du pas de temps,
- définition des géométries,
- insertion des particules,
- nombre d'itérations et, éventuellement, le mouvement des géométries.

LIGGGHTS exécute ce fichier source afin de réaliser la simulation. Différentes données de post-traitement peuvent être obtenues à chaque pas de temps telles que les vitesses, les positions et les forces appliquées à chaque particule ainsi que la visualisation de la simulation (fichier VTK).

LIGGGHTS a été couplé à Python. Ceci permet de lancer les simulations DEM et d'effectuer le post-traitement à partir d'un script écrit en Python.

### **1. 2. PARAVIEW**

Paraview est un logiciel open source d'analyse de données et de visualisation. Il est utilisé afin d'avoir une visualisation des simulations effectuées sur LIGGGHTS par lecture des fichiers VTK. Il est possible de visualiser toutes les informations contenues dans les fichiers VTK qui seront représentées par des gradients de couleurs accompagnés d'une échelle. Une vidéo de la simulation peut aussi être enregistrée. De plus, la visualisation d'une simulation permet de s'assurer du bon fonctionnement de celle-ci en vérifiant la cohérence de l'écoulement des particules.

### **1. 3. ONSHAPE**

Onshape est un logiciel de conception assistée par ordinateur (CAO) gratuit et utilisable en ligne. Les CAO des géométries importées dans les simulations sur LIGGGHTS ont été réalisées à l'aide de ce logiciel.

### **1. 4. PACKAGE PYTHON SURROGATE MODELING TOOLBOX**

Afin d'effectuer la calibration des paramètres de simulation, le package Python Surrogate Modeling Toolbox (SMT) [Bouhleb et al. 2019] a été utilisé. Ce package est très récent (créé en 2019) et dispose de nombreux modules d'interpolation et d'optimisation de fonctions.

## **2. ESSAIS POUR CALIBRER LES PARAMÈTRES DE SIMULATION**

---

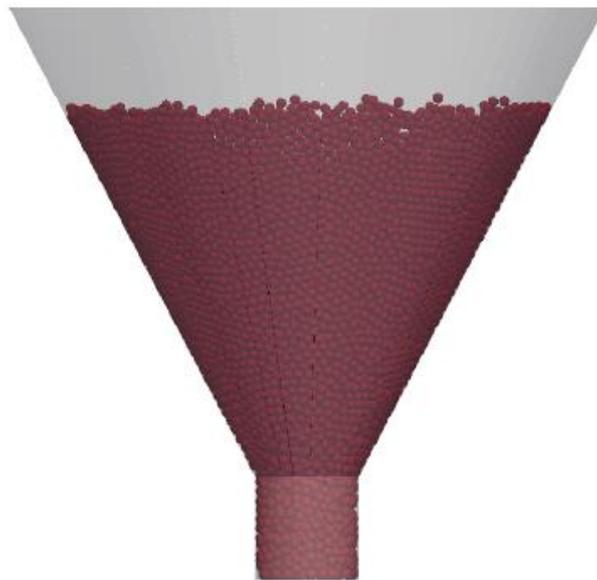
Afin de calibrer les paramètres de simulation, des tests expérimentaux sont simulés et une comparaison entre les valeurs expérimentales et numériques pour différentes combinaisons de paramètres est réalisée. Une méthode optimisée par l'association des méthodes LHS-Krigeage-EGO

(Chapitre I. 4. 2) a été développée dans le cadre de ce travail. Elle permet de déterminer les paramètres optimaux pour lesquels la somme des écarts absolus entre les résultats expérimentaux et numériques est minimale. Différents tests sont habituellement utilisés afin de calibrer les paramètres de simulation, comme par exemple, l'angle de repos [Benvenuti et al. 2016; Roessler et al. 2019; Lommen et al. 2019; Coetzee and Els 2009; Cabiscol et al. 2018], le test de cisaillement [Benvenuti et al. 2016; Coetzee and Els 2009; Syed et al. 2017], le test d'écrasement [Müller and Tomas 2014; Cabiscol et al. 2018], le test de compression [Coetzee and Els 2009], le test de pénétration [Lommen et al. 2019]. Dans cette étude, deux tests expérimentaux ont été utilisés pour la calibration des paramètres : l'angle de repos et le test de tassement.

## 2. 1. ANGLE DE REPOS

L'angle de repos est souvent choisi comme essai de référence lors de la calibration des paramètres numériques en DEM car il met en avant les paramètres de frottements des particules, comme les coefficients de frottement et de résistance au roulement [Roessler et al. 2019; Cabiscol et al. 2018].

Dans le cadre de ce travail, la simulation de l'angle de repos a été réalisée en différentes étapes. Premièrement, les particules sont insérées dans le domaine de simulation selon une masse ou un nombre de particules défini et remplissent un entonnoir dont l'orifice est fermé (Figure V.1). Une période d'attente permet aux particules de se poser dans l'entonnoir jusqu'à être immobiles. Pour cela, une condition sur l'énergie cinétique totale du système regroupant toutes les particules présentes dans le domaine de simulation est utilisée. Lorsque l'énergie cinétique  $E_c$  est inférieure à une valeur notée  $\varepsilon_{angle,1}$ , les particules sont considérées comme immobiles. L'entonnoir est alors ouvert afin de procéder à la vidange de ce dernier (Figure V.2).



*Figure V.1 : Entonnoir rempli par des particules*



Figure V.2 : Vidange de l'entonnoir et formation d'un talus sur le plateau

Les particules chutent alors sur le plateau situé en-dessous de l'entonnoir et forment un talus, permettant de déterminer l'angle de repos. Pour ce faire, les particules doivent être immobiles, ce qui implique une nouvelle période d'attente et le choix d'une autre valeur limite de l'énergie cinétique  $E_c$  notée  $\varepsilon_{angle,2}$ . Une fois le talus formé et les particules immobiles (Figure V.3), les positions de chaque particule sont extraites afin de déterminer la hauteur  $h$  du talus, assimilé à un triangle (Figure V.4).



Figure V.3 : Talus formé par la poudre

Connaissant le rayon  $r$  du plateau, l'angle de repos numérique  $AoR_{num}$  (en degrés) est calculé à l'aide de l'équation suivante :

$$AoR_{num} = \frac{180}{\pi} \arctan\left(\frac{h}{r}\right) \quad (\text{Équation V.1})$$

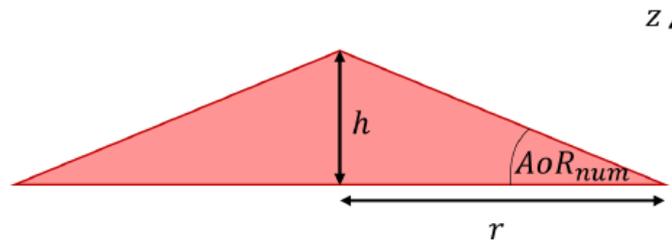


Figure V.4 : Calcul de l'angle de repos

La méthode de calcul de l'angle de repos présentée est la plus simple à mettre en place mais n'est pas assez précise si le talus n'est pas vraiment triangulaire. La détermination du coefficient

directeur d'une droite de tendance passant par les particules formant l'angle de repos réel permettrait d'améliorer la précision de ce calcul. La Figure V.5 illustre la différence entre l'angle de repos calculé et sa valeur réelle. Ce dernier sous-estimé avec cette méthode de calcul.

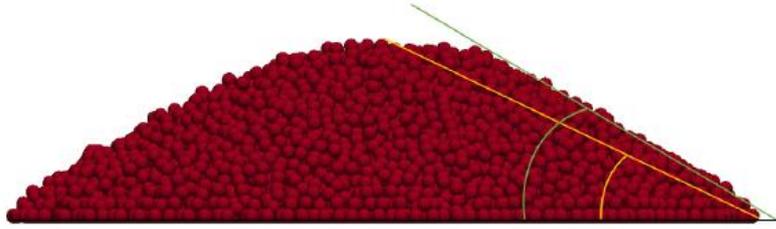


Figure V.5 : Comparaison de l'angle de repos calculé avec l'angle réel. En jaune : l'angle de repos calculé. En vert : l'angle de repos réel calculé en traçant une droite de tendance.

L'algorithme présenté en Figure V.6 regroupe les différentes étapes effectuées pour la détermination numérique de l'angle de repos.

**LIGGGHTS**  
**Python**

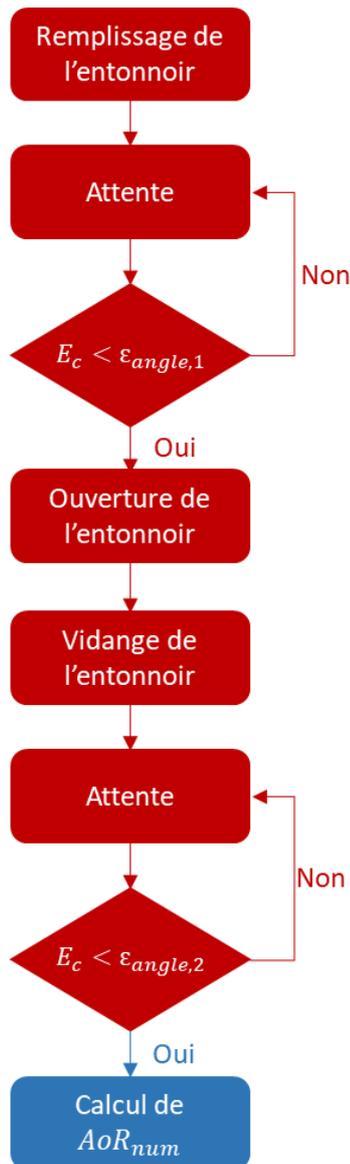


Figure V.6 : Algorithme de simulation de l'angle de repos

## 2. 2. TEST DE TASSEMENT

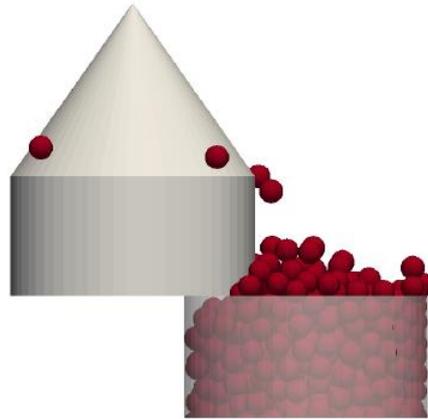
Pour la calibration des paramètres numériques, un deuxième essai de référence a été choisi afin de prendre en compte un comportement de la poudre dans une autre situation que celle relative à l'angle de repos. Dans le cas de ce travail, le choix a porté sur le test de tassement caractérisant le réarrangement des particules.

Les commandes Python pour LIGGGHTS permettant d'extraire plus facilement les résultats à la fin d'une simulation qu'à différents pas de temps, la simulation du test de tassement a donc été divisée en deux.

La première simulation permet le remplissage de l'éprouvette (Figure V.7) et la détermination de la masse volumique aérée  $\rho_a$ . Les particules sont insérées dans le domaine de simulation en fixant la masse de particules à insérer et le débit massique, ce qui détermine la durée d'insertion. Une fois les particules insérées, l'éprouvette est fermée par un bouchon qui permet de retirer l'excès de particules (Figure V.8) afin de conserver uniquement les particules dans l'éprouvette. Une période d'attente est alors nécessaire pour permettre aux particules de s'immobiliser. Une condition sur l'énergie cinétique du système  $E_c$  est alors mise en place. Lorsque l'énergie cinétique  $E_c$  est inférieure à une valeur limite  $\varepsilon_{tassement,1}$ , la position  $z_{max,a}$  de la particule la plus haute est déterminée. La première simulation prend fin et un fichier restart est écrit. Ce fichier restart permet de sauvegarder les positions des particules, ce qui permet de les conserver pour la seconde simulation.

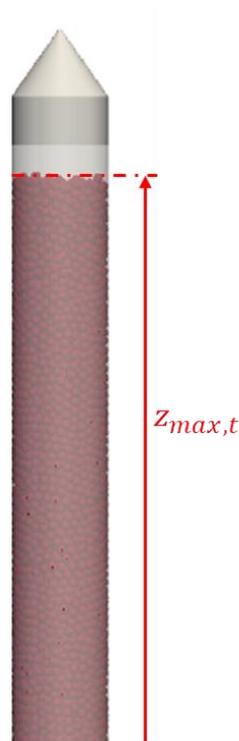


Figure V.7 : Éprouvette remplie de particules



*Figure V.8 : Fermeture de l'éprouvette*

La seconde simulation consiste à mettre en mouvement l'éprouvette afin de réaliser l'étape de tassement et de déterminer la masse volumique tassée  $\rho_t$ . Après lecture du fichier restart, l'éprouvette bouchée oscille de haut en bas trois fois afin de tasser son contenu. Les particules se réarrangent et la hauteur des particules contenues dans l'éprouvette diminue (Figure V.9). Une nouvelle période d'attente est réalisée pour permettre aux particules de s'immobiliser, grâce à une valeur limite  $\varepsilon_{tassement,2}$  fixée sur l'énergie cinétique du système  $E_c$ . La position  $z_{max,t}$  de la particule la plus haute est extraite.



*Figure V.9 : Particules tassées dans l'éprouvette*

Les masses volumiques aérée  $\rho_a$  et tassée  $\rho_t$  peuvent donc être déterminées ((Équation V.2) et le rapport d'Hausner numérique est alors calculé ((Équation V.3).

$$\rho_a = \frac{m}{\pi r_{ep}^2 z_{max,a}} ; \quad \rho_t = \frac{m}{\pi r_{ep}^2 z_{max,t}} \quad (\text{Équation V.2})$$

$$HR_{num} = \frac{\rho_t}{\rho_a} = \frac{z_{max,a}}{z_{max,t}} \quad (\text{Équation V.3})$$

Les algorithmes présentés en Figure V.10 présentent les différentes étapes des deux simulations permettant de simuler le test de tassement.

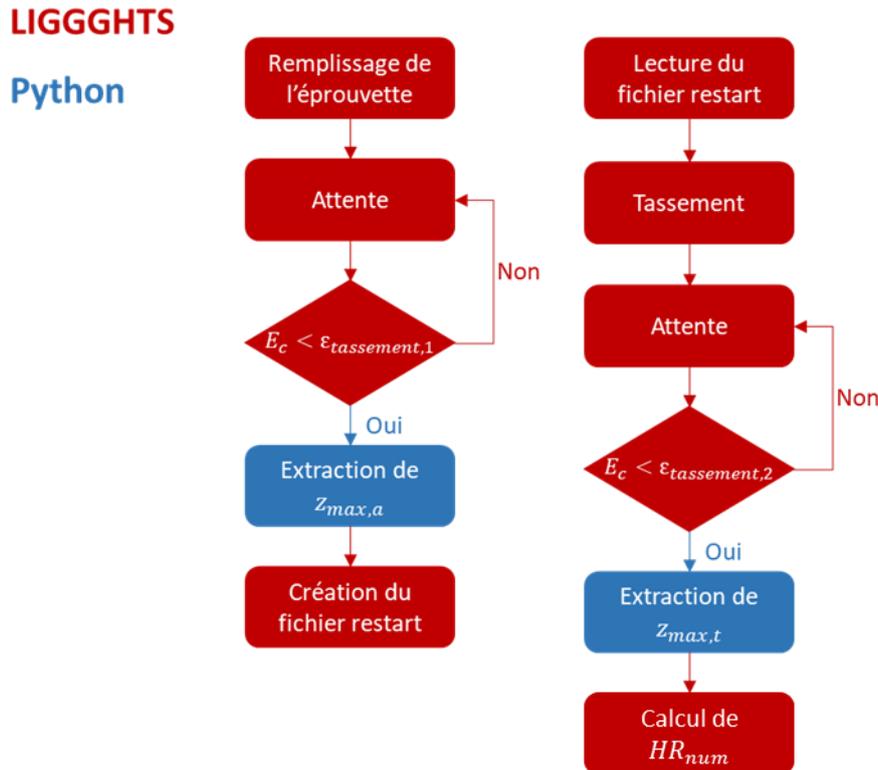


Figure V.10 : Algorithme du remplissage de l'éprouvette (à gauche) et du tassement (à droite)

### 3. CALIBRATION DES PARAMÈTRES PAR LHS-KRIGEAGE-EGO

Une méthode optimisée par LHS-Krigeage-EGO est utilisée pour calibrer les paramètres de simulation. Cette méthode a été appliquée sur un exemple avec des particules plus grosses afin de réduire le temps de calcul et de la tester.

