Simulation discrète de la compaction et du frittage des poudres d'UOX et de MOX

Gilmar Nogueira Junior

▶ **To cite this version:**

Gilmar Nogueira Junior. Simulation discrète de la compaction et du frittage des poudres d'UOX et de MOX. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2024. Français. NNT : 2024GRALI008 . tel-04564319

HAL Id: tel-04564319

https://theses.hal.science/tel-04564319

Submitted on 30 Apr 2024

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

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

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production
Spécialité : 2MGE - Matériaux, Mécanique, Génie civil, Electrochimie
Unité de recherche : Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés

Simulation discrète de la compaction et du frittage des poudres d'UOX et de MOX

Discrete simulation of the compaction and sintering of UOX and MOX powders

Présentée par :

Gilmar NOGUEIRA JUNIOR

Direction de thèse :

Christophe MARTIN DIRECTEUR DE RECHERCHE, Université Grenoble Alpes	Directeur de thèse

Rapporteurs :

Jean-Philippe CHATEAU-CORNU
PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université de Bourgogne
Olivier BONNEFOY
PROFESSEUR DES UNIVERSITES, École des Mines de Saint-Etienne

Thèse soutenue publiquement le **12 février 2024**, devant le jury composé de :

Christophe MARTIN DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS délégation Alpes	Directeur de thèse
Jean-Philippe CHATEAU-CORNU PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Université de Bourgogne	Rapporteur
Olivier BONNEFOY PROFESSEUR DES UNIVERSITES, École des Mines de Saint-Etienne	Rapporteur
Elsa MERLE PROFESSEURE DES UNIVERSITES, Grenoble INP	Présidente
Patrick PIZETTE MAITRE DE CONFERENCES, École nationale supérieure Mines-Télécom Lille Douai	Examinateur
Barthélémy HARTHONG MAITRE DE CONFERENCES, Université Grenoble Alpes	Examinateur

Invités :

Estelle MARC
INGENIEURE DOCTEURE, Orano Melox
Thomas GENEVES
INGENIEUR DOCTEUR, Orano Melox

Remerciements

Ces trois années de thèse sont passées à une vitesse incroyable, témoignant de l'immense plaisir que j'ai eu à réaliser ce projet. J'ai vécu des moments inoubliables que je garderai toujours en mémoire. Bien que le temps ait passé vite, j'ai parfois l'impression d'être encore doctorant, prêt à me réveiller, aller au laboratoire et retrouver mes amis. Prendre un thé avec Aatreya, Oguz et Brayan, discuter de dp3D avec Christophe, et travailler toute la journée. Mais ces jours sont passés. J'ai toujours su que ces moments finiraient par disparaître. Il y aurait une dernière fois pour tout : un dernier thé, une dernière soirée, une dernière partie d'échecs avec Christophe ou Brayan, un dernier moment partagé. Malgré cette conscience et ma volonté de profiter de chaque instant, il est difficile de voir ces moments s'éloigner. La vie continue cependant, et je commence maintenant une nouvelle étape, confiant de vivre d'autres beaux moments. L'important est de profiter de chaque jour.

Pour ces trois ans, je tiens à remercier tout particulièrement Christophe. Il a toujours été à l'écoute, faisant preuve d'une grande compréhension, surtout pendant la première année marquée par la solitude due au covid. J'étais dans une nouvelle ville, loin de l'amour de ma vie, Sara, depuis déjà deux ans. Christophe a été très flexible et compréhensif, et pour cela, je lui adresse un immense merci. Merci également de m'avoir guidé dans ce voyage que je n'aurais pas pu terminer seul. Merci pour les bons moments passés à La Grave. Sara et moi avons découvert notre amour pour les montagnes grâce à toi. J'ai commencé cette thèse avec un encadrant et je l'ai terminée avec un ami. Je n'aurais pas pu rêver d'un meilleur encadrant que Christophe, la personne idéale pour ce rôle.

Je suis également reconnaissant envers Orano pour avoir soutenu cette thèse. Les réunions ont toujours été très utiles et pertinentes pour le bon déroulement de mon travail. Véronique, Thierry, Estelle et Thomas, votre accueil chaleureux lors de mes visites au site de Melox m'a profondément marqué. Un grand merci à vous.

Ma gratitude s'étend aussi aux membres du CSI et du jury de thèse. Votre engagement bénévole en faveur de la science est très appréciable. Merci à Barthélémy Harthong, Muriel Braccini, Elsa Merle, Jean-Philippe Chateau-Cornu, Olivier Bonnefoy et Patrick Pizette.

Je remercie également tous les membres du laboratoire SIMaP pour leur accueil chaleureux et pour avoir maintenu un environnement dynamique et convivial. Un grand merci à tous les amis que j'ai eu la chance de rencontrer pendant ces trois années de thèse. En particulier, je tiens à remercier Brayan, Palloma, Aatreya, Oguz, Vitor, Haixing et sa famille. J'espère sincèrement vous revoir à de nombreuses reprises.

Ma famille à Rio, mes parents et mon frère, bien que nous soyons éloignés, sachez que vous êtes constamment dans mes pensées.

Et enfin, un merci tout spécial à Sara, ma femme, mon soutien indéfectible. Sans toi, je n'aurais pas pu achever cette thèse. Tu as été constamment à mes côtés, et je t'aime infiniment. Nous avons commencé cette thèse en tant que compagnons et l'avons terminée en tant que mari et femme. Tu es tout pour moi.

Merci à mon Dieu, qui me guide et m'aime inconditionnellement.

"L'Éternel est mon berger : je ne manque de rien.
Il me fait reposer dans de verts pâturages,
Il me dirige près des eaux paisibles.
Il restaure mon âme,
Il me conduit dans les sentiers de la vie juste,
A cause de son nom.
Quand je marche dans la vallée de l'ombre de la mort,
Je ne crains aucun mal, car tu es avec moi …"

Table des matières

Table des figures **5**

Liste des tableaux **15**

Introduction **17**

1 Le combustible MOX **21**

1.1 La fabrication du combustible MOX 21

1.1.1 Élaboration des poudres 23

1.1.2 Pastillage 30

1.1.3 Frittage 33

1.1.4 Rectification, gainage et assemblage 35

1.1.5 Défauts des pastilles MOX 37

1.1.6 Enjeux de la fabrication du combustible MOX 39

1.2 Revue des modèles de compaction et de frittage 41

1.2.1 Modèles empiriques 41

1.2.2 Modèles semi-empiriques 44

1.2.3 Modèles continus 48

1.3 Conclusion 55

2 La méthode des éléments discrets **57**

2.1 Description de la DEM 58

2.1.1 Généralités 58

2.1.2 Smooth et non-smooth 60

2.1.3 Éléments discrets 60
2.1.4 Conditions aux limites 61
2.1.5 Résolution numérique 63
2.1.6 Pas de temps 66
2.1.7 Nombre d'inertie 67
2.1.8 Contrainte macroscopique 68
2.1.9 Cinématique du contact 68
2.2 Lois de contact 71
2.2.1 Comportement élastique 71
2.2.2 Comportement plastique 73
2.2.3 Plasticité à haute densité 75
2.2.4 Force tangentielle 82
2.3 Code dp3D 84
2.4 Application de la DEM aux poudres nucléaires 86
2.5 Conclusion 89

3 Compaction des agglomérats d'UO2 91
3.1 La poudre UO2 étudiée par P. Pizette 91
3.1.1 Dispositif de compression et mesures associées 92
3.1.2 Cinématique des essais de P. Pizette 93
3.2 Modèle numérique des agglomérats d'UO2 99
3.2.1 L'échantillon numérique 99
3.2.2 Simulation des étapes de charge et décharge 103
3.3 Ajustement des Paramètres Matériau 106
3.3.1 Ajustement par Grille 107
3.3.2 Ajustement par Méthodes de Descente de Gradient 107
3.3.3 Ajustement par Algorithmes Évolutionnaires 108
3.3.4 Ajustement par Apprentissage Machine 110
3.4 Conclusion 137

4 Compaction des agglomérats de mélange primaire **139**

4.1 Les poudres TUCHAMXX du CDA 140

4.1.1 Nomenclature TUCHAMXX 141

4.1.2 Préparation de la chamotte UO2 141

4.1.3 Préparation du mélange 142

4.1.4 Compaction 143

4.2 Modèle numérique des agglomérats de MP 147

4.2.1 L'échantillon numérique 149

4.2.2 Simulation des étapes de charge, décharge et éjection 151

4.2.3 Simulation de la charge 152

4.2.4 Rebonds élastiques après éjection des poudres de MP 157

4.3 Compaction de la poudre MOX 163

4.4 Conclusion 168

5 Frittage des pastilles nucléaires **171**

5.1 Lois de frittage 171

5.1.1 Modèle affine 172

5.1.2 Modèle discret 173

5.1.3 Densification des agglomérats 176

5.1.4 Paramètres matériau 178

5.2 Simulation du Frittage de la Pastille TUCHAM0 180

5.2.1 Simulation du frittage de la pastille TUCHAM0 par le modèle discret 181

5.2.2 Simulation du frittage de la pastille TUCHAM0 par le modèle affine 184

5.3 Simulation du Frittage de la Pastille MOX 188

5.4 Conclusion 191

6 Conclusion générale **193**

A Annexe - Fonction objectif **201**

A.1 R-carré 201

A.2 RMSE (Erreur Quadratique Moyenne) 202

B Annexe - Pair plots et Box plots **204**

B.1 Exemple fictif 205

B.2 Box Plots 206

C Annexe - Post-traitement de la simulation du frittage par le modèle discret **209**