#### 3. 1. PARAMÈTRES DE SIMULATION

##### 3. 1. 1. Paramètres à calibrer

Cinq paramètres ont été identifiés pour la simulation des étapes de transfert dont quatre ont fait l'objet d'une calibration :

- le coefficient de Poisson  $\nu \in [0 ; 0,5]$ ,
- le coefficient de frottement particule-particule  $CoF \in [0 ; 1]$ ,

- le coefficient de restitution (élasticité au rebondissement)  $CoR \in ]0,05; 1]$ ,
- le coefficient de résistance au roulement  $CoRF \in [0 ; 1]$ .

Le module d'Young ne sera donc pas calibré. En effet, le pas de temps étant dépendant du module d'Young (Équation I.43), ce dernier a été fixé à la valeur minimale admissible sur LIGGGHTS, à savoir de  $5.10^6$  Pa afin d'augmenter le pas de temps et de diminuer le temps de calcul.

### 3. 1. 2. Caractéristiques des particules, modèle de contact et pas de temps

Les caractéristiques des particules sont communes aux deux simulations. Les particules sont considérées sphériques de rayon  $R = 2$  mm et de masse volumique  $\rho = 2700$  kg.m<sup>-3</sup>.

Le nombre de particules mis en œuvre pour une simulation dépend de la taille des particules, de la géométrie considérée et du test de référence retenu. Par exemple, pour l'angle de repos, entre 18 000 et 19 000 particules sont nécessaires pour former un angle de repos. Pour la simulation du tassement, 0,6 kg de poudres est inséré, ce qui correspond à environ 5900 particules.

Le modèle de contact choisi est le modèle de Hertz couplé au modèle alternatif plastique-élastique ressort-amortisseur (EPSD2) [Ai et al. 2011]. Le couplage avec le modèle EPSD2 permet de prendre en compte un moment supplémentaire, calculé à partir du coefficient de résistance au roulement, s'opposant au roulement.

Enfin, le pas de temps est fixé comme égal à environ 20% du pas de temps de Rayleigh (Équation I.43), soit à  $5.10^{-5}$  secondes.

### 3. 1. 3. Géométrie

Les géométries utilisées pour les simulations de l'angle de repos et du test de tassement sont réalisées par CAO sur Onshape.

Pour la simulation de l'angle de repos (Annexe V.1(a)), le diamètre de l'orifice de sortie de l'entonnoir est égal à 40 mm afin de limiter le débit des particules lors de la vidange. Le diamètre du plateau est fixé à 200 mm. Enfin, la distance entre l'orifice de sortie de l'entonnoir et le plateau est fixé à 100 mm, ce qui permet la formation d'un talus ayant un angle de repos de 45° (valeurs pour les poudres très cohésives).

Pour la simulation du test de tassement (Annexe V.1(b)), l'éprouvette a une hauteur de 250 mm et un diamètre de 40 mm.

### 3. 1. 4. Énergie cinétique limite

Comme détaillé précédemment (section 2), des conditions sur l'énergie cinétique du système sont mises en place afin d'obtenir l'immobilité des particules. Ces valeurs d'énergie cinétique dépendent du nombre de particules totales de la simulation. Elles ont été fixées suite aux visualisations des simulations sur Paraview.

Pour la simulation de l'angle de repos, deux énergies cinétiques limites sont nécessaires : à la fin du remplissage de l'entonnoir, avant la vidange de ce dernier ( $\epsilon_{angle,1}$ ) et lorsque le tas de poudre est formé sur le plateau avant la mesure de l'angle de repos ( $\epsilon_{angle,2}$ ). La première limite n'a pas besoin d'être très basse car il n'est pas utile que les particules soient parfaitement immobiles avant la vidange. Elle est donc fixée à  $5.10^{-3}$  J. En revanche, les particules doivent être parfaitement immobiles avant la

détermination de l'angle de repos afin de ne pas induire d'erreur lors de ce calcul. La seconde limite de l'énergie cinétique est donc prise égale à  $1.10^{-5}$  J.

Pour la simulation du test de tassement, deux énergies cinétiques sont également fixées : à la fin du remplissage de l'éprouvette ( $\epsilon_{tassement,1}$ ) et après le tassement des particules ( $\epsilon_{tassement,2}$ ). Dans ces deux cas, les particules doivent être parfaitement immobiles afin de ne pas induire des erreurs lors de la détermination de la hauteur de la poudre. Les limites sont fixées à  $5.10^{-3}$  J.

### 3. 1. 5. Valeurs expérimentales et fonction objectif

Les valeurs expérimentales de l'angle de repos  $AoR_{exp}$  et de l'indice d'Hausner  $H_{exp}$  sont respectivement égales à  $25^\circ$  et à 1,05. Ces valeurs correspondent à celles du gravier.

À l'issue des simulations des essais pour calibrer les paramètres de simulation, deux résultats sont obtenus : l'angle de repos numérique  $AoR_{num}$  et le rapport d'Hausner numérique  $HR_{num}$ . La fonction objectif  $F$  définie dans l'optimisation EGO (Chapitre I. 4. 2. 3) correspond à la somme des écarts relatifs entre les résultats numériques et expérimentaux de ces essais ((Équation V.4).

$$F(v, CoF, CoR, CoRF) = \frac{|AoR_{num} - AoR_{exp}|}{AoR_{exp}} + \frac{|HR_{num} - HR_{exp}|}{HR_{exp}} \quad (\text{Équation V.4})$$

### 3. 1. 6. Récapitulatif

Le Tableau V.1 regroupe les différents paramètres utilisés pour les simulations de l'angle de repos et du test de tassement réalisées dans cet exemple ainsi que les résultats expérimentaux. Les domaines de variations des quatre paramètres à calibrer sont précisés.

*Tableau V.1 : Paramètres de simulation et résultats expérimentaux*

	Simulation de l'angle de repos	Simulation du test de tassement
<b>Coefficient de Poisson <math>\nu</math></b>	[0 ; 0,5]	[0 ; 0,5]
<b>Coefficient de frottement particule-particule CoF</b>	[0 ; 1]	[0 ; 1]
<b>Coefficient de restitution CoR</b>	]0,05; 1]	]0,05; 1]
<b>Coefficient de résistance au roulement CoRF</b>	[0 ; 1]	[0 ; 1]
<b>Module d'Young E (Pa)</b>	$5.10^6$	$5.10^6$
<b>Rayon R (mm)</b>	2	2
<b>Masse volumique (<math>kg.m^{-3}</math>)</b>	2700	2700
<b>Nombre de particules</b>	18000-19000	5900
<b>Modèle de contact</b>	Hertz couplé à EPSD2	Hertz couplé à EPSD2
<b>Pas de temps (seconde)</b>	$5.10^{-5}$	$5.10^{-5}$
<b>Énergies cinétiques limites (J)</b>	$\epsilon_{angle,1} = 5.10^{-3}$ $\epsilon_{angle,2} = 1.10^{-5}$	$\epsilon_{tassement,1} = 5.10^{-3}$ $\epsilon_{tassement,2} = 5.10^{-3}$
<b>Valeurs expérimentales</b>	$25^\circ$	1,05

### 3. 2. ALGORITHME DE SIMULATION

La Figure V.11 présente l’algorithme de calibration des paramètres de simulation par la méthode LHS-Krigeage-EGO.

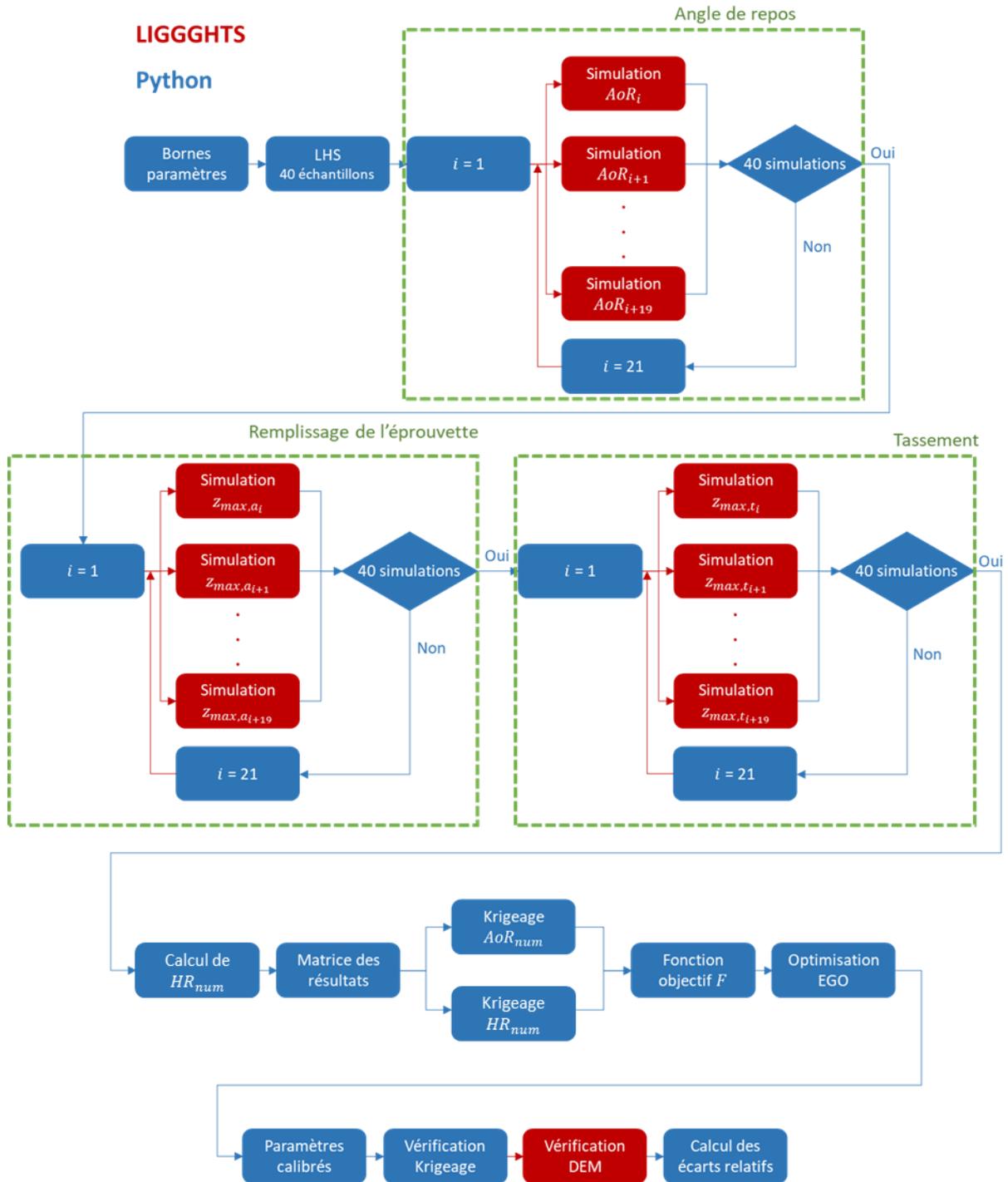


Figure V.11 : Algorithme de calibration

Avant de lancer cet algorithme, la date et l’heure sont relevées afin de connaître le temps nécessaire à cette calibration et les bornes des quatre paramètres à calibrer sont renseignées.

L'étape de LHS peut alors débiter. Afin que la dernière étape de cette méthode de calibration soit efficace (EGO), le nombre d'échantillons doit être 10 fois supérieur au nombre de paramètres à calibrer [Jones and Schonlau 1998]. 40 échantillons sont donc générés. Les valeurs générées sont rangées dans une matrice de dimension  $40 \times 4$  ((Équation V.5).

$$\begin{bmatrix} v_1 & CoF_1 & CoR_1 & CoRF_1 \\ v_2 & CoF_2 & CoR_2 & CoRF_2 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ v_{40} & CoF_{40} & CoR_{40} & CoRF_{40} \end{bmatrix} \quad (\text{Équation V.5})$$

40 simulations de chaque essai de calibration sont alors réalisées avec chacune des combinaisons de paramètres grâce à LIGGGHTS. Tout d'abord, les 40 simulations de l'angle de repos sont exécutées, suivies des 40 simulations du remplissage de l'éprouvette puis des 40 simulations du tassement dans l'éprouvette. Cette étape est celle nécessitant le plus de temps. Les simulations sont donc lancées en parallèle sur 20 processeurs afin de réduire le temps de calcul. Les angles de repos et les rapports d'Hausner sont alors déterminés et calculés à partir des méthodes décrites dans la section 2 une fois les simulations terminées. Une matrice des résultats de dimension  $40 \times 6$  est alors créée contenant les valeurs des quatre paramètres suivis des valeurs numériques de l'angle de repos  $AoR_{num}$  et du rapport d'Hausner  $HR_{num}$  obtenus pour ces combinaisons de paramètres ((Équation V.6).

$$\begin{bmatrix} v_1 & CoF_1 & CoR_1 & CoRF_1 & AoR_{num,1} & HR_{num,1} \\ v_2 & CoF_2 & CoR_2 & CoRF_2 & AoR_{num,2} & HR_{num,2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ v_{40} & CoF_{40} & CoR_{40} & CoRF_{40} & AoR_{num,40} & HR_{num,40} \end{bmatrix} \quad (\text{Équation V.6})$$

L'étape suivante est l'étape de Krigeage. À l'aide de la matrice de résultats, le krigeage est effectué deux fois. La première fonction de krigeage permet de prédire la valeur de l'angle de repos numérique ((Équation V.7) en tout point du domaine de définition de cette fonction. De même, la seconde permet de prédire la valeur du rapport d'Hausner ((Équation V.8).

$$AoR_{num} = K_1(v, CoF, CoR, CoRF) \quad (\text{Équation V.7})$$

$$HR_{num} = K_2(v, CoF, CoR, CoRF) \quad (\text{Équation V.8})$$

Enfin, la dernière étape est l'optimisation EGO. La fonction objectif  $F$  est définie par l'Équation V.4. Son minimum global correspond au minimum de la somme des écarts relatifs de l'angle de repos et du rapport d'Hausner. L'antécédent de ce minimum est le point dont les coordonnées correspondent aux valeurs des paramètres numériques optimisés.