D Annexe - Outil DEM **211**

Bibliographie **213**

Table des figures

1.1 Cycle du combustible MOX ©Orano 21

1.2 Étapes de fabrication du combustible MOX 23

1.3 Images MEB des agglomérats de poudres UO_2 produites par voie sèche et voie humide. a) UO_2 voie sèche (AREVA ANF). b) UO_2 voie humide TU2 [14]. L'échelle est la même pour les deux micrographies. 24

1.4 Les échelles des cristallites, des agrégats et des agglomérats. Figure adaptée de [15]. 25

1.5 Image MEB de la poudre PuO_2 [14]. L'observation MEB montre une taille de l'ordre de 0,5 à 10 µm. 27

1.6 Diagramme schématique du processus MIMAS [22]. 29

1.7 Géométrie des poinçons 30

1.8 Ejection de pastilles compactées dans une presse CDA 32

1.9 Représentations schématiques d'une pastille avant et après frittage. a) Carte de densité de la pastille avant frittage. b) Géométrie de la pastille après frittage. 34

1.10 Évolution de l'effet diabolo sur les pastilles au cours de l'irradiation dans les réacteurs [14]. 34

1.11 Dimensions approximatives d'une pastille UOX ou MOX conçue pour un réacteur à eau pressurisée (REP) [24, 22]. 35

1.12 Crayon et assemblage combustible UOX [14] 36

1.13 Les principaux défauts répertoriés et illustrés par G. Kerboul [25]. . . . 37

1.14 Défauts générés observés lors du programme d'essais d'Orano 38

1.15 microstructure du MOX d'une pastille frittée [14] 40
1.16 Représentation de la courbe de compaction sur une poudre d'UO_2 par des lois empiriques [23] 42
1.17 Représentation du modèle des tranches de Janssen. 44
1.18 Utilisation du modèle des tranches de Janssen (pas de gradient de contrainte radiale) et de Thompson (avec la possibilité d'un gradient de contrainte radiale) par Fourcade pour un comprimé d'UO_2 pressé en simple effet à 600 MPa [23]. 47
1.19 Schéma de fonctionnement du modèle de Cam-Clay dans le plan P-Q (Pression-Déviateur) [23]. 49
1.20 Schéma de fonctionnement du Cap Modèle [23]. 50
1.21 MOX : a) Densité relative en fin de compaction à double et à simple effet b) Cartes d'endommagement, obtenues en fin d'éjection [45]. 51
1.22 Comparaison des densités locales estimées par FEM et EDX [40]. 52
1.23 Représentation des chemins de chargement de différents essais dans le plan (P,Q) pour identifier les modèles élasto-plastiques de Cap-Model et de Cam-Clay [22] dans le plan $P-Q$. 54

2.1 Quelques exemples de formes d'éléments discrets en 2D. 61
2.2 Parois rigides et conditions périodiques [22]. 62
2.3 Schéma des étapes réalisées à chaque pas de temps pour une simulation DEM. 63
2.4 a) Schéma de particules (noires) dont le rayon est augmenté pour déterminer une liste de contacts potentiels (liste de Verlet). b) Méthode Linked cell pour ne visiter que la cellule de la particule à considérer (particule rouge) et les cellules adjacentes (cellules bleues). 64
2.5 a) Exemple d'un milieu discret simulé par la DEM. b) Indentation entre deux particules avec les composantes normale (N) et tangente (T) de la force. 66

2.6 Schéma représentant deux particules i et j en contact. Les vecteurs $\vec{v}$ et $\vec{\omega}$ représentent respectivement la vitesse de translation et la vitesse angulaire des particules. 69

2.7 Schéma représentant trois particules i, j et k en contact. N étant la force normale et T la force tangentielle. 71

2.8 Comparaison entre le modèle de Storåkers, le modèle de Harthong (noté "Eq. (10)" dans la figure) et la MDEM pour la compaction hydrostatique de 15 particules [79]. 75

2.9 Un agglomérat est modélisé comme une seule sphère poreuse DEM. . . 77

2.10 La force normale de contact N entre deux agglomérats en fonction de l'indentation δ. Les différentes phases d'un contact sont la plasticité (1-2, 2-5), l'élasticité réversible suite à une décharge (2-3, 3-4, 5-6-7), la rupture (7-8-9) ou la recréation d'un contact rompu (9-10). La rupture intervient à une force critique en traction N_{max}. La raideur du contact en décharge (la pente de la courbe bleue) augmente au fur et à mesure que l'indentation plastique augmente. Les forces sont positives lorsqu'elles sont répulsives. 78

2.11 Illustration 2D d'un empilement de particules montrant les cellules de Voronoï et la densité locale. a) Avant compaction isostatique. b) Après compaction isostatique. 80

2.12 Décomposition de la force tangentielle en ses composantes "collante" ($\vec{T_c}$) et "glissante" ($\vec{T_g}$). La force tangentielle, représentée en rouge, est le minimum entre $\vec{T_c}$ et $\vec{T_g}$ [22]. 83

2.13 Fichier texte typique input_dp3D utilisé pour lancer une simulation. . 85

2.14 Les différents modèles DEM de P. Pizette [22]. 87

2.15 Schéma sur l'apport de la DEM sur la FEM [22]. 88

3.1 Dispositif de compaction en matrice instrumenté utilisé au CEA LCU [22]. 92

3.2 Cinématique de la presse utilisée par P. Pizette. 93

3.3 Densité relative en fonction de la contrainte moyenne à différentes compositions (UO_2+U_3O_8) et voies de synthèse (VH et VS) [22]. La variable × est utilisée pour préserver la confidentialité des propriétés à la compaction de la poudre. 94

3.4 Évolution des indices a) de friction et de b) fluidité au cours de la compaction [22] à différentes compositions (UO_2+U_3O_8) et voies de synthèse (VH et VS). 95

3.5 Répartition de la densité relative obtenue par la FEM a) données initiales [22] et b) données retraitées sur un maillage plus grossier et homogène. La valeur de chaque pixel représente la densité moyenne de a). 96

3.6 Contraintes axiales moyennes et radiales en fonction de la déformation axiale pendant la décharge [22] pour les poudres VH et VS. 97

3.7 Représentation schématique de la procédure d'obtention d'un échantillon numérique adapté à partir de l'échantillon mère. 102

3.8 Illustration du processus de transformation d'une carte de densité 3D en une carte de densité 2D. L'échantillon numérique est d'abord divisé en plusieurs couches et tores. Ensuite, la méthode de Monte Carlo est utilisée pour déterminer les cellules composant chaque tore et leurs fractions volumiques pour finalement calculer la densité moyenne de chaque tore, qui représente un pixel dans la carte de densité 2D. 105

3.9 Représentation des gènes et chromosomes dans une population. 109

3.10 Schéma représentant les différentes étapes de l'ajustement par apprentissage machine pour les agglomérats de poudres d'UO_2. Les étapes vont de la séparation des phases de charge et de décharge, à la prédiction d'une sortie unique, en passant par l'ajustement des paramètres et la simulation DEM complète, jusqu'à l'harmonisation des phases de charge et de décharge. Cette approche structurée permet une meilleure compréhension et une mise en œuvre efficace de l'ajustement. 112

3.11 Matrice de corrélation entre les six paramètres matériau. 118
3.12 Pair plot illustrant les relations bivariées entre les six paramètres matériau. 120
3.13 Graphiques de dispersion illustrant le RMSE normalisé global en fonction des six paramètres matériau. 122
3.14 Graphiques de dispersion illustrant le RMSE normalisé du gradient de densité en fonction des quatre paramètres matériau. Les paramètres μ_{aggl} et m ne sont pas représentés car ils affichent un comportement similaire à celui du paramètre σ^*. 123
3.15 Visualisations des résultats du modèle pour la fonction objectif de σ_{app}. 129
3.16 Visualisations des résultats du modèle pour la fonction objectif du gradient de densité. 130
3.17 Comportement plastique d'un agglomérat d'UO_2 en compression uniaxiale jusqu'à une déformation de 10%. 132
3.18 Comparaison entre la simulation DEM et les données expérimentales de P. Pizette [22] pendant la phase de charge, montrant les contraintes en fonction de la densité. 134
3.19 Comparaison du gradient de densité obtenu en fin de compaction : à gauche, simulation FEM de P. Pizette [22] et à droite, la simulation DEM. 134
3.20 Comparaison entre la simulation DEM et les données expérimentales de P. Pizette [22] pendant la décharge, montrant les contraintes en fonction de la densité. 135

4.1 a) Pastilles à la sortie du four de frittage b) Chamotte obtenue après broyage. 142
4.2 Poudres TUCHAMXX avant pressage à différents taux de chamotte. . . 142
4.3 Variation de la densité apparente en fonction du taux massique de chamotte. Le carré vert représente la densité apparente de la poudre d'UO_2 VH1 étudié par P. Pizette (cf. tableau 1.1). 143

4.4 Corrélation entre la densité après éjection et la pression maximale de compaction pour différentes compositions de poudres. La densité après éjection a été calculée en mesurant la masse, les diamètres et la hauteur des pastilles éjectées. La densité après éjection de la pastille d'UO_2 étudiée par P. Pizette est aussi affichée 145

4.5 Représentation schématique des courbes de compaction. Les points noirs correspondent aux données expérimentales obtenues avant la compaction et après l'éjection, tandis que les lignes pointillées représentent les données encore manquantes. Grâce à des hypothèses simplificatrices, un troisième point (en vert) peut être extrapolé. 147

4.6 Représentation du poinçon à l'aide d'objets dans le code dp3D. Une sphère, un cône et un plan sont suffisants pour représenter le poinçon avec dishing et chanfrein. 150

4.7 Corrélation linéaire entre la densité relative avant compaction $\tilde{\rho}_{init}$ et le taux de chamotte. Les points proviennent de 48 mesures pour chaque taux de chamotte. Le triangle noir représente la densité relative initiale de la poudre UO_2 VH1 étudiée par P. Pizette. 151

4.8 Représentation des étapes de charge, décharge et éjection. L'étape d'éjection se décompose en trois phases. 152

4.9 Évolution des contraintes axiale et radiale pour différents taux de chamotte. Les points en fin de charge correspondent à la contrainte axiale maximale qui a servi à l'ajustement de σ^*. Les points à contrainte zéro correspondent à la densité relative mesurée expérimentalement après éjection. 154

4.10 Corrélation entre la valeur ajustée de σ^* et le taux de chamotte. La valeur de σ^* pour les agglomérats d'UO_2 VH1 (triangle noir) ainsi que les valeurs associées de $\tilde{\rho}_{aggl}$ ont été portées sur la figure pour comparaison. 155

4.11 Évolution de la contrainte axiale en fonction de $\tilde{\rho} - \tilde{\rho}_{init}$ pour différents taux de chamotte. 156

4.12 Champ de déplacement en radial pour un taux de chamotte de 30% durant les trois étapes d'éjection : glissement de la matrice (1.), décharge totale du poinçon supérieur (2.) et décharge totale du poinçon inférieur (3.). L'image montre la moitié d'une pastille, l'autre moitié étant symétrique. 158

4.13 Géométrie de la pastille après éjection pour différents taux de chamotte. Pour chaque taux, deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent la mesure expérimentale en trois points : en haut, au milieu et en bas. 158

4.14 Comparaison des rebonds axiaux et radiaux après éjection pour différents taux de chamotte. 161

4.15 Visualisation 3D de la pastille MOX après éjection. Les sphères vertes représentent les agglomérats de MP tandis que les sphères orange représentent les agglomérats d'UO_2. 163

4.16 Comparaison des courbes contrainte-densité lors de la charge pour les poudres d'UO_2, MP (TUCHAM50) et MOX (composé à 70% d'UO_2). . . 164

4.17 Carte de densité après charge des poudres d'UO_2, MOX (à 70% d'UO_2) et MP (TUCHAM50). Le trait noir sur la barre de couleur correspond à la valeur moyenne de la densité de la pastille. 165

4.18 Carte de densité à l'issue de la décharge des poudres. Le trait noir sur la barre de couleur correspond à la valeur moyenne de la densité de la pastille. 166

4.19 Géométrie des pastilles d'UO_2, MOX et TUCHAM50 après éjection. Pour chaque poudre, deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). 167

5.1 Schéma représentant deux particules i et j en contact. $N_{(ij)}$ est la force normale, $T_{(ij)}$ la force tangentielle, δ_n l'indentation normale du contact, et ψ l'angle dièdre au contact. 174

5.2 Schéma d'une microstructure avant et après la densification des agglomérats. 177

5.3 Illustration de la sphère de référence (en marron) à l'intérieur de l'échantillon avant et après frittage affine. Le rayon de la sphère de référence est défini par la distance entre la particule en blanc et le centre de la sphère de référence. La sphère de référence contient environ 16 000 particules. 181

5.4 Géométrie de la pastille après frittage selon le modèle discret. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales à trois hauteurs différentes : en haut, au milieu et en bas. 182

5.5 Géométrie de la pastille après frittage affine pour $\alpha = 0,1$ et $\alpha = 0,2$. Deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales à trois hauteurs différentes : en haut, au milieu et en bas. 184

5.6 Géométrie de la pastille après frittage affine pour $\alpha = 0,2$ et $\tilde{\rho}_{finale} = 1,08$. Deux vues sont représentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). 185

5.7 Visualisation tridimensionnelle de la pastille TUCHAM0 avant et après le frittage affine. Les sphères orange représentent les agglomérats d'UO_2. 186

5.8 Géométrie des pastilles de UO_2 VH1, MOX et TUCHAM50 après frittage selon le modèle discret. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b). 188

5.9 Géométrie radiale de la pastille après frittage selon le modèle discret. Deux configurations sont comparées : la pastille sans suppression de particules, et la pastille avec suppression des particules ayant moins de 3 contacts. 189

5.10 Géométrie des pastilles de UO_2, MOX et TUCHAM50 après frittage selon le modèle affine. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b). 190

6.1 Interface graphique de l'outil DEM, intégrant la compaction et le frittage des poudres MOX/UOX. 197

B.1 Exemple fictif illustrant une corrélation forte entre quatre paramètres A, B, C et D [145]. 205

B.2 Box Plots des 6 paramètres matériaux, illustrant la distribution, la médiane, les quartiles et la variabilité des données. 207

C.1 Géométrie radiale de la pastille TUCHAM0 après frittage selon le modèle discret. Quatre configurations sont comparées : la pastille sans suppression de particules, et les pastilles avec suppression des particules ayant moins de 2, 3 et 4 contacts, respectivement. Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales. 209

Liste des tableaux

1.1 Caractéristiques des poudres de UO_2 VS et VH 26

3.1 Valeurs des paramètres matériau ajustés pour les agglomérats d'UO_2. . 131

4.1 Valeurs mesurées des propriétés mécaniques des pastilles frittées de PuO_2 et UO_2 [132]. 140

4.2 Conditions de pressage des pastilles élaborées au CDA. La poudre TU-CHAM0 a été caractérisée dans le cadre d'un autre programme d'essai au CDA. 144

4.3 Valeurs moyennes de masse, densité après éjection ρ et géométrie des pastilles compactées (métrologie laser) pour une compaction à P_{max} = 4,8×MPa. Ces valeurs sont obtenues à partir de 12 pastilles pressées pour chaque type de poudre. 144

4.4 Propriétés des échantillons numériques pour différents taux de chamotte : densité relative initiale $\tilde{\rho}_{init}$, densité relative initiale des éléments discrets $\tilde{\rho}_{init,DEM}$ et densité relative des agglomérats $\tilde{\rho}_{aggl}$. Les trois densités relatives sont liées par la relation : $\tilde{\rho}_{init} = \tilde{\rho}_{init,DEM} \times \tilde{\rho}_{aggl}$. Ces valeurs sont obtenues à partir de 12 pastilles pressées pour chaque type de poudre. 150

4.5 Calcul des rebonds élastiques, hauteurs minimales, et densités relatives (en fin de la charge), pour différents taux de chamotte et à une pression maximale P_{max} =4,8×MPa. 153

4.6 Valeurs ajustées de σ^* pour différents taux de chamotte. La valeur de σ^* de la poudre d'UO_2 VH1 est présentée à titre de comparaison. 155
4.7 Rebonds et hauteur des pastilles après éjection pour différents taux de chamotte. 161

5.1 Valeurs des paramètres matériau pour le frittage. 179
5.2 Conditions de pressage de la poudre TUCHAM0. 180
5.3 Densité relative $\tilde{\rho}$ et géométries avant et après frittage de la TUCHAM0. Mesures expérimentales. 180
5.4 Comparaison des dimensions de la pastille TUCHAM0 après frittage obtenues expérimentalement et numériquement. 183
5.5 Dimensions de la pastille TUCHAM0 après frittage pour les cas expérimental et simulé. 186

Introduction

L'énergie nucléaire joue un rôle central en France, fournissant environ 70% de l'électricité du pays. Cette situation est due à une politique adoptée après le premier choc pétrolier en 1974, lorsque la France a choisi de développer fortement son énergie nucléaire pour renforcer son indépendance énergétique [1]. Aujourd'hui, grâce à cette politique, la France possède un total de 56 réacteurs nucléaires et revendique un haut niveau d'indépendance énergétique et un niveau extrêmement faible d'émissions de dioxyde de carbone par habitant provenant de la production d'électricité [1]. Bien que les coûts de construction des centrales nucléaires soient plus élevés que ceux des centrales à gaz ou à pétrole, le coût d'exploitation de ces installations est inférieur à presque tous les concurrents à base de combustibles fossiles. Ainsi, sur la durée de vie d'une centrale, l'énergie nucléaire se révèle compétitive par rapport aux autres sources d'énergie à base de combustibles fossiles [2].