Pour finir, la justesse de ces paramètres calibrés est vérifiée. Pour ce faire, les valeurs d'angle de repos et de rapport d'Hausner sont recalculées à l'aide de la fonction de krigeage. De plus, des simulations de l'angle de repos et du test de tassement sont réalisés sur LIGGGHTS à partir des paramètres obtenus. En effet, la méthode d'interpolation (krigeage) peut induire des erreurs par rapport à la simulation DEM. Les résultats issus du calcul à partir de la fonction de krigeage et de la simulation DEM sont alors comparés. La durée totale du script est enfin donnée ainsi que celles des étapes de krigeage et d'optimisation EGO.

### 3. 3. APPLICATION DE LA MÉTHODE DE CALIBRATION

La méthode de calibration des paramètres par LHS-Krigeage-EGO a été réalisée sur l'exemple présenté dont les différents paramètres sont regroupés dans le Tableau V.1. Ce calcul a nécessité 7 heures

et 25 minutes, dont seulement 5 minutes pour les étapes de krigeage et d'optimisation EGO. Les paramètres calibrés obtenus sont regroupés dans le Tableau V.2.

*Tableau V.2 : Valeurs calibrées des quatre paramètres de simulation*

Paramètres	Valeurs calibrées
<b>Coefficient de Poisson <math>\nu</math></b>	0,5
<b>Coefficient de frottement particule-particule CoF</b>	0,284
<b>Coefficient de restitution CoR</b>	0,304
<b>Coefficient de résistance au roulement CoRF</b>	0,260

Il est à noter que ces coefficients n'ont pas de sens physique et sont seulement utiles aux modélisations numériques. De plus, une multitude de combinaisons de paramètres calibrés existe. En effet, les fonctions de krigeage sont en boîte noire et sont obtenues à partir des échantillons générés par LHS. Elles peuvent donc être différentes d'une exécution à une autre.

Afin de vérifier la justesse des paramètres calibrés, le krigeage et des simulations par DEM sont réalisés avec ces paramètres. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau V.3.

*Tableau V.3 : Résultats issus des expériences, du krigeage et des simulations par DEM*

Paramètres	Angle de repos (°)	Rapport d'Hausner
<b>Expériences</b>	25	1,05
<b>Krigeage</b>	25,15	1,047
<b>Simulations par DEM</b>	24,34	1,048

Les écarts entre ces différentes valeurs sont relativement proches. Dans cet exemple, la méthode de calibration par la méthode LHS-Krigeage-EGO peut donc être considérée comme fiable. Dans le cas où des écarts seront observés entre le résultat de krigeage et de simulation par DEM pour le même jeu de paramètres, cette méthode d'optimisation constituerait une première étape dans la calibration des paramètres DEM. Une seconde étape avec une optimisation sur les résultats de simulation DEM directe serait nécessaire avec comme paramètres initiaux ceux obtenus par la méthode LHS-Krigeage-EGO. En effet, cette méthode permettrait tout de même de s'approcher des paramètres optimaux à utiliser afin de simuler le comportement de la poudre lors des étapes de transfert.

## 4. BILAN

Dans ce chapitre, une méthode optimisée de calibration des paramètres de simulation par LHS-Krigeage-EGO a été mise en place. Elle permet d'obtenir les paramètres de simulation permettant de décrire le comportement de la poudre en comparant les résultats numériques obtenus par simulation DEM et les résultats expérimentaux. Grâce à son caractère automatique, cette méthode permet a priori un gain de temps par comparaison à la méthode essai-erreur ou une optimisation directe sur DEM.

Cependant, la méthode de calcul de l'angle de repos numérique doit être améliorée. La détermination du coefficient directeur d'une droite de tendance passant par les particules formant l'angle de repos réel permettrait d'améliorer la précision de ce calcul. De plus, la précision des paramètres obtenus par la méthode LHS-Krigeage-EGO doit être vérifiée. Si elle est jugée comme insuffisante, une

seconde étape d'optimisation sur DEM doit être réalisée à partir des paramètres initiaux obtenus par la méthode LHS-Krigeage-EGO.

Enfin, lorsque les paramètres de simulation seront obtenus, ils permettront de simuler le comportement de la poudre lors d'étapes de transfert à échelle industrielle. Ceci permettra de prédire le comportement de la poudre lors de ces étapes (écoulement, ségrégation, etc.).

## Fiche résumé du chapitre V

### Objectif de la simulation DEM

**Simuler le comportement des poudres lors des étapes de transfert à l'échelle industrielle**

→ **Nécessité de calibrer les paramètres de simulation en amont**

→ *Mise en place d'une méthode optimisée par LHS-Krigeage-EGO pour la calibration des paramètres en comparant résultats expérimentaux et numériques*

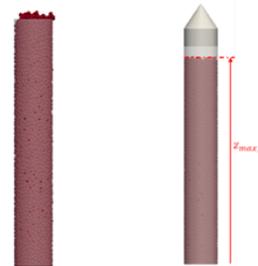
### Essais pour calibrer les paramètres de simulation

Utilisation de deux essais pour calibrer les paramètres en comparant résultats expérimentaux et numériques

#### Angle de repos



#### Test de tassement



### Paramètres de simulation

#### Paramètres à calibrer

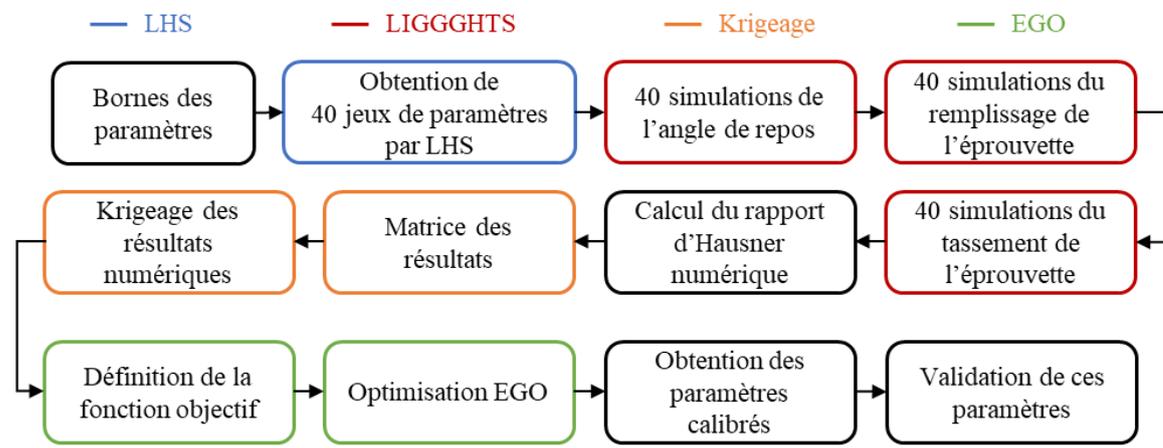
- Coefficient de Poisson
- Coefficient de frottement particule-particule
- Coefficient de restitution
- Coefficient de résistance au roulement

#### Paramètres fixés

- Modèle de Hertz couplé à EPSD2
- Pas de temps
- Rayon des particules
- Masse volumique des particules
- Nombre de particules
- Géométrie
- Module d'Young
- Énergie cinétique limite

### Méthode optimisée par LHS-Krigeage-EGO

Réalisation d'un programme Python faisant appel aux fonctions LHS, Krigeage et EGO et à LIGGGHTS





## **CONCLUSION GÉNÉRALE**



## CONCLUSION GÉNÉRALE

---

Les procédés de fabrication de futurs combustibles RNR-Na incluant la présence de plutonium multi-recyclé devront permettre de minimiser la génération de poussières, de limiter les opérations de maintenance grâce à une bonne coulabilité des poudres, et d'obtenir des pastilles répondant aux différentes spécifications généralement requises pour du MOX (densité > 94%<sub>m,th</sub>, répartition cationique homogène, contraintes dimensionnelles respectées). Pour ce faire, l'étape de préparation du milieu granulaire est une étape clé du procédé dans la mesure où elle permet de produire des agglomérats dont les caractéristiques doivent conduire à une amélioration de la coulabilité de la poudre initiale. Dans ce contexte, l'étape de préparation du milieu granulaire constitue le cœur de ce travail mené selon deux axes principaux : d'une part, l'étude de l'effet du procédé de fabrication sur l'évolution des caractéristiques physiques des poudres, d'autre part la compréhension de l'effet de ces caractéristiques sur les propriétés d'écoulement des poudres. Ainsi, l'impact des opérations de la méthode de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques, mécaniques et rhéologiques des poudres a été étudié à partir d'une approche expérimentale, de même que le lien entre ces caractéristiques physiques et leur comportement rhéologique. D'autre part, une approche par modélisation a été initiée dans l'optique de simuler le comportement rhéologique des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle.

Après avoir rappelé les caractéristiques physiques et mécaniques des poudres et agglomérats, un état de l'art sur les propriétés d'écoulement a permis de souligner les différents aspects qui permettent de caractériser la coulabilité : la mise en écoulement (transition statique-dynamique), l'écoulement dynamique et les propriétés du lit de poudre (perméabilité, arrangement des agglomérats). Les différents états correspondants sont rencontrés lors des étapes de transfert dans un procédé de fabrication de combustible.

Les deux méthodes de préparation du milieu granulaire étudiées dans le cadre de ce travail ont été présentées : une voie utilisant un mélangeur en V et une voie utilisant un moulin oscillant et rotatif Frewitt. Trois étapes sont mises en œuvre pour chacune de ces méthodes : une étape de fragmentation/destruction des gros agglomérats, suivie des étapes de brassage puis de lubrification. L'étape de fragmentation a été réalisée en considérant deux vitesses de turbine pour le mélangeur en V (2000 tours.min<sup>-1</sup> et 4000 tours.min<sup>-1</sup>) et deux tailles de maille de tamis pour le Frewitt (250 μm et 500 μm). Les trois étapes modifient les caractéristiques physiques des agglomérats telles que la taille, l'étendue granulométrique et la morphologie, qui impactent à leur tour directement la coulabilité des poudres. Elles ont été appliquées à deux lots de poudre, une poudre nommée GrC, disponible en grande quantité, une poudre nommée FaC disponible en faible quantité.

Préalablement à l'étude de la préparation du milieu granulaire et compte tenu de la faible quantité de matière disponible pour la poudre FaC, la mise en place d'une méthodologie de caractérisation s'est avérée nécessaire afin de pouvoir effectuer un maximum de mesures avec un

minimum de poudre. À cet effet, dans un premier temps, la destructivité des tests de caractérisation a été évaluée grâce à un suivi granulométrique. Dans un second temps, une méthodologie spécifique utilisant le rhéomètre à poudre FT4 a été établie afin de pouvoir enchaîner les caractérisations rhéologiques sur un même échantillon. Pour ce faire, la mesure de la perméabilité a été utilisée pour suivre l'évolution de l'échantillon au cours de l'enchaînement des tests. En effet, il a pu être montré que ce test est non destructif, sensible aux fines particules ( $< 100 \mu\text{m}$ ) et qu'il permet de caractériser l'ensemble d'un échantillon. Cette méthodologie a néanmoins montré un impact de l'enchaînement des caractérisations sur les résultats de BFE pour les poudres broyées. Ils n'ont donc pas pu être pris en compte dans la suite de cette étude.

L'étude de la méthode de préparation du milieu granulaire a tout d'abord porté sur la comparaison des deux méthodes de préparation, afin de déterminer les conditions qui permettraient d'améliorer la coulabilité d'une même poudre initiale broyée. Cette étude a été menée sur la poudre GrC. Les principaux résultats ont mis en évidence que la méthode basée sur le mélangeur en V entraînait la formation d'agglomérats millimétriques, réduisait la proportion de fines, élargissait l'étendue granulométrique, conduisait à la présence d'agglomérats moins allongés et moins anguleux comparativement à la poudre initiale. Ces modifications de caractéristiques ont induit une légère amélioration de la coulabilité à l'état dynamique et de la compressibilité. Dans le domaine de fonctionnement étudié, l'impact de la vitesse de la turbine s'est révélé négligeable sur la plupart des caractéristiques physiques (hormis les caractéristiques mécaniques des agglomérats) et sur la coulabilité. Il a également été montré que la méthode basée sur le Frewitt modifiait sensiblement les caractéristiques de la poudre avec des distributions granulométriques plus étroites (en lien avec la taille de maille de tamis utilisée), des agglomérats moins allongés, moins anguleux, présentant une meilleure résistance mécanique et une cohésivité inférieure. Par rapport à la poudre initiale, l'ensemble de ces modifications a conduit à une amélioration de la coulabilité pour les trois états considérés (lit de poudre, écoulement dynamique, transition statique/dynamique). Au regard de ces résultats, la méthode permettant une amélioration marquée de la coulabilité correspond à la voie Frewitt avec un tamis de  $250 \mu\text{m}$ .

Cette méthode a ensuite été appliquée au deuxième lot de poudre, la poudre FaC afin d'estimer l'impact de cette méthode sur des poudres possédant des caractéristiques initiales différentes. Les résultats ont mis en évidence une certaine robustesse de la méthode de préparation basée sur le Frewitt, puisque cette dernière permet d'obtenir des poudres de caractéristiques et propriétés similaires, à partir de poudres initiales distinctes. Plus précisément, après la voie Frewitt, les distributions et l'étendue granulométriques, l'élongation des agglomérats, l'écoulement dynamique et la perméabilité sont devenus proches pour les deux poudres étudiées. Bien qu'atténuées par cette méthode de préparation du milieu granulaire, certaines différences, dues notamment au broyage, ont néanmoins été conservées, comme le taux de fines, l'angularité des agglomérats ou les caractéristiques mécaniques. Au global, pour les deux poudres initiales testées, cette méthode de préparation permet une amélioration notable des propriétés rhéologiques. À partir de ces résultats, il a été possible d'évaluer l'importance relative des caractéristiques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques, en vue d'établir des lois prédictives qui permettraient d'améliorer le procédé via le pilotage des caractéristiques des poudres. Une étude par régression linéaire multiple a été réalisée dans cette optique. Elle a permis d'établir des modèles de variation de la mise en écoulement, de l'écoulement dynamique et de l'arrangement du lit de poudre en fonction de la quantité de fines, de la largeur de l'étendue granulométrique, de l'élongation des agglomérats et de la circularité. Les tendances obtenues sont en accord avec les observations expérimentales et qualitatives : une diminution des fines, une étendue granulométrique plus étroite, des agglomérats plus sphériques (moins allongés et moins anguleux) conduisent à une amélioration de la mise en écoulement, de l'écoulement dynamique et de l'arrangement des agglomérats.

## Conclusion générale

Pour finir, une étude par simulation numérique par la méthode des éléments discrets (DEM) a été initiée afin d'appréhender le comportement des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle. Cette étude a nécessité une calibration des paramètres de simulation afin de traduire au mieux le comportement de la poudre. Pour cette étape, afin de gagner en temps de calcul, une méthode par LHS-Krigeage-EGO a été mise en place. Elle a permis d'obtenir les paramètres de simulation optimaux permettant de décrire le comportement de la poudre en comparant les résultats numériques obtenus par simulation DEM aux résultats expérimentaux.