La manière dont l'énergie nucléaire est produite est un processus complexe qui commence à l'échelle atomique. Dans le processus de fission nucléaire, les atomes fissiles sont divisés pour libérer de l'énergie. En France, seuls l'uranium 235 et les isotopes plutonium-239 et plutonium-241 sont utilisés comme matière fissile pour la production des combustibles nucléaires.

L'uranium naturel, extrait des minerais, est constitué de trois isotopes : l'uranium 238 qui est le plus lourd et le plus abondant, l'uranium 235 qui est le seul isotope fissile de l'uranium, et l'uranium 234. La teneur des minerais étant généralement faible, il est nécessaire de concentrer l'uranium. Pour cela, les étapes successives de traitement (obtention du "Yellow Cake"), conversion puis enrichissement permettent

de concentrer l'uranium 235 à une teneur de 3 à 5%. Cet uranium enrichi est la base des combustibles dits "UO_2 classiques".

Le plutonium ne se trouve pas dans la nature : il provient de la transmutation de l'uranium 238 dans un réacteur nucléaire, dont il constitue un sous-produit. A la sortie du réacteur, un combustible UO_2 classique contient encore 96% de matière recyclable (95% d'uranium et 1% de plutonium) [3]. Pour préserver les réserves d'uranium, il est envisageable de recycler ces matières fissiles. Ce recyclage peut se faire de deux manières : d'une part, le plutonium issu du retraitement peut être utilisé pour fabriquer des assemblages combustibles MOX (Mixed OXide) ; d'autre part, l'uranium récupéré lors du retraitement peut être enrichi à nouveau (URE) pour produire des combustibles URT. Notamment, un seul cycle de recyclage sous forme de combustible MOX permet d'augmenter l'énergie extraite de l'uranium initial d'environ 30%[4].

Le combustible MOX est un mélange d'oxydes de plutonium et d'uranium appauvri. Dans sa forme la plus courante, le MOX est constitué d'environ 8% de plutonium. La société Orano, sur le site de l'usine de MELOX, est actuellement la seule à réaliser la fabrication des assemblages de combustibles MOX [5].

Orano est une société multinationale française spécialisée dans le cycle du combustible nucléaire. Majoritairement détenue par l'État français, Orano s'est positionné en septembre 2021 comme le deuxième producteur mondial d'uranium, représentant 9% de la production mondiale [6]. Avec 28 ans d'expérience dans l'industrie, le site de recyclage Orano Melox est reconnu mondialement pour son expertise en matière de combustible MOX et pour sa sécurité optimale. En France, environ 10% de l'électricité nucléaire est aujourd'hui produite grâce au combustible MOX [7].

La fabrication des pastilles du combustible MOX s'appuie sur les techniques de la métallurgie des poudres. Le procédé est constitué de six étapes principales : l'élaboration des mélanges de poudres, le pastillage, le frittage, la rectification, le gainage et le montage en assemblage.

Afin de répondre aux exigences des clients, le processus de fabrication doit pouvoir être adapté. Par exemple, la composition des pastilles ou leurs dimensions peuvent

être modifiées. En raison de la complexité du processus, ces modifications peuvent entraîner des défauts sur le produit final. Les comprimés ayant des critères d'acceptation stricts et rigoureux, la présence de défauts a un impact direct sur la quantité de matériaux mis au rebut.

L'étude proposée dans le cadre de la thèse vise donc le développement d'un outil numérique simple et robuste capable de simuler les étapes de compaction et de frittage des mélanges de poudres : les deux étapes qui apportent le plus de modifications dans le processus et qui sont à l'origine d'un grand nombre de défauts. L'outil devra prendre explicitement en compte le caractère granulaire du matériau (poudre), les différents composants du mélange et se rapprocher au mieux des conditions industrielles du processus.

Le développement de cet outil à visée industrielle s'appuiera sur le code dédié à la recherche dp3D et sur les données expérimentales collectées par Orano.

Le chapitre 1 de ce manuscrit se concentre sur le combustible MOX. Il aborde le contexte général de la thèse, les différentes étapes de la fabrication du MOX et les modèles de compaction spécifiques aux poudres nucléaires.

Le chapitre 2 décrit plus en détail la méthode des éléments discrets. Il explore son application aux poudres nucléaires et examine les lois de contact, en particulier dans le cadre de la compaction des poudres.

Les chapitres 3 et 4 traitent de la modélisation de la compaction en matrice des poudres d'UO_2 et MOX. Ils abordent également la cinématique de la compaction et de l'éjection, ainsi que la géométrie industrielle des poinçons.

Enfin, le chapitre 5 sert de preuve de concept pour le frittage des pastilles préalablement compactées. Il étudie l'influence de la compaction sur la géométrie finale des pastilles frittées.

Chapitre 1

Le combustible MOX

1.1 La fabrication du combustible MOX

Le combustible MOX (ou Mixed OXide), à base d'oxyde d'uranium et de plutonium, est actuellement utilisé en France par EDF dans 22 réacteurs nucléaires à eau pressurisée (REP) d'une puissance de 900 MW, ainsi qu'à l'étranger. Le cœur de ces réacteurs est constitué d'environ 30% d'assemblages de MOX et de 70% d'assemblages d'UO_2 classiques [8]. Le recyclage des combustibles nucléaires permet de valoriser le plutonium issu du retraitement de combustibles usés d'UO_2 classiques et d'augmenter l'énergie dérivée de l'uranium d'origine. En France, le recyclage du combustible est pleinement intégré dans le cycle de fabrication industriel (figure 1.1).

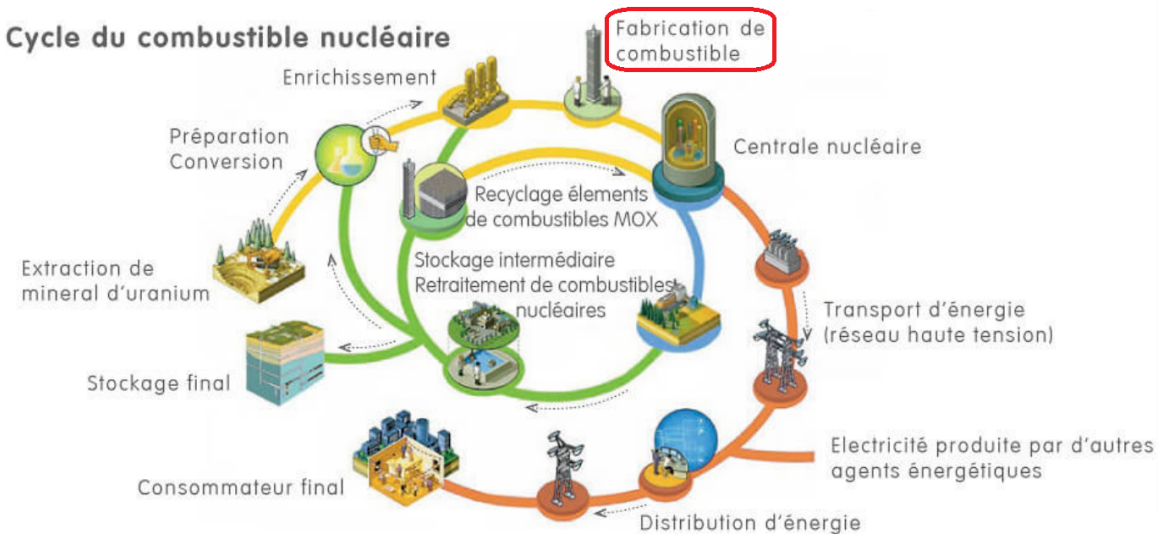

Figure 1.1 – Cycle du combustible MOX ©Orano

Les étapes qui précèdent la fabrication du combustible comprennent l'extraction du minerai d'uranium, le traitement chimique, l'enrichissement et le retraitement des combustibles usés. L'uranium présent dans ce minerai est composé de trois isotopes : l'uranium-238 (représentant environ 99,3% en masse), l'uranium-235 (environ 0,72%, matière fissile) et l'uranium-234 (environ 0,005%). Pour la production du combustible MOX, l'uranium appauvri est utilisé. Ce dernier est un sous-produit du processus d'enrichissement de l'uranium et se caractérise par une teneur réduite en isotope fissile, ne contenant que 0,24% d'uranium-235.

Concernant l'oxyde de plutonium, il est obtenu à l'issue du retraitement des combustibles d'UO_2 classiques irradiés, puisqu'il ne se trouve pas dans la nature. Le combustible irradié après 4 à 5 années dans les réacteurs nucléaires est déchargé du cœur et est ensuite entreposé dans une piscine de refroidissement pendant un à trois ans. Ensuite, il est transporté vers l'usine de traitement Orano la Hague. Une fois en usine, le combustible reste en piscine de refroidissement pendant environ sept ans, avant de subir les diverses étapes de traitement et de séparation des composants. Ce processus permet la récupération des matières valorisables, qui représentent environ 96% du combustible usé. Les 4% restants sont des produits de fission non recyclables et sont temporairement entreposés sur le site de La Hague, dans l'attente de leur stockage final en couches géologiques profondes, prévu vers 2035 [9] (programme CIGEO).

Le combustible MOX présente des caractéristiques et performances énergétiques similaires au combustible UO_2 traditionnel et les deux combustibles peuvent être exploités simultanément dans le cœur d'un même réacteur. En France, l'usine de recyclage Orano Melox, située dans le Gard, est la seule à fabriquer des assemblages de combustibles MOX. Un assemblage MOX produit par Orano (contenant environ 500 kg de matières fissiles) permet d'alimenter en électricité une ville de 100 000 habitants pendant un an [5, 10].

La fabrication du MOX reprend dans les grandes lignes celle du combustible UO_2 (préparation granulaire, pastillage, frittage, gainage et assemblage). Néanmoins, elle s'en distingue radicalement en raison de la radioactivité et la radiotoxicité du pluto-

nium. Utilisé sous forme de PuO_2 pour la fabrication du MOX, il émet principalement des particules alpha mais aussi des neutrons, des rayons X, des rayons gamma et des particules bêta [11]. En raison de ces émissions alpha et bêta ainsi que de la toxicité du plutonium, celui-ci doit être manipulé dans des boîtes à gants étanches, équipées de gants adaptés [12].

La fabrication du combustible MOX s'appuie sur les techniques de la métallurgie des poudres, et est constitué de six grandes étapes : l'élaboration des poudres ; le pastillage ; le frittage ; la rectification ; le gainage et le montage en assemblage (figure 1.2).

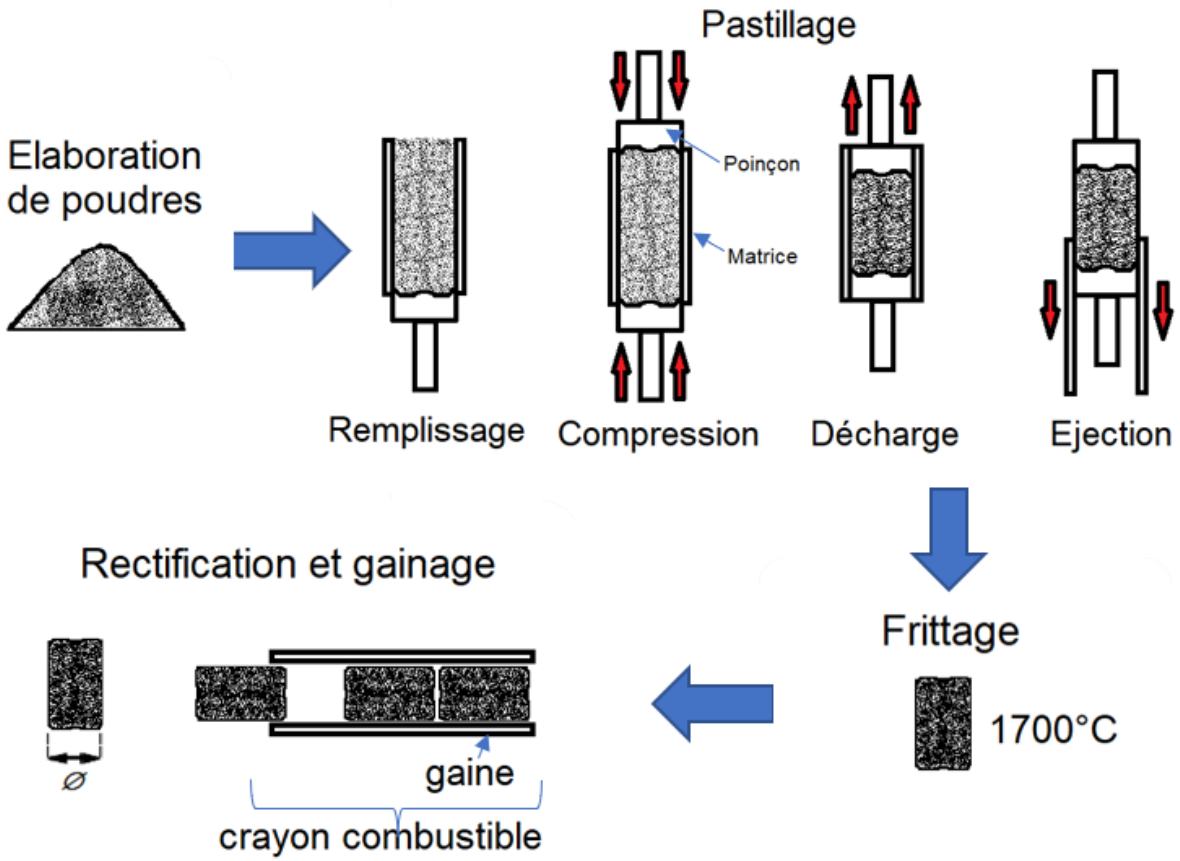

FIGURE 1.2 – Étapes de fabrication du combustible MOX

1.1.1 Élaboration des poudres

Les mélanges de poudres MOX sont constitués de cinq composants : l'UO_2 appauvri, le PuO_2, la chamotte (rebuts de fabrication) et deux additifs : le lubrifiant stéarate de zinc (StZn) et le porogène AZB (azodicarbonamide).

UO_2

La poudre d'UO_2 est introduite dans le procédé MIMAS (voir 1.1.1) soit à l'étape de cobroyage, soit comme poudre de dilution. Il existe deux voies de production de la poudre UO_2 : la voie humide (VH) et la voie sèche (VS) (figure 1.3).

— Dans la voie humide, l'hexafluorure d'uranium (UF_6) est exposé à de la vapeur d'eau, ce qui conduit à la formation d'une suspension particulaire de UO_2F_2. Ensuite, soit de l'ammoniaque (NH_3), soit du carbonate d'ammonium ($(NH_3)_2CO_3$) est ajouté à cette suspension, et le UO_2F_2 réagit pour produire soit du diuranate d'ammonium (ADU), soit du carbonate d'ammonium et d'uranyle (AUC). Dans les deux cas, la suspension est ensuite filtrée, séchée et chauffée dans une atmosphère réductrice pour obtenir de l'UO_2 pur [13].

— En voie sèche, l'UF_6 est d'abord vaporisé, puis introduit dans un conteneur de réaction à deux étapes, tel qu'un four rotatif. Il est d'abord mélangé à de la vapeur d'eau pour produire du fluorure d'uranyle solide (UO_2F_2). Cette poudre est transportée à travers le four rotatif pour réagir avec du dihydrogène (H_2). Ce processus élimine le fluorure et réduit chimiquement l'uranium en UO_2 [13].

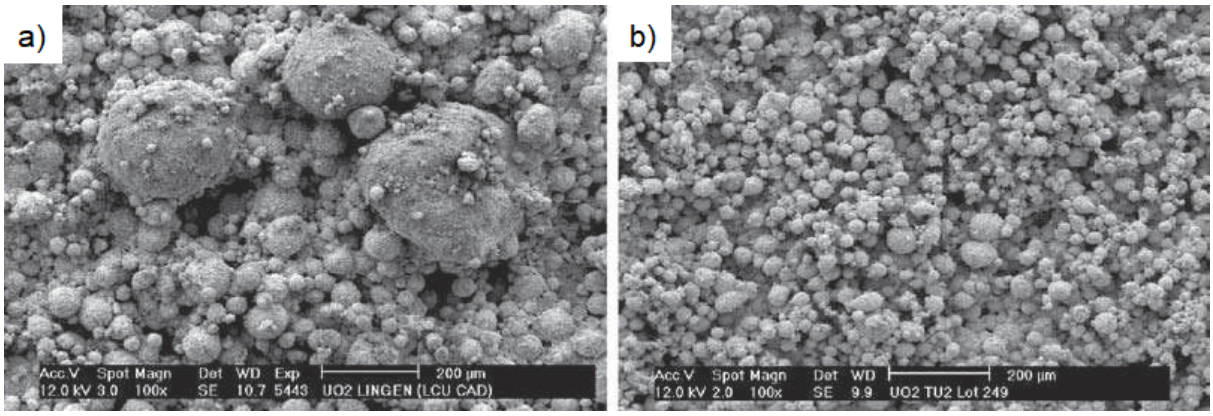

FIGURE 1.3 – Images MEB des agglomérats de poudres UO_2 produites par voie sèche et voie humide. a) UO_2 voie sèche (AREVA ANF). b) UO_2 voie humide TU2 [14]. L'échelle est la même pour les deux micrographies.