Ces travaux constituent une avancée notable dans l'étude de la préparation d'un milieu granulaire, d'une part par la mise en place d'une méthodologie de caractérisation, d'autre part par l'étude systématique et quantifiée des étapes intermédiaires de deux méthodes de préparation du milieu granulaire, et enfin par l'établissement de relations entre les caractéristiques des poudres et leurs propriétés rhéologiques. Pour faire suite à ces travaux, plusieurs axes d'étude peuvent être définis afin d'apporter certains éclaircissements et approfondissements.

Un premier axe concerne la méthodologie de caractérisation. En effet, lors de ce travail, seule l'évolution de la quantité de fines a été considérée pour juger de la destructivité d'une méthode de caractérisation. Cette méthode a pu montrer son efficacité du point de vue de l'évolution granulométrique mais ne prend pas en compte l'évolution de la morphologie des agglomérats, caractéristique qui impacte aussi les propriétés rhéologiques d'une poudre. Ainsi, l'étude de l'impact des tests de caractérisation sur la morphologie des agglomérats permettrait d'affiner la méthodologie déjà mise en place lors de ce travail.

Un deuxième axe concerne l'étude des deux voies de préparation du milieu granulaire. En effet, lors de ce travail, un nombre important de sous-lot de poudres ont été considérés et caractérisés afin d'avoir une étude la plus complète possible. Néanmoins, la mise en œuvre de ces deux méthodes de préparation n'a été réalisée que pour certaines conditions opératoires (vitesse de turbine, durée des opérations, etc.) et il serait réducteur de juger de la performance du mélangeur en V uniquement à partir de ces résultats. Des essais complémentaires dans d'autres plages de fonctionnement permettraient d'avoir une meilleure vision des potentialités de ce type de dispositif. D'autre part, l'utilisation de poudres modèles, de caractéristiques connues et simplifiées, pourrait probablement apporter des informations supplémentaires, notamment pour la comparaison des deux méthodes de préparation (mélangeur en V et Frewitt). Au-delà de ces propositions, une étude sur une poudre de référence  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$  pourrait être riche d'informations.

Un troisième axe correspond à la recherche de lois prédictives permettant de relier les caractéristiques physiques des poudres à leurs comportements rhéologiques. En effet, des données supplémentaires seraient nécessaires pour affiner les relations déterminées lors de ce travail. Une augmentation du nombre d'échantillons et du nombre de caractéristiques physiques permettrait d'améliorer la précision des modèles obtenus par régression linéaire multiple. En outre, la prise en compte d'autres caractéristiques telle que la rugosité de surface complèterait les modèles établis. Par ailleurs, les caractéristiques physiques des poudres ont été représentées par quelques valeurs caractéristiques ( $d_{10}$  et  $\text{SF}_{50}$ ), non représentatives de la totalité des distributions granulométriques et morphologiques. Une analyse à partir de ces distributions pourrait permettre de prendre en compte leur répartition totale. Enfin, des approches de modélisation différentes de la régression linéaire multiple pourraient être testées, telles que les modèles polynomiaux ou d'interaction qui pourraient probablement s'avérer plus pertinents pour la prédiction des propriétés rhéologiques.

Un dernier axe de recherche concerne l'étude de phases de transfert par simulation DEM. La méthode de calcul de l'angle de repos numérique doit être améliorée. La détermination du coefficient directeur d'une droite de tendance passant par les particules formant l'angle de repos réel permettrait

## Conclusion générale

d'améliorer la précision de ce calcul. Enfin, après la calibration et l'obtention des paramètres optimaux de simulation, ces derniers seront utilisés afin de simuler le comportement de la poudre lors d'étapes de transfert à échelle industrielle. Différentes étapes de transfert seraient intéressantes à étudier, telles que le remplissage et la vidange d'une trémie d'alimentation ou le remplissage d'un moule de presse annulaire. Ceci permettrait de prédire le comportement de la poudre lors de ces étapes en terme d'écoulement et de ségrégation.

# **BIBLIOGRAPHIE**



## BIBLIOGRAPHIE

---

- AI, J., CHEN, J.-F., ROTTER, J.M., AND OOI, J.Y. 2011. Assessment of rolling resistance models in discrete element simulations. *Powder Technology* 206, 3, 269–282.
- ALIZADEH, M., HASSANPOUR, A., PASHA, M., GHADIRI, M., AND BAYLY, A. 2017. The effect of particle shape on predicted segregation in binary powder mixtures. *Powder Technology* 319, 313–322.
- ALLEN, T. 1988. Granulométrie. *Techniques de l'Ingénieur, Référence P1040*.
- ÄMMÄLÄ, A., PÄÄKKÖNEN, T.M., AND ILLIKAINEN, M. 2018. Role of screen plate design in the performance of a rotor impact mill in fine grinding of biomass. *Industrial Crops and Products* 122, 384–391.
- ANTONYUK, S., TOMAS, J., HEINRICH, S., AND MÖRL, L. 2005. Breakage behaviour of spherical granulates by compression. *Chemical Engineering Science* 60, 14, 4031–4044.
- ARTEGA, P. AND TÜZÜN, U. 1990. Flow of binary mixtures of equal-density granules in hoppers—size segregation, flowing density and discharge rates. *Chemical Engineering Science* 45, 1, 205–223.
- BAILLY, H. 1982. La fabrication du combustible au plutonium de la filière à neutrons rapides. SFEN Meeting. [https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\\_Public/14/733/14733470.pdf](https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/14/733/14733470.pdf)
- BEAKAWI AL-HASHEMI, H.M. AND BAGHABRA AL-AMOUDI, O.S. 2018. A review on the angle of repose of granular materials. *Powder Technology* 330, 397–417.
- BEMROSE, C.R. AND BRIDGWATER, J. 1987. A review of attrition and attrition test methods. *Powder Technology* 49, 2, 97–126.
- BENVENUTI, L., KLOSS, C., AND PIRKER, S. 2016. Identification of DEM simulation parameters by Artificial Neural Networks and bulk experiments. *Powder Technology* 291, 456–465.
- BIAN, X., WANG, G., WANG, H., WANG, S., AND LV, W. 2017. Effect of lifters and mill speed on particle behaviour, torque, and power consumption of a tumbling ball mill: Experimental study and DEM simulation. *Minerals Engineering* 105, 22–35.
- BIKA, D.G., GENTZLER, M., AND MICHAELS, J.N. 2001. Mechanical properties of agglomerates. *Powder Technology* 117, 1–2, 98–112.
- BODHMAGE, A. 2006. Correlation between physical properties and flowability indicators for fine powders. Thèse de doctorat. University of Saskatchewan.
- BOUHLEL, M.A., HWANG, J.T., BARTOLI, N., LAFAGE, R., MORLIER, J., AND MARTINS, J.R.R.A. 2019. A Python surrogate modeling framework with derivatives. *Advances in Engineering Software* 135, 102662.
- BRING, J. 1994. How to Standardize Regression Coefficients. *The American Statistician* 48, 3, 209–213.
- BRUNAUER, S., EMMETT, P.H., AND TELLER, E. 1938. Adsorption of Gases in Multimolecular Layers. *Journal of the American Chemical Society* 60, 2, 309–319.
- CABISCOL, R., FINKE, J.H., AND KWADE, A. 2018. Calibration and interpretation of DEM parameters for simulations of cylindrical tablets with multi-sphere approach. *Powder technology* 327, 232–245.
- CAPECE, M., HO, R., STRONG, J., AND GAO, P. 2015. Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number. *Powder Technology* 286, 561–571.

## Bibliographie

- CASTELLANOS, A. 2005. The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders. *Advances in Physics* 54, 4, 263–376.
- CHEN, P., YUAN, Z., SHEN, X., AND ZHANG, Y. 2012. Flow properties of three fuel powders. *Particuology* 10, 4, 438–443.
- CHEN, Y., YANG, J., DAVE, R.N., AND PFEFFER, R. 2008. Fluidization of coated group C powders. *AIChE Journal* 54, 1, 104–121.
- CHIRONE, R., BARLETTA, D., LETTIERI, P., AND POLETO, M. 2016. Bulk flow properties of sieved samples of a ceramic powder at ambient and high temperature. *Powder Technology* 288, 379–387.
- CIZEAU, P., MAKSE, H., AND STANLEY, H. 1998. Mechanisms of Granular Spontaneous Stratification and Segregation in Two-Dimensional Silos. *Physical Review E* 59.
- COETZEE, C.J. AND ELS, D.N.J. 2009. Calibration of granular material parameters for DEM modelling and numerical verification by blade–granular material interaction. *Journal of Terramechanics* 46, 1, 15–26.
- CONDOTTA, R. 2005. Coulabilité des poudres cohésives : mesures aux faibles contraintes, granulaires humides et application à une poudre industrielle. Thèse de doctorat. Institut National Polytechnique de Toulouse.
- COUNCIL OF EUROPE. 2007. *European Pharmacopoeia 6.0*.
- COUROYER, C., NING, Z., GHADIRI, M., ET AL. 1999. Breakage of macroporous alumina beads under compressive loading: simulation and experimental validation. *Powder Technology* 105, 1, 57–65.
- CROUTER, A. AND BRIENS, L. 2016. Monitoring lubricant addition using passive acoustic emissions in a V-blender. *Powder Technology* 301, 1119–1129.
- CUNDALL, P.A. AND STRACK, O.D.L. 1979. A discrete numerical model for granular assemblies. *Géotechnique* 29, 1, 47–65.
- DAOUADJI, A. AND HICHER, P.-Y. 2010. An enhanced constitutive model for crushable granular materials. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 34, 6, 555–580.
- DEMEYRE, J.-F. 2004. Mécanismes et dynamique du mélange des poudres et caractérisation de l'homogénéité de mélanges de poudres. *Rapport bibliographique : Ecole des Mines d'Albi*. [https://perso.imt-mines-albi.fr/~demyre/contrib/rapport\\_biblio.pdf](https://perso.imt-mines-albi.fr/~demyre/contrib/rapport_biblio.pdf).
- DEN. 2015. *Avancées des recherches sur la séparation-transmutation et le multi-recyclage du plutonium dans les réacteurs à flux de neutrons rapides*. CEA. <https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/rapports/avancees-recherches-separation-transmutation-et-multirecyclage-pu-rnr.pdf>
- DEN. 2017. ASTRID, une option pour la quatrième génération. *Les Défis du CEA*. <https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/les-defis-du-cea/dossier-astrid.pdf>
- DO, H.Q., ARAGÓN, A.M., AND SCHOTT, D.L. 2018. A calibration framework for discrete element model parameters using genetic algorithms. *Advanced Powder Technology* 29, 6, 1393–1406.
- EMERY, E., OLIVER, J., PUGSLEY, T., SHARMA, J., AND ZHOU, J. 2009. Flowability of moist pharmaceutical powders. *Powder Technology* 189, 3, 409–415.
- ENGBLOM, N., SAXÉN, H., ZEVENHOVEN, R., NYLANDER, H., AND ENSTAD, G.G. 2012. Segregation of powder mixtures at filling and complete discharge of silos. *Powder Technology* 215–216, 104–116.
- FERREIRA, T. AND RASBAND, W. 2012. *ImageJ User Guide*.

## Bibliographie

- FORRESTER, A., SOBESTER, A., AND KEANE, A. 2008. *Engineering Design via Surrogate Modelling: A Practical Guide*. John Wiley & Sons, Ltd.
- FORSYTHE, W.L. AND HERTWIG, W.R. 1949. Attrition Characteristics of Fluid Cracking Catalysts. *Industrial & Engineering Chemistry* 41, 6, 1200–1206.
- FREEMAN, R. 2007. Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders — A comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell. *Powder Technology* 174, 1, 25–33.
- FREEMAN, R. AND COOKE, J. 2006. Understanding powder behaviour by measuring bulk, flow and shear properties. *Pharmaceutical Technology Europe*.
- FREEMAN, R.E., COOKE, J.R., AND SCHNEIDER, L.C.R. 2009. Measuring shear properties and normal stresses generated within a rotational shear cell for consolidated and non-consolidated powders. *Powder Technology* 190, 1, 65–69.
- FREEMAN, T. 2017. Optimizing Ceramic Powder Specification. *Article disponible sur le site Freeman Technology*. <https://www.freemantech.co.uk/learn/literature>
- FREEMAN, T. 2019. Developing a design space for a die filling operation. *Article disponible sur le site Freeman Technology*. <https://www.freemantech.co.uk/news/developing-a-design-space-for-a-die-filling-operation>
- FREEMAN, T. 2021. Predicting The In-Process Behavior Of Powders. *Article disponible sur le site Pharmaceutical Online*. <https://www.pharmaceuticalonline.com/doc/predicting-the-in-process-behavior-of-powders-0001>.
- FREEMAN, T., CLAYTON, J., AND ARMSTRONG, B. 2013. The Rheology of Powders and Bulk Materials – a Multivariate Approach Using Dynamic, Shear and Bulk Property Measurements. *Annual Transactions of the Nordic Rheology Society*. 21, 8.
- FROST, J. 2019. *Regression Analysis: An Intuitive Guide for Using and Interpreting Linear Models*. Ebook [statisticsbyjim.com](http://statisticsbyjim.com).
- FU, X., HUCK, D., MAKEIN, L., ARMSTRONG, B., WILLEN, U., AND FREEMAN, T. 2012. Effect of particle shape and size on flow properties of lactose powders. *Particology* 10, 2, 203–208.
- GAMBLE, J.F., DENNIS, A.B., HUTCHINS, P., JONES, J.W., MUSEMBI, P., AND TOBYN, M. 2017. Determination of process variables affecting drug particle attrition within multi-component blends during powder feed transmission. *Pharmaceutical Development and Technology* 22, 7, 904–909.
- GELDART, D. 1973. Types of Gas Fluidisation. *Powder Technology* 7, 285–292.
- GELDART, D., ABDULLAH, E.C., HASSANPOUR, A., NWOKE, L.C., AND WOUTERS, I. 2006. Characterization of powder flowability using measurement of angle of repose. *China Particology* 4, 3, 104–107.
- GIRAUD, M., GATUMEL, C., VAUDEZ, S., ET AL. 2020. Investigation of a granular Bond number based rheological model for polydispersed particulate systems. *Chemical Engineering Science* 228, 115971.
- GOLCHERT, D., MORENO, R., GHADIRI, M., AND LITSTER, J. 2004. Effect of granule morphology on breakage behaviour during compression. *Powder Technology* 143–144, 84–96.
- GUÉRIN, Y. 2008. Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau. *Monographie DEN: Les combustibles nucléaires*, Editions Le Moniteur.
- GUO, Y., WU, C.-Y., KAFUI, K.D., AND THORNTON, C. 2011. 3D DEM/CFD analysis of size-induced segregation during die filling. *Powder Technology* 206, 1–2, 177–188.