Les poudres d'UO_2 VH donnent au mélange MOX une bonne coulabilité et assurent une solidité des ébauches en cru suite au pastillage. Cependant, le procédé VS a pour avantage de générer moins d'effluents à retraiter que le procédé VH. Initiale-

ment, l'usine MELOX exploitait l'UO_2 produit par la voie humide (VH) provenant de l'usine TU2. Cependant, une transition vers l'utilisation de la poudre d'UO_2 produite par la voie sèche (VS) a été opérée en 2012. Cette pratique a perduré jusqu'à mi-2022, date à laquelle l'usine a réintégré l'utilisation de la poudre d'UO_2 de type VH.

Les poudres UO_2 sont décrites dans la littérature par trois échelles croissantes (figure 1.4) : cristallite, agrégat et agglomérat.

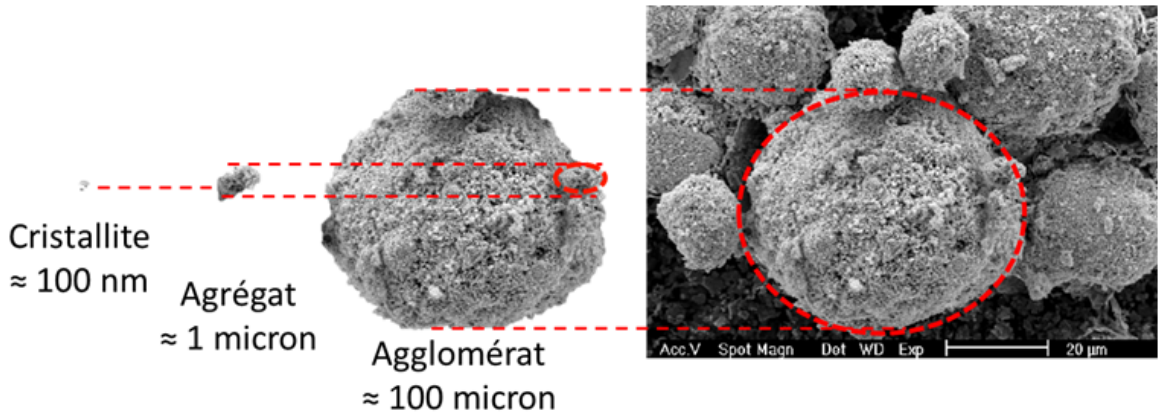

FIGURE 1.4 – Les échelles des cristallites, des agrégats et des agglomérats. Figure adaptée de [15].

— À l'échelle la plus petite, on trouve les cristallites, qui sont des monocristaux d'UO_2. Leurs dimensions se situent généralement autour de quelques centaines de nanomètres. On suppose que leur densité correspond à la densité théorique de l'UO_2 ($10,96 g.cm^{-3}$).

— À un niveau supérieur, on trouve les agrégats, qui sont composés de plusieurs cristallites fortement liées entre elles par des forces de type van der Waals et des liaisons chimiques [16, 17]. Leurs dimensions peuvent aller de un à plusieurs dizaines de microns.

— Enfin, à l'échelle la plus grande, se situent les agglomérats, qui sont des ensembles de cristallites et/ou d'agrégats maintenus ensemble par des forces de van der Waals. Ils peuvent mesurer de quelques dizaines à quelques centaines de micromètres.

Bien que ces échelles soient communes aux poudres obtenues par les procédés VS et VH, des observations au MEB révèlent que les cristallites des poudres VS sont deux

fois plus grandes que celles des poudres VH [18].

Les propriétés des poudres d'UO_2 VH et VS, synthétisées dans le tableau 1.1, peuvent être caractérisées à la fois à l'échelle macroscopique, en examinant le comportement du lit de poudre, et à l'échelle microscopique, en analysant directement les particules.

	VS1 [19]	VS2 [18]	VH1 [18]	VH2 [20]
Densité apparente g.cm^{-3}	1,66	1,2	2,23	1,85
Densité tassée g.cm^{-3}	2,25	1,8	2,65	2,28
Taille cristallites nm	200-300	300	150-300	100
Taille agrégats µm		1	0,8	
Taille agglomérats µm	20-80	10-200	10-40	

Table 1.1 – Caractéristiques des poudres de UO_2 VS et VH

Cela permet de décrire plusieurs propriétés qui sont essentielles pour comprendre le comportement de la poudre lors des différentes étapes du processus. Par exemple, les densités apparentes non tassées et après tassement donnent des informations sur l'empilement des particules de poudre et sur leur capacité à se réorganiser. L'aptitude à l'écoulement, mesurée en évaluant le temps nécessaire pour une certaine quantité de poudre à s'écouler à travers une géométrie de référence, est aussi une propriété clé, car elle dirige le transport et la manipulation de la poudre.

En plus des méthodes macroscopiques, une analyse détaillée à l'échelle microscopique offre des aperçus importants sur les particules de la poudre. Cette analyse peut déterminer : la morphologie des particules, qui peut varier de la forme sphérique à des formes plus complexes ; la distribution granulométrique, qui révèle comment les particules sont réparties en taille ; la surface spécifique de la poudre, correspondant à la surface réelle des particules, un indicateur clé de l'aptitude de la poudre au frittage ; et la porosité, analysée par des techniques comme la porosimétrie au mercure qui fournit des informations quantitatives sur la microstructure interne de la poudre, permettant de détecter des porosités inter-particules ou intra-particules.

PuO_2

Le retraitement du combustible usé se fait dans les usines de La Hague (Orano). Le PuO_2 est obtenu par un procédé d'extraction appelé "PUREX". PUREX ou "Plutonium Uranium Refining by EXtraction" est une méthode standard de retraitement du combustible nucléaire usé pour en extraire certains éléments précieux, notamment l'uranium et le plutonium.

Après une étape de cisaillage qui a pour but de transformer les crayons des assemblages combustibles en petits tronçons appelés coques, une étape de dissolution est mise en œuvre, utilisant de l'acide nitrique pour dissoudre le matériau nucléaire contenu dans ces coques. Le procédé PUREX se déroule ensuite en trois phases. La première phase d'extraction vise à séparer une majorité des produits de fission de la solution d'uranium et de plutonium. Ensuite, une seconde phase de lavage permet d'extraire de cette solution les produits de fission résiduels. Enfin, une troisième phase de partition permet de séparer l'uranium du plutonium [21].

Le plutonium obtenu à l'issue du procédé PUREX est directement utilisable pour la fabrication de combustible MOX, sous forme de PuO_2.

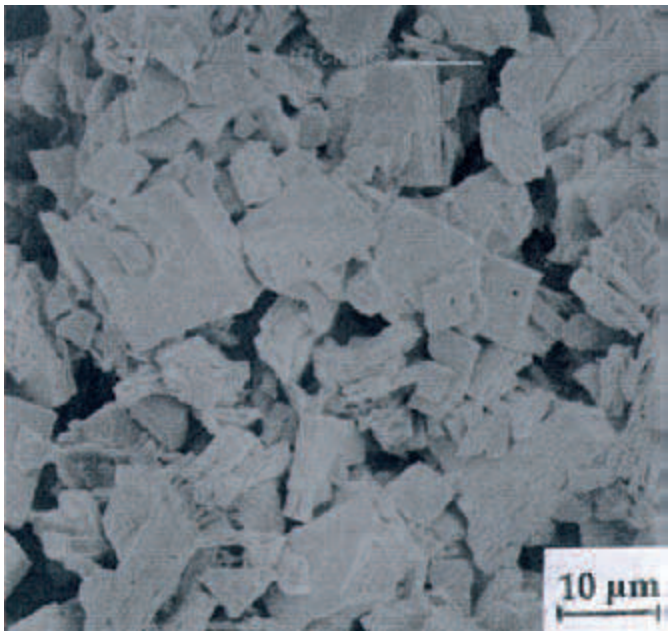

FIGURE 1.5 – Image MEB de la poudre PuO_2 [14]. L'observation MEB montre une taille de l'ordre de 0,5 à 10 µm.

L'observation MEB en figure 1.5 révèle que la méthode PUREX aboutit à une structure des agrégats qui apparaissent sous la forme de tablettes.

Chamotte

La chamotte est obtenue à partir de pastilles rebutées. On trouvera à la section 1.1.5, une liste des défauts conduisant au rebut d'une pastille. Ces pastilles peuvent être soit déjà frittées, soit encore crues. Dans le cas des pastilles crues, un mélange est réalisé et ensuite pastillé puis fritté. Ces nouvelles pastilles frittées sont ajoutées aux rebuts déjà frittés. L'ensemble est alors concassé puis broyé jusqu'à obtenir une granulométrie similaire à celle du PuO_2 et de l'UO_2.