## Bibliographie

- HAAS, D., VANDERGHEYNST, A., VLIET, J. VAN, LORENZELLI, R., AND NIGON, J.-L. 1994. Mixed-Oxide Fuel Fabrication Technology and Experience at the Belgonucléaire and CFCa Plants and Further Developments for the MELOX Plant. *Nuclear Technology* 106, 1, 60–82.
- HIRAMATSU, Y. AND OKA, Y. 1966. Determination of the tensile strength of rock by a compression test of an irregular test piece. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts* 3, 2, 89–90.
- HORIBE, M., SONODA, R., AND WATANO, S. 2018. Scale-Up of Lubricant Mixing Process by Using V-Type Blender Based on Discrete Element Method. *Chemical and Pharmaceutical Bulletin* 66, 5, 548–553.
- ISHII, K., SUZUKI, M., SEGAWA, T., KIHARA, Y., YASUDA, M., AND MATSUSAKA, S. 2011. Flowability measurement of pulverized and granulated materials using vibrating tube method. *Advanced Powder Technology* 22, 3, 319–323.
- ISO. 2008. Representation of results of particle size analysis - Part 6: Descriptive and quantitative representation of particle shape and morphology. *ISO 9276-6:2008*.
- ISRAELACHVILI, J.N. 2011. *Intermolecular and Surface Forces*. 3rd Edition. Elsevier Inc.
- JAIN, A., METZGER, M.J., AND GLASSER, B.J. 2013. Effect of particle size distribution on segregation in vibrated systems. *Powder Technology* 237, 543–553.
- JENIKE, A.W. 1964. Storage and Flow of Solids, Bulletin 123. *Engineering Experiment Station*.
- JONES, D.R. AND SCHONLAU, M. 1998. Efficient Global Optimization of Expensive Black-Box Functions. *Journal of Global Optimization* 13, 455–492.
- KAHRIZSANGI, H.S., BARLETTA, D., AND POLETO, M. 2016. Mechanical Properties of Agglomerates Produced by the Mechanical Vibration of Cohesive Powders. *KONA Powder and Particle Journal* 33, 0, 287–295.
- LETURIA, M., BENALI, M., LAGARDE, S., RONGA, I., AND SALEH, K. 2014. Characterization of flow properties of cohesive powders: A comparative study of traditional and new testing methods. *Powder Technology* 253, 406–423.
- LETURIA, M. AND SALEH, K. 2014. Fluidisation gaz-solide - Bases et théorie. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J4100*.
- LETURIA, M. AND SALEH, K. 2016. Fluidisation gaz-solide - Particules fines et nanoparticules. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J4101*.
- LI, J., WEBB, C., PANDIELLA, S.S., AND CAMPBELL, G.M. 2003. Discrete particle motion on sieves—a numerical study using the DEM simulation. *Powder Technology* 133, 1, 190–202.
- LI, J. AND WU, Y. 2014. Lubricants in Pharmaceutical Solid Dosage Forms. *Lubricants* 2, 1, 21–43.
- LIM, E.W.C. 2016. Density segregation of dry and wet granular mixtures in vibrated beds. *Advanced Powder Technology* 27, 6, 2478–2488.
- LIU, D.-M., LIN, J.-T., AND TUAN, W.H. 1999. Interdependence between green compact property and powder agglomeration and their relation to the sintering behaviour of zirconia powder. *Ceramics International* 25, 6, 551–559.
- LIU, Y., GUO, X., LU, H., AND GONG, X. 2015. An Investigation of the Effect of Particle Size on the Flow Behavior of Pulverized Coal. *Procedia Engineering* 102, 698–713.
- LOMMEN, S., MOHAJERI, M., LODEWIJKS, G., AND SCHOTT, D. 2019. DEM particle upscaling for large-scale bulk handling equipment and material interaction. *Powder Technology* 352, 273–282.

## Bibliographie

- MADIAN, A. 2019. Étude de l'influence des caractéristiques physiques des poudres UO<sub>2</sub> sur leurs propriétés rhéologiques. Thèse de doctorat. Université de Technologie de Compiègne.
- MADIAN, A., LETURIA, M., ABLITZER, C., MATHERON, P., BERNARD-GRANGER, G., AND SALEH, K. 2020. Impact of fine particles on the rheological properties of uranium dioxide powders. *Nuclear Engineering and Technology* 52, 8, 1714–1723.
- MARIGO, M. AND STITT, E.H. 2015. Discrete Element Method (DEM) for Industrial Applications: Comments on Calibration and Validation for the Modelling of Cylindrical Pellets. *KONA Powder and Particle Journal* 32, 0, 236–252.
- MARIN, M., VADUVA, C., RUSU, M.R., AND RUSU, L. 2019. Experimental determination of the coefficient of restitution. *IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng.*
- MARTIN, C. AND BORDIA, R.K. 2008. Influence of Adhesion and Friction on the Geometry of Packings of Spherical Particles. *Physical Review E* 77.
- MATEO-ORTIZ, D. AND MÉNDEZ, R. 2015. Relationship between residence time distribution and forces applied by paddles on powder attrition during the die filling process. *Powder Technology* 278, 111–117.
- MATEO-ORTIZ, D., MUZZIO, F.J., AND MÉNDEZ, R. 2014. Particle size segregation promoted by powder flow in confined space: The die filling process case. *Powder Technology* 262, 215–222.
- MEHROTRA, A., CHAUDHURI, B., FAQIH, A., TOMASSONE, M.S., AND MUZZIO, F.J. 2009. A modeling approach for understanding effects of powder flow properties on tablet weight variability. *Powder Technology* 188, 3, 295–300.
- MENDEZ, R., VELAZQUEZ, C., AND MUZZIO, F.J. 2012. Effect of feed frame design and operating parameters on powder attrition, particle breakage, and powder properties. *Powder Technology* 229, 253–260.
- MOOSAKAZEMI, F., TAVAKOLI MOHAMMADI, M.R., MOHSENI, M., KARAMOOZIAN, M., AND ZAKERI, M. 2017. Effect of design and operational parameters on particle morphology in ball mills. *International Journal of Mineral Processing* 165, 41–49.
- MORIN, G. AND BRIENS, L. 2013. The Effect of Lubricants on Powder Flowability for Pharmaceutical Application. *AAPS PharmSciTech* 14, 3, 1158–1168.
- MÜLLER, P. AND TOMAS, J. 2014. Simulation and calibration of granules using the discrete element method. *Particuology* 12, 40–43.
- NALLURI, V.R. 2011. Novel Process Analytical Technological Approaches of Dynamic Image Analysis for Pharmaceutical Dry Particulate Systems. Thèse de doctorat. Université de Basel.
- NDIAYE, A. 2006. Combustible nucléaire UO<sub>2</sub> à microstructures pilotées: compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température. Thèse de Doctorat. Université de Grenoble.
- NIGON, J.-L. AND BASTARD, G.L. 2003. Fabrication des combustibles au plutonium pour les RNR. *Techniques de l'Ingénieur. Référence BN3632.*
- OLSSON, A., SANDBERG, G., AND DAHLBLOM, O. 2003. On Latin hypercube sampling for structural reliability analysis. *Structural Safety* 25, 47–68.
- OROZCO, L.F. 2019. Modélisation numérique et rhéologie des milieux granulaires à particules fragmentables en vue d'application aux broyeurs à boulets. Thèse de doctorat. Université de Montpellier.

## Bibliographie

- OTSU, N. 1979. A Threshold Selection Method from Gray-Level Histograms. *IEEE Transactions on Systems, Man and Cybernetics* 9, 1, 62–66.
- PARANT, P. 2016. Compaction de microsphères poreuses d'oxyde de lanthanides : approche expérimentale et simulations numériques. Thèse de doctorat. Université de Grenoble Alpes.
- PETIT, J., BURGAIN, J., GAIANI, C., AND SCHER, J. 2017. Aptitude à l'écoulement de poudres alimentaires : impact des propriétés physicochimiques des particules. *Industries Alimentaires et Agricoles*, 26–30.
- PINGALI, K., MENDEZ, R., LEWIS, D., MICHNIAK-KOHN, B., CUITINO, A., AND MUZZIO, F. 2011. Mixing order of glidant and lubricant – Influence on powder and tablet properties. *International Journal of Pharmaceutics* 409, 1, 269–277.
- PINTO, T.C.S., LIMA, O.A., AND LEAL FILHO, L.S. 2009. Sphericity of apatite particles determined by gas permeability through packed beds. *Mining, Metallurgy & Exploration* 26, 2, 105–108.
- ROESSLER, T., RICHTER, C., KATTERFELD, A., AND WILL, F. 2019. Development of a standard calibration procedure for the DEM parameters of cohesionless bulk materials – part I: Solving the problem of ambiguous parameter combinations. *Powder Technology* 343, 803–812.
- ROSKILLY, S.J., COLBOURN, E.A., ALLI, O., ET AL. 2010. Investigating the effect of shape on particle segregation using a Monte Carlo simulation. *Powder Technology* 203, 2, 211–222.
- SALEH, K. AND GUIGON, P. 2009a. Caractérisation et analyse des poudres - Propriétés physiques des solides divisés. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J2251*.
- SALEH, K. AND GUIGON, P. 2009b. Caractérisation et analyse des poudres - Propriétés comportementales des solides divisés. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J2252*.
- SALEH, K. AND GUIGON, P. 2009c. Mise en œuvre des poudres - Granulation humide : bases et théorie. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J2253*.
- SALEH, K. AND GUIGON, P. 2012. Mise en œuvre des poudres - Stockage et écoulement des silos. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J2255*.
- SALEH, K. AND LETURIA, M. 2020. Stockage et écoulement des solides granulaires dans les silos - Ingénierie et accidentologie. *Techniques de l'Ingénieur, Référence J2259*.
- SANTANA, H.H.S., MAIER, G., AND RÓDENAS, J. 2011. Flowability analysis of uranium dioxide powder at different temperatures containing different lubricants. *Applied Radiation and Isotopes* 69, 8, 1162–1164.
- SASTRY, K.V.S. AND FUERSTENAU, D.W. 1973. Mechanisms of agglomerate growth in green pelletization. *Powder Technology* 7, 2, 97–105.
- SCHILLER, J.J., SRINIVASAN, R.A., AND SPIEGEL, M.R. 2013. *Probability and Statistics*. Schaum's Outline.
- SCHINDELIN, J., ARGANDA-CARRERAS, I., FRISE, E., ET AL. 2012. Fiji: an open-source platform for biological-image analysis. *Nature Methods* 9, 7, 676–682.
- SCHULZE, D. 2008. *Flow Properties of Powders and Bulk Solids*. Springer.
- SEIL, P., GÓMEZ, J.O., PIRKER, S., AND KLOSS, C. 2012. Numerical and experimental studies on segregation patterns in granular flow from two hoppers. *ECCOMAS 2012 - European Congress on Computational Methods in Applied Sciences and Engineering, e-Book Full Papers*, 5389–5402.
- SEISS, M. 1995. Etude du broyage de poudres d'oxydes nucléaires. Thèse de doctorat. Université Pierre et Marie Curie.

## Bibliographie

- SEVILLE, J., TÜZÜN, U., AND CLIFT, R. 1997. *Processing of Particulate Solids*. Springer Netherlands.
- SEVILLE, J.P.K., WILLETT, C.D., AND KNIGHT, P.C. 2000. Interparticle forces in fluidisation: a review. *Powder Technology* 113, 3, 261–268.
- SHI, G. 2014. Chapter 8 - Kriging. In: G. Shi, ed., *Data Mining and Knowledge Discovery for Geoscientists*. Elsevier, Oxford, 238–274.
- SHINOHARA, K. AND GOLMAN, B. 2002. Dynamic shear properties of particle mixture by rotational shear test. *Powder Technology* 122, 2, 255–258.
- SHINOHARA, K. AND GOLMAN, B. 2003. Density segregation of a binary solids mixture during batch operation in a two-dimensional hopper. *Advanced Powder Technology* 14, 3, 333–347.
- SHIPWAY, P.H. AND HUTCHINGS, I.M. 1993. Attrition of brittle spheres by fracture under compression and impact loading. *Powder Technology* 76, 1, 23–30.
- SINGHAI, S.K., CHOPRA, V.S., NAGAR, M., JAIN, N., AND TRIVEDI, P. 2010. Scale Up factor determination of V Blender: An overview. *Pharmacia Lettre* 2, 2, 408–433.
- SU, D., LUO, Z., LEI, L., AND ZHAO, Y. 2018. Segregation modes, characteristics, and mechanisms of multi-component lignite in a vibrated gas-fluidized bed. *International Journal of Mining Science and Technology* 28, 2, 251–258.
- SYED, Z., TEKESTE, M., AND WHITE, D. 2017. A coupled sliding and rolling friction model for DEM calibration. *Journal of Terramechanics* 72, 9–20.
- TABOR, D. 1948. A Simple Theory of Static and Dynamic Hardness. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 192, 1029, 247–274.
- TAGHIAN DEHAGHANI, M., AHMADIAN, M., AND FATHI, M. 2014. Effect of ball milling on the physical and mechanical properties of the nanostructured Co–Cr–Mo powders. *Advanced Powder Technology* 25, 6, 1793–1799.
- TAYLOR, D.W. 1948. *Fundamentals of Soil Mechanics*. New York, J. Wiley.
- TOMAS, J. 2004. Fundamentals of cohesive powder consolidation and flow. *Granular Matter* 6, 2–3, 75–86.
- TOMAS, J. AND KLEINSCHMIDT, S. 2009. Improvement of Flowability of Fine Cohesive Powders by Flow Additives. *Chemical Engineering & Technology* 32, 10, 1470–1483.
- TYKHONIUK, R., TOMAS, J., LUDING, S., KAPPL, M., HEIM, L., AND BUTT, H.-J. 2007. Ultrafine cohesive powders: From interparticle contacts to continuum behaviour. *Chemical Engineering Science* 62, 11, 2843–2864.
- VAIDYA, A. AND PATHAK, K. 2019. Mechanical stability of dental materials. In: *Applications of Nanocomposite Materials in Dentistry*. Elsevier, 285–305.
- VISSER, J. 1989. Van der Waals and other cohesive forces affecting powder fluidization. *Powder Technology* 58, 1, 1–10.
- VOLLATH, D., WEDEMEYER, H., AND HANUS, H. 1982. Influence of process parameters on the fabrication of UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> pellets using the granulation technique. *Journal of Nuclear Materials* 106, 1, 191–197.
- WAGNER, T. AND LIPINSKI, H.-G. 2013. IJBlob: An ImageJ Library for Connected Component Analysis and Shape Analysis. *Journal of Open Research Software* 1, 1, e6.

## Bibliographie

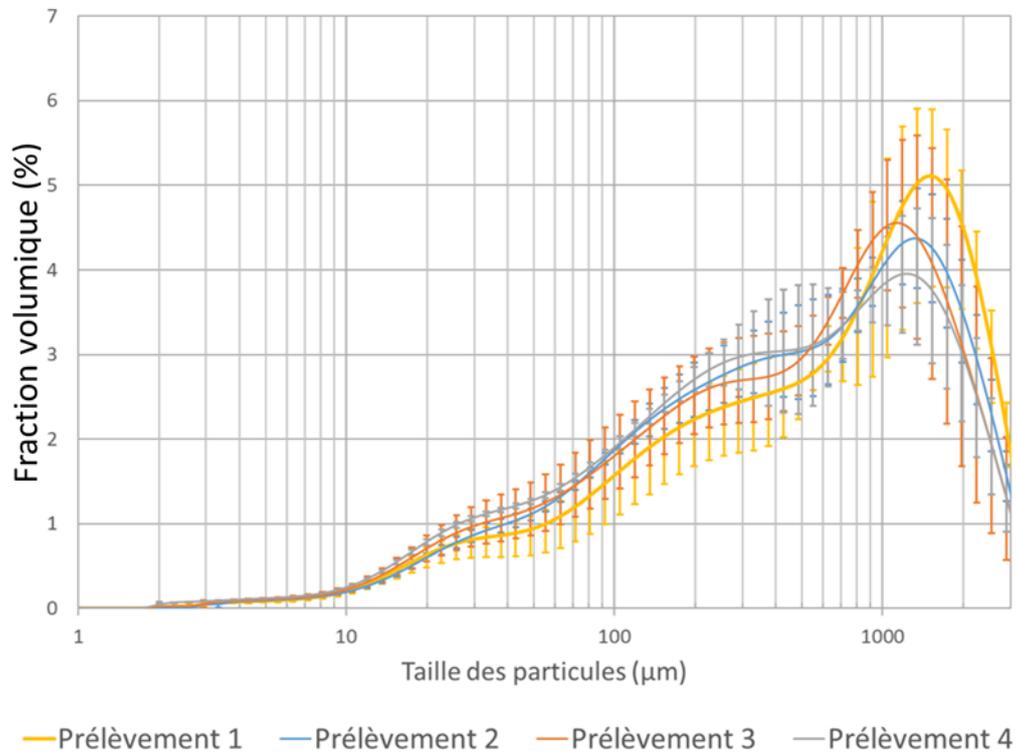
- WANG, M., LU, Z., WAN, W., AND ZHAO, Y. 2021. A calibration framework for the microparameters of the DEM model using the improved PSO algorithm. *Advanced Powder Technology* 32, 2, 358–369.
- WASSERSTEIN, R.L. AND LAZAR, N.A. 2016. The ASA Statement on p-Values: Context, Process, and Purpose. *The American Statistician* 70, 2, 129–133.
- WIĄCEK, J., MOLENDĄ, M., HORABIŁ, J., AND OOI, J.Y. 2012. Influence of grain shape and intergranular friction on material behavior in uniaxial compression: Experimental and DEM modeling. *Powder Technology* 217, 435–442.
- WOODCOCK, C.R. AND MASON, J.S. 1988. *Handling of Bulk Solids*. Elsevier.
- WOOLDRIDGE, J.M. 1991. A note on computing r-squared and adjusted r-squared for trending and seasonal data. *Economics Letters* 36, 1, 49–54.
- WU, C.-Y. AND COCKS, A.C.F. 2006. Numerical and experimental investigations of the flow of powder into a confined space. *Mechanics of Materials* 38, 4, 304–324.
- WU, C.-Y., COCKS, A.C.F., GILLIA, O.T., AND THOMPSON, D.A. 2003. Experimental and numerical investigations of powder transfer. *Powder Technology* 138, 2–3, 216–228.
- ZHOU, Y.C., XU, B.H., YU, A.B., AND ZULLI, P. 2002. An experimental and numerical study of the angle of repose of coarse spheres. *Powder Technology* 125, 1, 45–54.
- ZHU, H.P., ZHOU, Z.Y., YANG, R.Y., AND YU, A.B. 2008. Discrete particle simulation of particulate systems: A review of major applications and findings. *Chemical Engineering Science* 63, 23, 5728–5770.

# **ANNEXES**

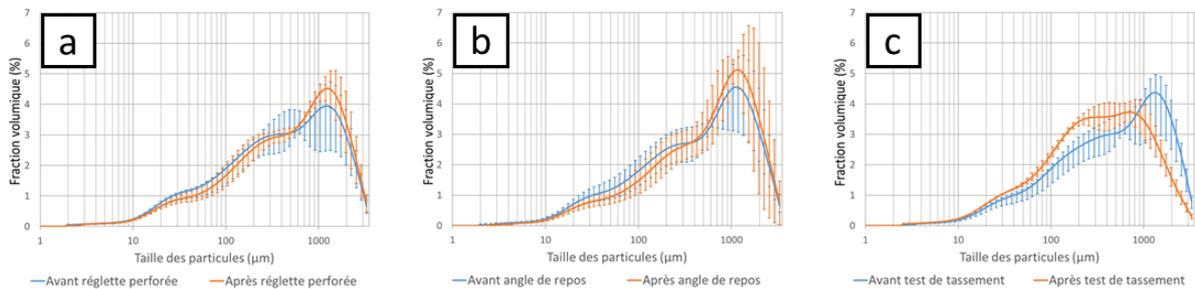


## ANNEXES

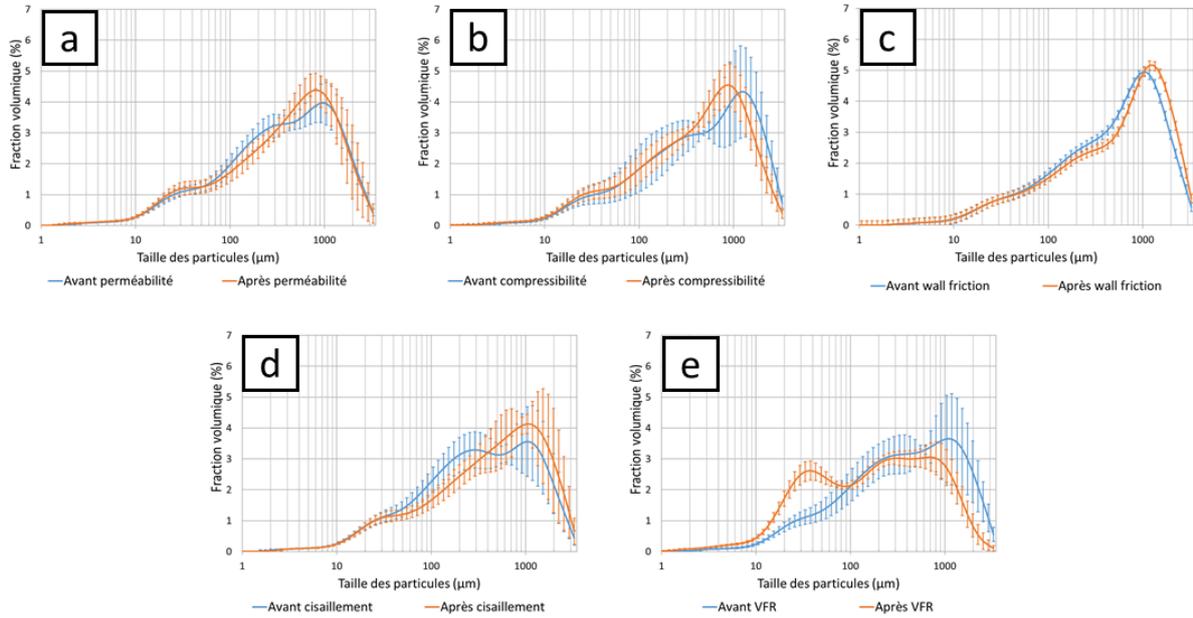
### Annexe II.1 : Distribution granulométrique en fonction de la profondeur dans le pot de stockage



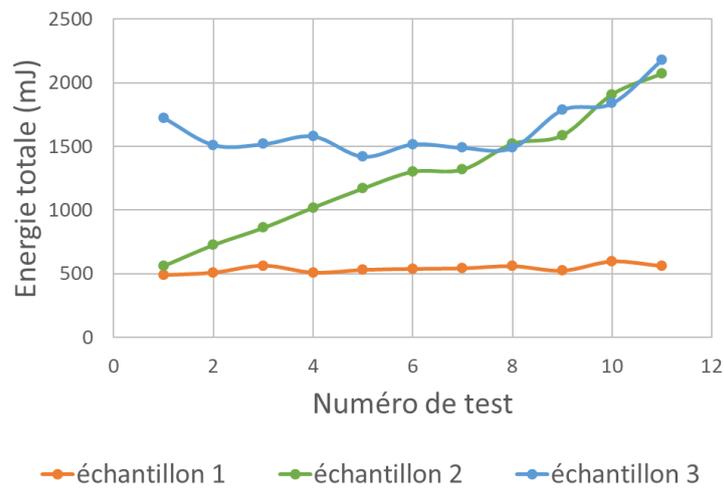
### Annexe II.2 : Distributions granulométriques avant et après le test d'écoulement spontané (a), l'angle de repos (b) et le test de tassement (c)



Annexe II.3 : Distributions granulométriques avant et après le test de perméabilité (a), le test de compressibilité (b), le test de wall friction (c), le test de cisaillement (d) et le test VFR (e)



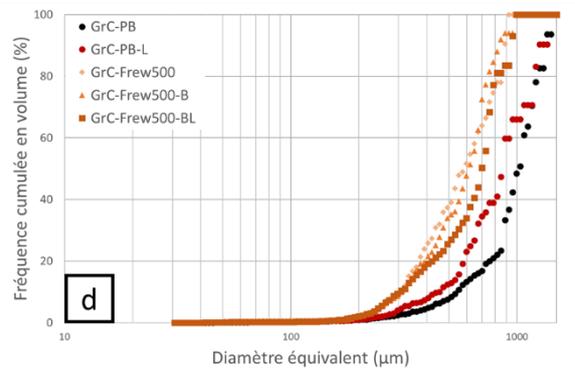
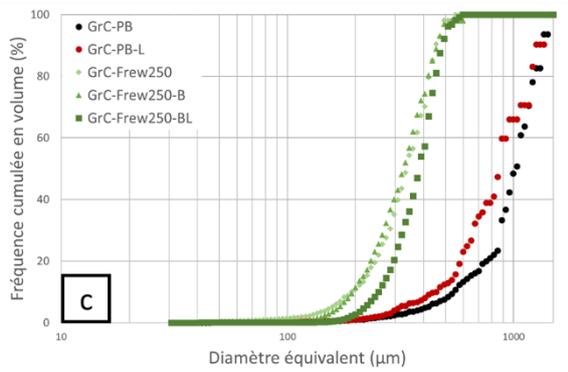
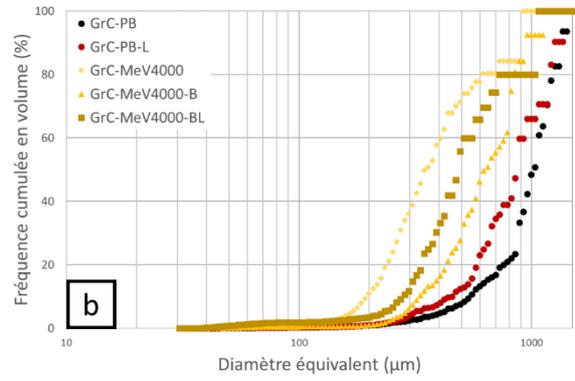
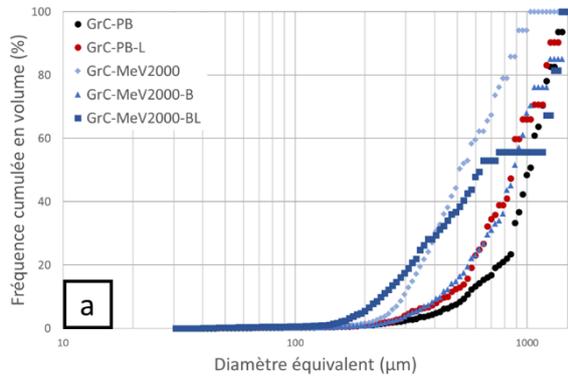
Annexe II.4 : Répétabilité du test VFR des tests en série pour le GrC-PB



Annexe III.1 : Valeurs des  $d_{10}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{90}$ ,  $d_{3,2}$  et du span pour toutes les poudres GrC

Échantillon	$d_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{3,2}$ ( $\mu\text{m}$ )	Span
<b>GrC-PB</b>	$28 \pm 2$	$259 \pm 41$	$1021 \pm 143$	$61 \pm 6$	$3,86 \pm 0,41$
<b>GrC-PB-L</b>	$89 \pm 50$	$768 \pm 223$	$2050 \pm 195$	$163 \pm 89$	$2,65 \pm 0,52$
<b>GrC-MeV2000</b>	$26 \pm 2$	$185 \pm 8$	$567 \pm 75$	$62 \pm 6$	$2,92 \pm 0,27$
<b>GrC-MeV2000-B</b>	$29 \pm 2$	$235 \pm 26$	$932 \pm 397$	$70 \pm 6$	$3,76 \pm 1,20$
<b>GrC-MeV2000-BL</b>	$36 \pm 14$	$282 \pm 69$	$1423 \pm 620$	$72 \pm 19$	$4,79 \pm 1,55$
<b>GrC-MeV4000</b>	$32 \pm 3$	$217 \pm 28$	$1173 \pm 295$	$77 \pm 7$	$5,22 \pm 0,80$
<b>GrC-MeV4000-B</b>	$45 \pm 11$	$283 \pm 61$	$1597 \pm 385$	$99 \pm 22$	$5,47 \pm 0,77$
<b>GrC-MeV4000-BL</b>	$39 \pm 7$	$275 \pm 42$	$1653 \pm 246$	$58 \pm 22$	$5,94 \pm 1,01$
<b>GrC-Frew250</b>	$22 \pm 1$	$168 \pm 19$	$416 \pm 21$	$44 \pm 4$	$2,36 \pm 0,16$
<b>GrC-Frew250-B</b>	$33 \pm 2$	$207 \pm 10$	$428 \pm 10$	$74 \pm 3$	$1,90 \pm 0,05$
<b>GrC-Frew250-BL</b>	$27 \pm 1$	$194 \pm 7$	$396 \pm 18$	$47 \pm 1$	$1,91 \pm 0,03$
<b>GrC-Frew500</b>	$28 \pm 1$	$269 \pm 23$	$861 \pm 161$	$63 \pm 2$	$3,09 \pm 0,40$
<b>GrC-Frew500-B</b>	$70 \pm 10$	$358 \pm 33$	$772 \pm 38$	$130 \pm 13$	$1,97 \pm 0,11$
<b>GrC-Frew500-BL</b>	$38 \pm 8$	$266 \pm 36$	$640 \pm 68$	$67 \pm 13$	$2,27 \pm 0,10$

Annexe III.2 : Fréquence cumulée en volume des agglomérats étudiés pour l'analyse morphologique pour le mélangeur en V à 2000 tours.min<sup>-1</sup> (a) et à 4000 tours.min<sup>-1</sup> (b) et pour la voie Frewitt avec un tamis de 250 μm (c) et de 500 μm (d)



Annexe III.3 : Valeurs des  $SF_{10}$ ,  $SF_{50}$  et  $SF_{90}$  de l'élongation pour toutes les poudres GrC