La chamotte est constituée de particules denses de tailles entre 50 et 200 microns, qui prennent une forme ovoïdale, composées de cristallites (isolées ou agglomérées) et de particules beaucoup plus fines [22]. Ces dernières sont le résultat de la fracturation des cristallites pendant l'étape de broyage.

Lubrifiant

Le lubrifiant utilisé dans la fabrication du MOX est le Stéarate de Zinc StZn (environ $0,3\%$ massique). Pendant la phase de compression, le StZn facilite le glissement entre la poudre et les parois de la matrice et joue un rôle important dans la lubrification interne de la poudre pendant la compaction. Le lubrifiant StZn joue aussi un rôle de porogène.

Porogène

Le porogène azodicarbonamide (AZB) permet de piloter la densité des pastilles frittées en ménageant une porosité résiduelle globale d'environ 5% en volume. Ces pores ont pour fonction d'absorber les gaz de fission afin de prévenir l'expansion des pastilles pendant l'irradiation.

Procédé MIMAS

L'usine MELOX utilise le procédé de fabrication MIMAS ("Micronized MASter Blend") pour l'élaboration des poudres MOX (figure 1.6).

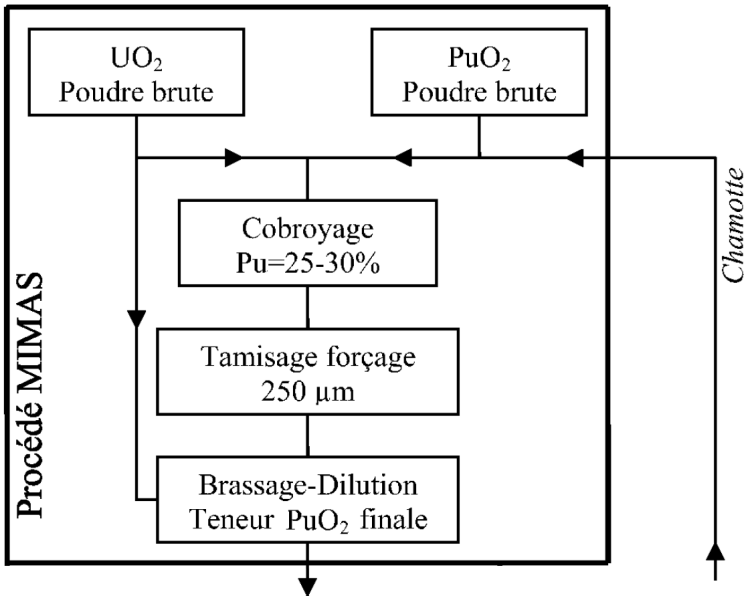

FIGURE 1.6 – Diagramme schématique du processus MIMAS [22].

Ce procédé comprend deux étapes :

— Constitution d'un mélange intermédiaire appelé "mélange primaire" (quelque fois aussi dénommé mélange mère), pour lequel les poudres UO_2, PuO_2 et chamotte sont broyées et mélangées, pour obtenir un mélange à haute teneur en plutonium (25% à 30% massique de PuO_2).

— l'élaboration d'un "mélange secondaire" (ou mélange final), pour lequel le mélange primaire est dilué avec l'UO_2 par brassage dans un mélangeur conique à vis afin d'obtenir une teneur cible en plutonium (de l'ordre de 2,5% à 10% massique). Au cours du brassage, le porogène AZB est introduit dans le mélange. En raison de sa sensibilité à la température, le lubrifiant (StZn) est ajouté ultérieurement au mélange final.

Pendant le procédé MIMAS, les rebuts (chamotte) sont réintroduits à l'étape de cobroyage sous forme de poudre. La chamotte peut atteindre une teneur massique jusqu'à 70% du mélange primaire.

1.1.2 Pastillage

Le mélange secondaire est ensuite compacté dans une presse à double effet. L'utilisation de cette presse a pour effet de reporter le minimum de densité vers le centre de la pastille lors de la compaction. La compaction est contrôlée en pression pour viser une densité moyenne dans la pastille. Le comprimé cohésif (mais relativement fragile avant frittage) est appelé comprimé cru (ou à vert). Les parois de la matrice sont lubrifiées par le StZn présent dans la poudre ce qui permet de faciliter la compaction et diminuer les gradients de densité au sein de la pastille crue. La presse utilisée est composée d'un poinçon inférieur fixe, d'un poinçon supérieur mobile, d'une table mobile (qui assure le double effet) avec plusieurs matrices et d'un sabot permettant le remplissage des matrices.

La géométrie des poinçons supérieurs et inférieurs, qui sont symétriques, est illustrée dans la figure 1.7.

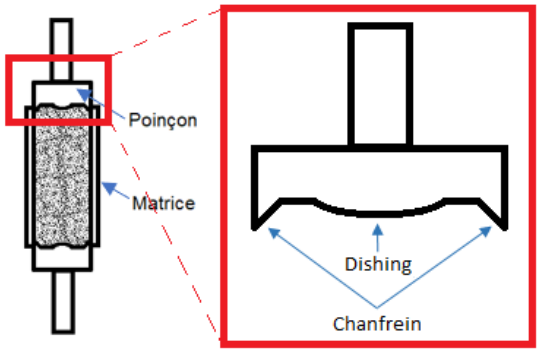

FIGURE 1.7 – Géométrie des poinçons

Ces poinçons sont munis de chanfreins à leurs extrémités, ce qui évite la présence d'arêtes vives. Ces dernières sont particulièrement fragiles, notamment lors de la phase d'éjection hors de la matrice et des opérations ultérieures de frittage, rectification et gainage. De plus, les poinçons présentent de légères cuvettes, appelées "dishing" en anglais. Ces cuvettes ont pour fonction de compenser la distorsion créée par le gradient thermique au sein de la pastille lors de son utilisation dans le réacteur nucléaire.

L'étape de pastillage est réalisée en quelques secondes et se déroule en quatre phases : Le remplissage, la charge, la décharge et l'éjection.

Remplissage

Le mélange est transféré par un sabot qui, grâce à des mouvements d'aller-retour, permet de remplir uniformément les matrices de la presse. Des imperfections peuvent survenir lors de cette phase de chargement, comme la formation de voûtes, qui peuvent créer des espaces vides réduisant la densité apparente du lit de poudre à certains endroits. Cependant, la maîtrise de cette phase de chargement est désormais bien établie, et les défauts finaux sont rarement associés à cette partie du procédé.

Charge

La poudre est ensuite comprimée en abaissant à la fois le poinçon supérieur et la table. Celle-ci descend avec une vitesse plus faible que le poinçon supérieur. Cette opération équivaut à un pressage à **double effet**. Dans une presse à simple effet, la table et le poinçon inférieur restent fixes et seul le poinçon supérieur bouge. Cette différence a des implications sur la géométrie des pastilles frittées : une presse à simple effet génère des pastilles en forme de cône, tandis qu'une presse à double effet produit des pastilles en forme de diabolo (cf. 1.1.3).

La densification de la poudre pendant la charge se produit grâce à un réarrangement des agglomérats, suivi de leur déformation et éventuellement de leur rupture. Aux très hautes pressions, en fin de compaction, il est possible que les aggrégats eux-mêmes subissent des ruptures [22, 17].

Dans le cas de la poudre MOX, un comportement typique des poudres céramiques est observé : les agglomérats et agrégats ont tendance à se fragmenter et à se réarranger pendant la charge. La densité relative en fin de compactage est située entre 50% et 60% (la densité relative d'un corps est le rapport de sa masse volumique à la masse volumique de référence : $\tilde{\rho} = \frac{D}{D_{ref}}$). La densité finale dépend de plusieurs facteurs, dont la microstructure des poudres, la pression appliquée et les frottements.

Décharge

Suite à une période de maintien de la position de compression pendant quelques secondes, le poinçon supérieur est légèrement remonté. Ce léger mouvement à une pression de maintien fixe est caractéristique d'un comportement de type viscoplastique. On attribue principalement ce comportement à des phénomènes de réarrangement et de fracture des agglomérats et agrégats [22]. Cette phase de décharge, qui se déroule en mode simple effet car ni la table ni le poinçon inférieur ne bougent, permet de libérer une partie de l'énergie élastique stockée pendant la charge. Le poinçon supérieur poursuit sa décharge partielle jusqu'à une pression résiduelle appelée pression d'accompagnement. Cette pression d'accompagnement joue un rôle critique dans le contrôle des défauts du comprimé (voir paragraphe 1.1.5). Enfin, le rebond axial, calculé comme la variation de hauteur du piston divisée par la hauteur avant décharge, est généralement d'environ $2,5\%$ [22].