Échantillon	$SF_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )
GrC-PB	$0,02 \pm 0,02$	$0,15 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,02$
<b>GrC-PB-L</b>	<b><math>0,03 \pm 0,02</math></b>	<b><math>0,12 \pm 0,02</math></b>	<b><math>0,25 \pm 0,02</math></b>
GrC-MeV2000	$0,01 \pm 0,02$	$0,08 \pm 0,02$	$0,17 \pm 0,02$
GrC-MeV2000-B	$0,01 \pm 0,02$	$0,08 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,02$
GrC-MeV2000-BL	$0,02 \pm 0,02$	$0,07 \pm 0,02$	$0,14 \pm 0,02$
GrC-MeV4000	$0,02 \pm 0,02$	$0,07 \pm 0,02$	$0,24 \pm 0,02$
GrC-MeV4000-B	$0,00 \pm 0,02$	$0,05 \pm 0,02$	$0,22 \pm 0,02$
GrC-MeV4000-BL	$0,01 \pm 0,02$	$0,05 \pm 0,02$	$0,21 \pm 0,02$
GrC-Frew250	$0,04 \pm 0,02$	$0,15 \pm 0,02$	$0,34 \pm 0,02$
GrC-Frew250-B	$0,02 \pm 0,02$	$0,12 \pm 0,02$	$0,29 \pm 0,02$
GrC-Frew250-BL	$0,01 \pm 0,02$	$0,08 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,02$
GrC-Frew500	$0,03 \pm 0,02$	$0,13 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,02$
GrC-Frew500-B	$0,02 \pm 0,02$	$0,13 \pm 0,02$	$0,31 \pm 0,02$
GrC-Frew500-BL	$0,02 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,02$	$0,23 \pm 0,02$

Annexe III.4 : Valeurs des  $SF_{10}$ ,  $SF_{50}$  et  $SF_{90}$  de la circularité pour toutes les poudres GrC

Échantillon	$SF_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )
GrC-PB	$0,82 \pm 0,01$	$0,88 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$
<b>GrC-PB-L</b>	<b><math>0,82 \pm 0,01</math></b>	<b><math>0,87 \pm 0,01</math></b>	<b><math>0,95 \pm 0,01</math></b>
GrC-MeV2000	$0,85 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$
GrC-MeV2000-B	$0,87 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
GrC-MeV2000-BL	$0,80 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
GrC-MeV4000	$0,89 \pm 0,01$	$0,94 \pm 0,01$	$0,97 \pm 0,01$
GrC-MeV4000-B	$0,89 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
GrC-MeV4000-BL	$0,84 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
GrC-Frew250	$0,82 \pm 0,01$	$0,88 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$
GrC-Frew250-B	$0,85 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$
GrC-Frew250-BL	$0,86 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
GrC-Frew500	$0,80 \pm 0,01$	$0,86 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,01$
GrC-Frew500-B	$0,86 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$
GrC-Frew500-BL	$0,87 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$	$0,98 \pm 0,01$

Annexe III.5 : Valeurs de la perméabilité au cours de l'enchaînement des tests au FT4

	GrC-PB	GrC-PB-L	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000-BL	GrC-Frew250-BL	GrC-Frew500-BL
$\epsilon_{compressibilité}$	2,31 ± 1,48	5,11 ± 1,10	5,99 ± 0,61	4,47 ± 1,46	4,05 ± 2,11	6,34 ± 2,41
$\epsilon_{cisaillement}$	4,37 ± 2,45	8,99 ± 2,17	5,59 ± 0,45	6,30 ± 1,28	5,85 ± 2,21	5,90 ± 2,01
$\epsilon_{VFR}$	32,46 ± 4,66	11,31 ± 2,73	5,55 ± 2,54	23,51 ± 3,51	7,61 ± 2,95	8,65 ± 2,86

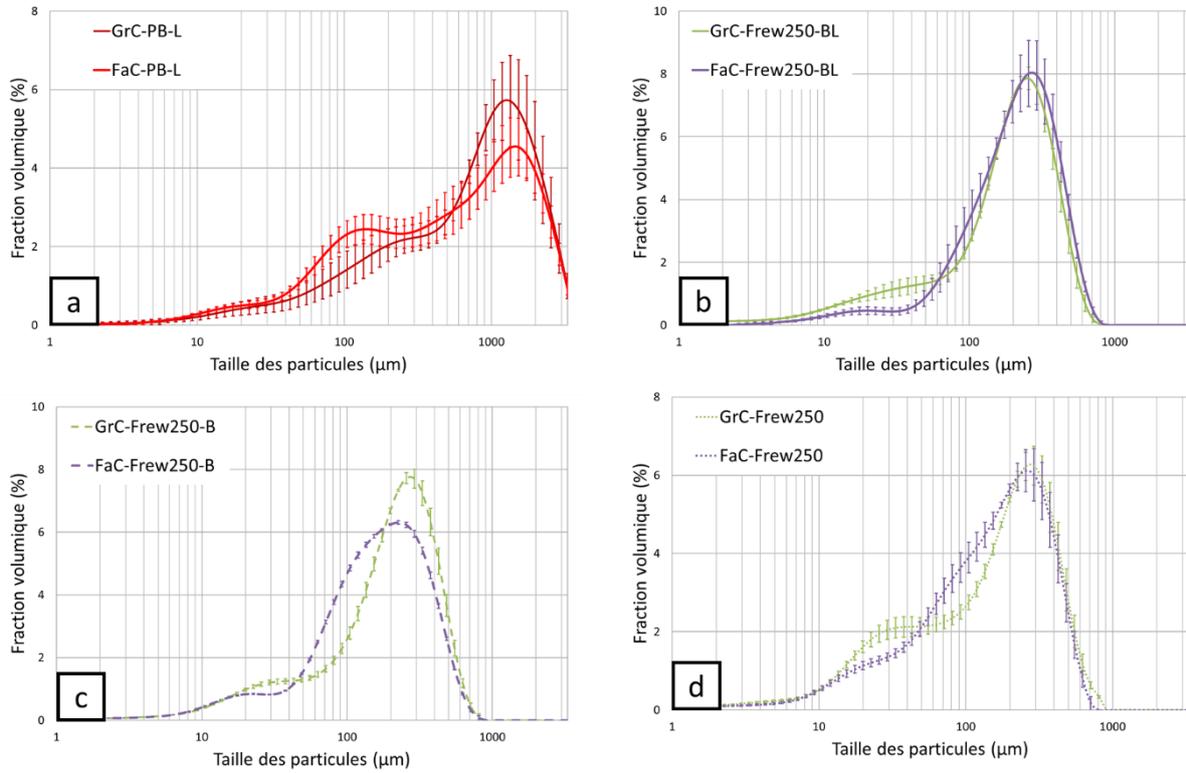
Annexe III.6 : Densités en vrac avant et après compression pour toutes les poudres GrC

	GrC-PB	GrC-PB-L	GrC-MeV2000-BL	GrC-MeV4000-BL	GrC-Frew250-BL	GrC-Frew500-BL
Densité en vrac avant compression (g.mL <sup>-1</sup> )	3,20 ± 0,04	3,39 ± 0,03	3,14 ± 0,05	2,97 ± 0,09	3,49 ± 0,03	3,62 ± 0,04
Densité en vrac après compression (g.mL <sup>-1</sup> )	3,58 ± 0,03	3,66 ± 0,05	3,45 ± 0,06	3,26 ± 0,08	3,76 ± 0,04	3,86 ± 0,07

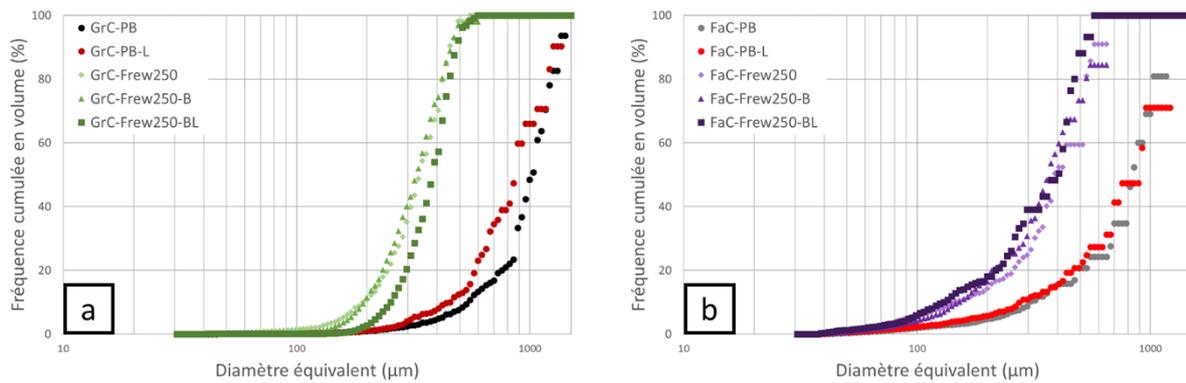
Annexe III.7 : Valeurs des densités hydrostatiques et des porosités ouvertes et fermées des pastilles

Échantillon	Densité hydrostatique (%m <sub>v</sub> th)	Porosité ouverte (%)	Porosité fermée (%)
GrC-PB-L	91,2 ± 0,1	5,7 ± 0,6	3,1 ± 0,1
GrC-MeV2000-BL	89,7 ± 0,1	7,6 ± 0,4	2,7 ± 0,1
GrC-MeV4000-BL	90,1 ± 0,1	7,2 ± 0,4	2,8 ± 0,1
GrC-Frew250-BL	88,1 ± 0,1	9,4 ± 0,7	2,5 ± 0,1
GrC-Frew500-BL	87,1 ± 0,1	10,4 ± 0,6	2,5 ± 0,1

Annexe IV.1 : Comparaison des distributions granulométriques des poudres issues des deux lots après lubrification de la poudre broyée (a), tamisage/forçage (b), brassage (c) et lubrification (d)



Annexe IV.2 : Fréquence cumulée en volume des agglomérats étudiés pour l'analyse morphologique pour le lot GrC (a) et le lot FaC (b)



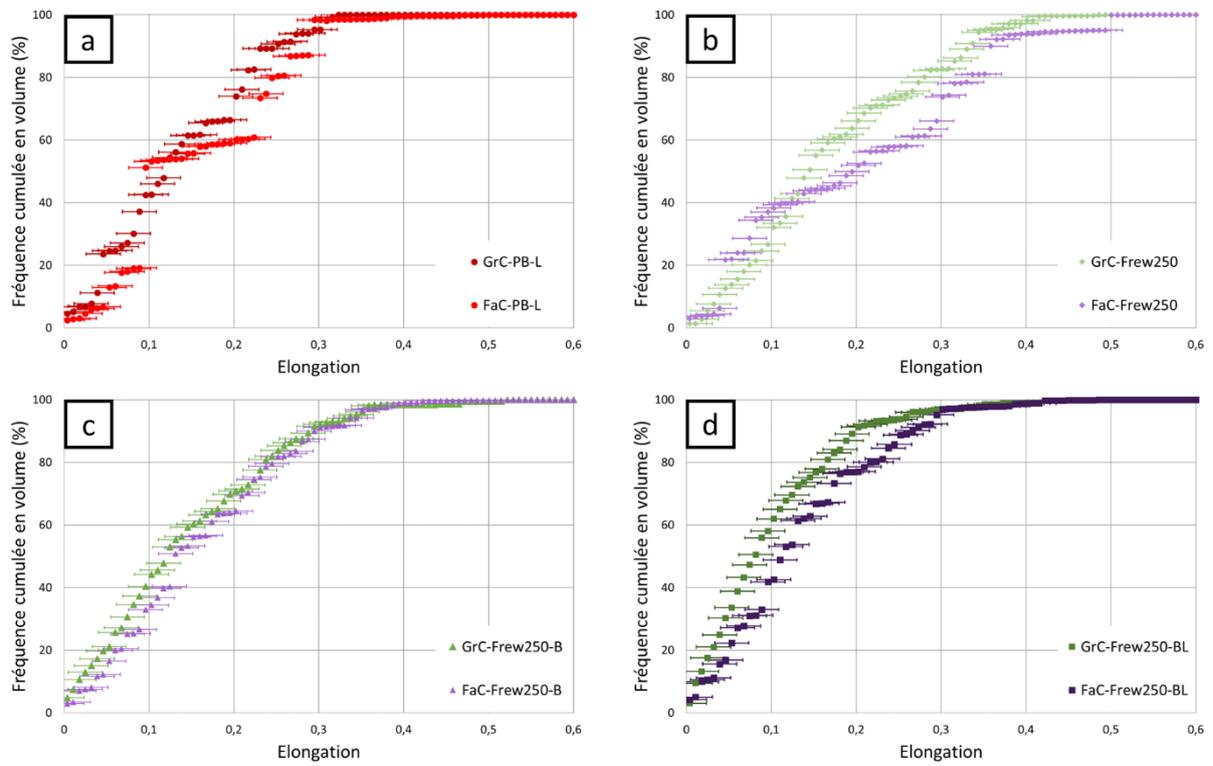
Annexe IV.3 : Valeurs des  $SF_{10}$ ,  $SF_{50}$  et du  $SF_{90}$  de l'élongation pour les échantillons des deux lots de poudre

Lot	Échantillon	$SF_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )
GrC	GrC-PB	$0,02 \pm 0,02$	$0,15 \pm 0,02$	$0,32 \pm 0,02$
	GrC-PB-L	$0,03 \pm 0,02$	$0,12 \pm 0,02$	$0,25 \pm 0,02$
	GrC-Frew250	$0,04 \pm 0,02$	$0,15 \pm 0,02$	$0,34 \pm 0,02$
	GrC-Frew250-B	$0,02 \pm 0,02$	$0,12 \pm 0,02$	$0,29 \pm 0,02$
	GrC-Frew250-BL	$0,01 \pm 0,02$	$0,08 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,02$
FaC	FaC-PB	$0,02 \pm 0,02$	$0,24 \pm 0,02$	$0,41 \pm 0,02$
	FaC-PB-L	$0,05 \pm 0,02$	$0,09 \pm 0,02$	$0,29 \pm 0,02$
	FaC-Frew250	$0,04 \pm 0,02$	$0,20 \pm 0,02$	$0,36 \pm 0,02$
	FaC-Frew250-B	$0,03 \pm 0,02$	$0,13 \pm 0,02$	$0,34 \pm 0,02$
	FaC-Frew250-BL	$0,02 \pm 0,02$	$0,11 \pm 0,02$	$0,27 \pm 0,02$

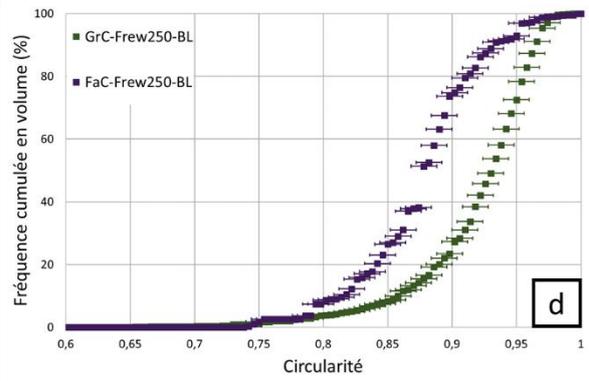
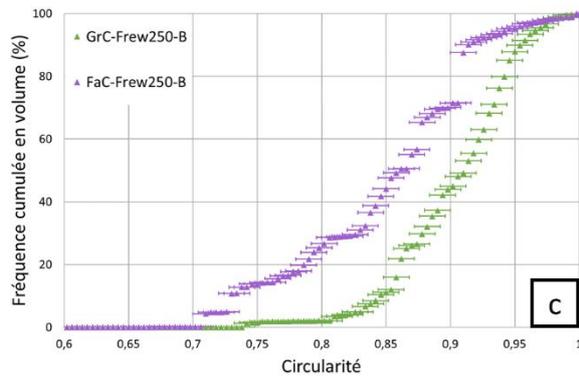
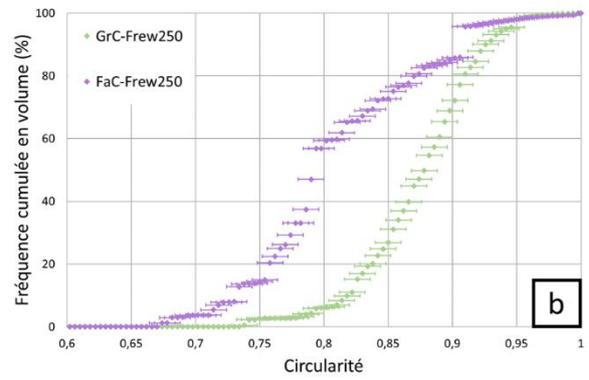
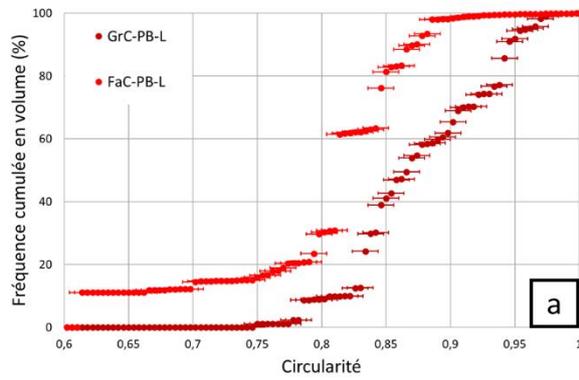
Annexe IV.4 : Valeurs des  $SF_{10}$ ,  $SF_{50}$  et du  $SF_{90}$  de la circularité pour les échantillons des deux lots de poudre

Lot	Échantillon	$SF_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$SF_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )
GrC	GrC-PB	$0,82 \pm 0,01$	$0,88 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$
	GrC-PB-L	$0,82 \pm 0,01$	$0,87 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$
	GrC-Frew250	$0,82 \pm 0,01$	$0,88 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$
	GrC-Frew250-B	$0,85 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$	$0,95 \pm 0,01$
	GrC-Frew250-BL	$0,86 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$	$0,96 \pm 0,01$
FaC	FaC-PB	$0,73 \pm 0,01$	$0,80 \pm 0,01$	$0,85 \pm 0,01$
	FaC-PB-L	$0,61 \pm 0,01$	$0,81 \pm 0,01$	$0,87 \pm 0,01$
	FaC-Frew250	$0,73 \pm 0,01$	$0,79 \pm 0,01$	$0,91 \pm 0,01$
	FaC-Frew250-B	$0,73 \pm 0,01$	$0,87 \pm 0,01$	$0,92 \pm 0,01$
	FaC-Frew250-BL	$0,82 \pm 0,01$	$0,87 \pm 0,01$	$0,93 \pm 0,01$

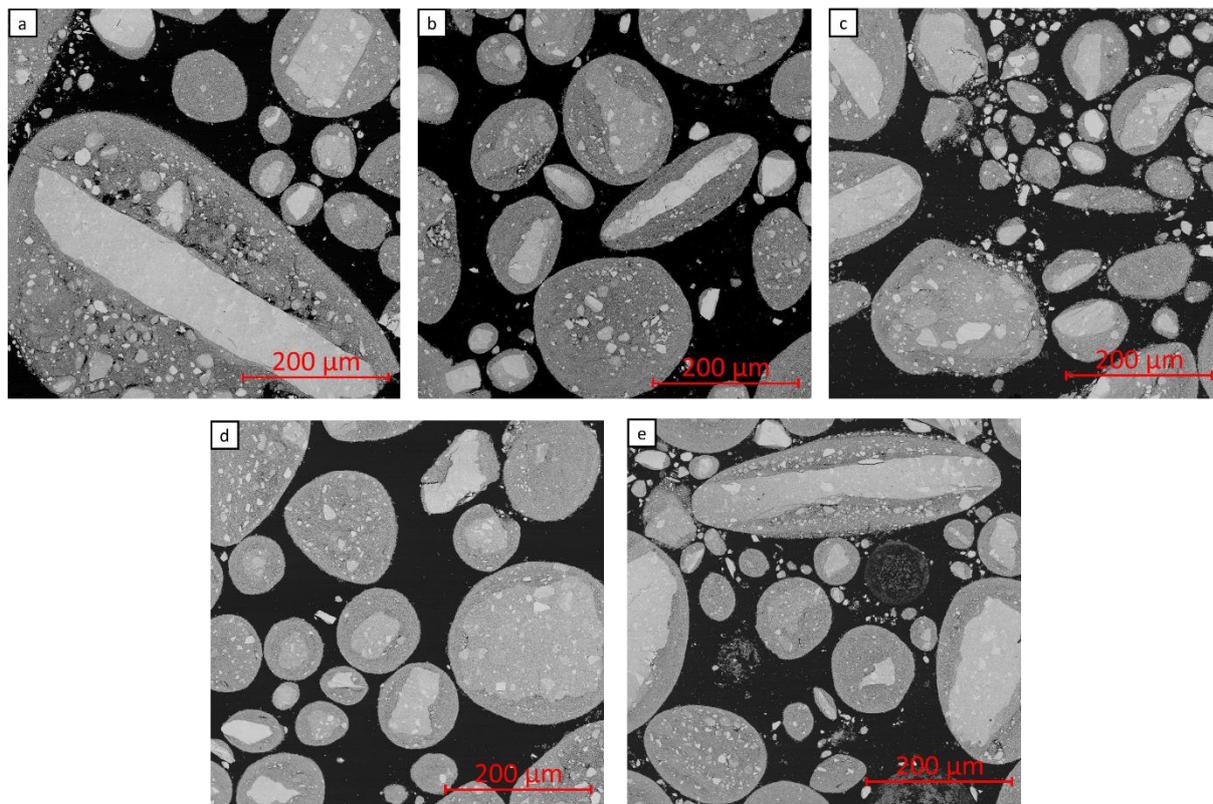
Annexe IV.5 : Comparaison des élongations des poudres issues des deux lots après lubrification de la poudre broyée (a), tamisage/forçage (b), brassage (c) et lubrification (d)



Annexe IV.6 : Comparaison des circularités des poudres issues des deux lots après lubrification de la poudre broyée (a), tamisage/forçage (b), brassage (c) et lubrification (d)



Annexe IV.7 : Micrographie MEB de la structure des agglomérats pour les sous-lots FaC-PB (a), FaC-PB-L (b), FaC-Frew250 (c), FaC-Frew250-B (d) et FaC-Frew250-BL (e) (microscopie électronique à balayage)



Annexe IV.8 : Valeurs de la perméabilité au cours de l'enchaînement des tests au FT4 (X : mesure non réalisée)

Lot	Échantillon	$\epsilon_{compressibilité}$	$\epsilon_{wall\ friction}$	$\epsilon_{cisaillement}$	$\epsilon_{VFR}$
GrC	GrC-PB	$2,31 \pm 1,48$	X	$4,37 \pm 2,45$	$32,46 \pm 4,66$
	GrC-PB-L	$5,11 \pm 1,10$	X	$8,99 \pm 2,17$	$11,31 \pm 5,85$
	GrC-Frew250-BL	$4,05 \pm 2,11$	X	$5,85 \pm 2,21$	$7,61 \pm 2,95$
FaC	FaC-PB	$1,35 \pm 1,07$	$4,96 \pm 3,03$	$6,11 \pm 3,66$	$5,92 \pm 3,47$
	FaC-PB-L	$2,83 \pm 0,87$	$2,79 \pm 0,92$	$3,51 \pm 1,49$	$2,32 \pm 1,21$
	FaC-Frew250	$1,64 \pm 1,31$	$3,86 \pm 2,31$	$3,26 \pm 2,86$	$7,25 \pm 3,35$
	FaC-Frew250-B	$1,62 \pm 0,74$	$2,98 \pm 1,24$	$4,53 \pm 2,31$	$7,60 \pm 3,13$
	FaC-Frew250-BL	$4,11 \pm 2,26$	$2,70 \pm 1,79$	$4,60 \pm 2,43$	$6,66 \pm 3,54$

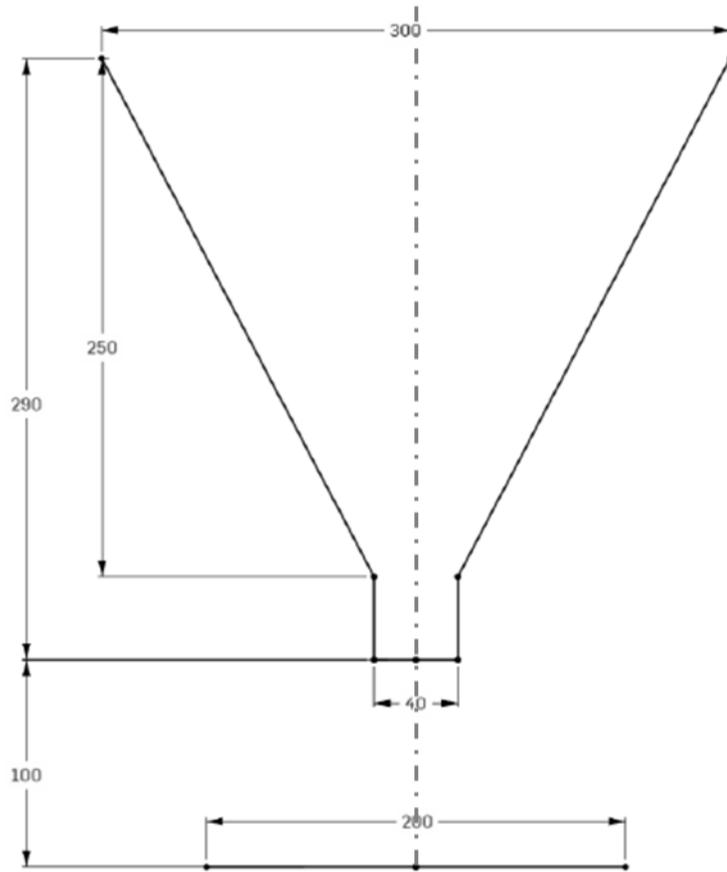
Annexe IV.9 : Densités en vrac avant et après compression pour les deux lots étudiés

Lot	Échantillon	Densité en vrac avant compression (g.mL <sup>-1</sup> )	Densité en vrac après compression (g.mL <sup>-1</sup> )
GrC	GrC-PB	3,20 ± 0,04	3,58 ± 0,03
	GrC-PB-L	3,39 ± 0,03	3,66 ± 0,05
	GrC-Frew250-BL	3,49 ± 0,03	3,76 ± 0,04
FaC	FaC-PB	3,59 ± 0,04	3,98 ± 0,06
	FaC-PB-L	3,86 ± 0,27	4,22 ± 0,34
	FaC-Frew250	3,08 ± 0,04	3,47 ± 0,05
	FaC-Frew250-B	3,41 ± 0,02	3,76 ± 0,03
	FaC-Frew250-BL	3,62 ± 0,04	3,83 ± 0,08

Annexe IV.10 : Valeurs moyennes sur 3 à 5 pastilles des densités apparentes et des porosités ouverte et fermée des pastilles frittées

Lot	Échantillon	Densité hydrostatique (%m,th)	Porosité ouverte (%)	Porosité fermée (%)
GrC	GrC-PB-L	91,2 ± 0,1	5,7 ± 0,6	3,1 ± 0,1
	GrC-Frew250-BL	88,1 ± 0,1	9,4 ± 0,7	2,5 ± 0,1
FaC	FaC-PB-L	95,3 ± 0,2	1,7 ± 0,3	3,0 ± 0,1
	FaC-Frew250-BL	95,0 ± 0,2	2,3 ± 0,2	2,7 ± 0,1

Annexe V.1 : Plans des géométries de l'entonnoir et du plateau pour la simulation de l'angle de repos (a) et de l'éprouvette pour la simulation du test de tassement (b) pour l'exemple



(a) Entonnoir et plateau



(b) Eprouvette



Dans l'objectif d'une optimisation des ressources en uranium via notamment le multi-recyclage du plutonium, le déploiement de réacteurs à neutrons rapides (RNR) est envisagé. Ils permettraient une économie des ressources ainsi qu'une réduction des déchets nucléaires. En France, le combustible envisagé pour les futurs RNR refroidis au sodium (RNR-Na) est un combustible MOX (Mélange d'Oxydes), composé d'oxyde d'uranium  $UO_2$  et d'oxyde de plutonium  $PuO_2$  jusqu'à 35% massique. Son procédé de fabrication devra permettre la mise en œuvre de plutonium multi-recyclé, ce qui entraînera une augmentation de l'activité radiologique des matières premières mises en œuvre. Ce procédé doit donc minimiser la génération de poussières et limiter les opérations de maintenance grâce à une bonne coulabilité des poudres, tout en permettant d'obtenir des pastilles répondant aux différentes spécifications. Pour ce faire, l'étape de préparation du milieu granulaire est une étape clé du procédé de fabrication, dans la mesure où elle conduit à la formation d'agglomérats dont les caractéristiques doivent améliorer la coulabilité de la poudre initiale.

Dans cette thèse, l'impact de la méthode de préparation du milieu granulaire sur les caractéristiques physiques, mécaniques et rhéologiques des poudres a été étudié afin d'établir un lien entre caractéristiques physiques et comportement rhéologique. De plus, une approche par modélisation par DEM a été initiée dans l'optique de simuler le comportement rhéologique des poudres lors des étapes de transfert à échelle industrielle. Ainsi, deux méthodes de préparation du milieu granulaire ont été étudiées afin de déterminer les conditions qui permettent d'améliorer la coulabilité d'une même poudre initiale broyée : une voie utilisant un mélangeur en V et une voie utilisant un moulin oscillant et rotatif (Frewitt). Préalablement à cette étude, la mise en place d'une méthodologie de caractérisation s'est avérée nécessaire afin de pouvoir effectuer un maximum de mesures avec un minimum de poudre. La méthode permettant une amélioration marquée de la coulabilité correspond à la voie Frewitt avec un tamis de 250  $\mu m$ , suivie d'une étape de brassage et de lubrification. L'étude de l'impact de cette méthode sur des poudres possédant des caractéristiques initiales différentes a montré une certaine robustesse de cette voie de préparation du milieu granulaire. Une étude par régression linéaire multiple a permis de mettre en évidence l'importance relative des caractéristiques physiques et mécaniques des poudres sur leurs propriétés rhéologiques. Pour finir, une méthode optimisée de calibration des paramètres de simulation par LHS-Krigeage-EGO a été mise en place.

*Mots-clés : rhéologie des poudres, caractéristiques physiques et mécaniques, métallurgie des poudres, oxyde d'uranium, rhéomètre à poudre FT4, simulation DEM.*