Éjection

La pastille est éjectée de la matrice par l'intermédiaire d'un déplacement relatif entre les poinçons et la matrice : la distance entre les poinçons supérieur et inférieur reste constante tout en conservant la pression d'accompagnement, et la matrice est abaissée ce qui provoque le glissement du comprimé vers l'extérieur de la matrice (figure 1.8).

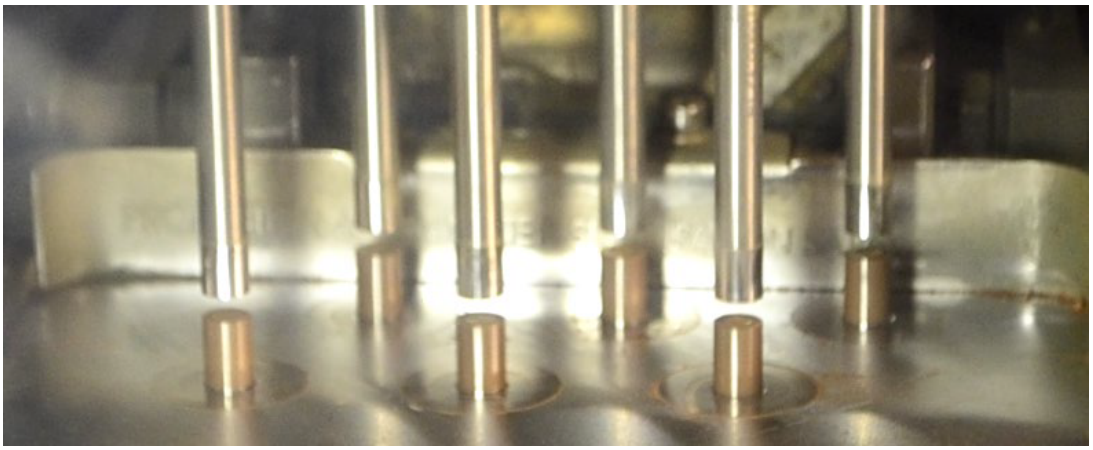

Figure 1.8 – Ejection de pastilles compactées dans une presse CDA

Le compact est soumis à une expansion radiale pendant l'éjection de la matrice. La pression d'accompagnement durant l'éjection permet de garantir la cohésion du compact et de réduire le risque de fracturation dû à cette expansion radiale et au cisaillement. Cette étape est critique car la plupart des défauts observés sur les comprimés sont initiés lors de la décharge et de l'éjection [23]. Après le glissement complet de la pastille, le poinçon supérieur est relevé jusqu'à ce que la pression appliquée par les poinçons soit annulée.

En fin d'éjection, les comprimés présentent à la fois une résistance mécanique beaucoup plus faible que le matériau dense et une distribution hétérogène de la densité. Cette répartition hétérogène de la densité est due aux gradients de contrainte dans le compact qui sont induits par les frottements entre la poudre et la matrice. A ce stade, le comprimé obtenu est un cylindre d'environ 13 mm de hauteur et 10 mm de diamètre.

1.1.3 Frittage

Les comprimés crus sont rassemblés dans des nacelles et transférés dans les fours de frittage sous atmosphère contrôlée (mélange d'Argon et hydrogène humidifié).

Les fours de frittage de l'usine MELOX sont des fours poussoirs. Ils sont constitués :

— D'une zone de pré-frittage où la température monte graduellement jusqu'à 900°C. Le porogène ainsi que le lubrifiant sont dégradés pendant cette étape et une porosité résiduelle est conservée.

— D'une zone de frittage où la température atteint 1700°C. La pastille se densifie jusqu'à une densité de l'ordre de 95% de la densité théorique.

— D'une zone de refroidissement où la température descend progressivement.

Un cycle de frittage complet dure environ 24h. Après frittage le cylindre a une hauteur d'environ 11 mm et un diamètre d'environ 8 mm. Si on fait l'hypothèse simplificatrice que la densité après frittage est homogène, alors les hétérogénéités de densité issues de l'étape de compaction en matrice se traduisent par un retrait hétérogène lors du frittage et un écart des pastilles à la cylindricité. En résumé, lors de l'étape de com-

paction, le frottement des particules contre la paroi de la matrice génère un gradient de densité (figure 1.9-a). Les zones les plus faibles en densité (situées à mi-hauteur en surface de la pastille) se densifient plus pour atteindre une densité d'environ 95%, tandis que les zones plus denses (en haut et en bas de la pastille) sont déjà plus proches de cette valeur. Ce phénomène se traduit par une zone centrale avec un diamètre plus faible que les extrémités de la pastille (figure 1.9-b).

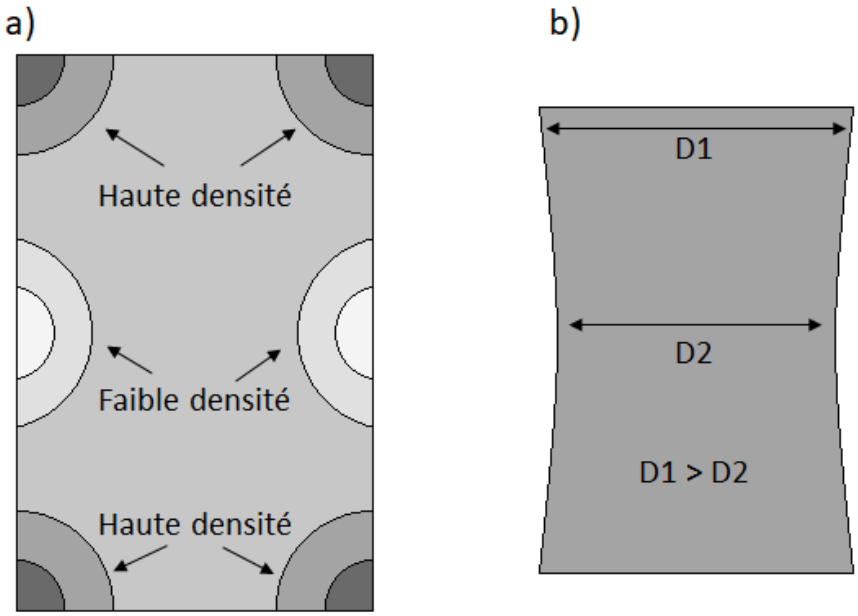

FIGURE 1.9 – Représentations schématiques d'une pastille avant et après frittage. a) Carte de densité de la pastille avant frittage. b) Géométrie de la pastille après frittage.

Ces différences de retrait volumique provoquent des distorsions géométriques appelées "effet diabolo". Il est à noter que cet effet diabolo se retrouve également dans les réacteurs, lors de l'irradiation des pastilles (figure 1.10).

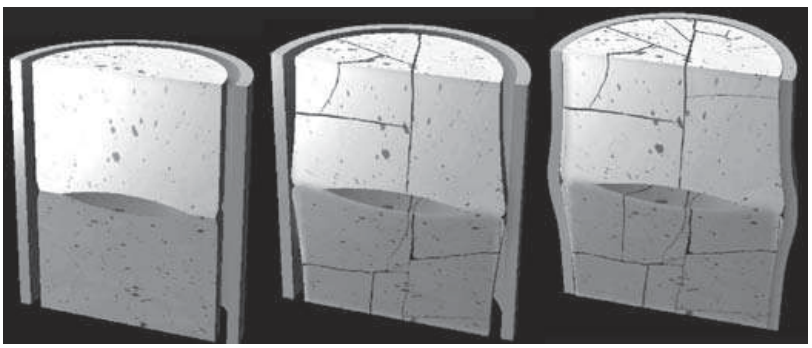

FIGURE 1.10 – Évolution de l'effet diabolo sur les pastilles au cours de l'irradiation dans les réacteurs [14].

Bien que le frittage puisse également influencer le diabolo, en particulier lorsqu'un gradient de température est impliqué, il est apparu raisonnable de négliger son impact pour cette thèse. Le frittage est considéré ici comme un indicateur des événements qui se sont produits pendant l'étape de compaction : le diabolo est ainsi uniquement le résultat du gradient de densité créé lors de la compaction de la poudre. Autrement dit, si la pastille sortait avec une densité homogène de l'étape de compaction, il n'y aurait pas de diabolo. Par conséquent, notre attention se concentrera sur les phénomènes associés à la compaction.

1.1.4 Rectification, gainage et assemblage

Les pastilles frittées sont ensuite rectifiées afin d'obtenir une géométrie conforme aux spécifications dimensionnelles (figure 1.11). L'effet diabolo est la principale raison qui rend nécessaire la rectification des pastilles. Toutefois, cette rectification comporte certains inconvénients : elle peut endommager la pastille, surtout lorsque l'épaisseur à rectifier est significative ; elle produit une quantité notable de rebuts et de poussières fines et nocives, qui sont particulièrement indésirables, mais qui doivent être récupérés et réinjectés dans le procédé sous forme de chamotte. Réduire l'amplitude de cet effet diabolo, ou même l'éliminer entièrement, permettrait de diminuer ces contraintes et d'améliorer le processus de production.

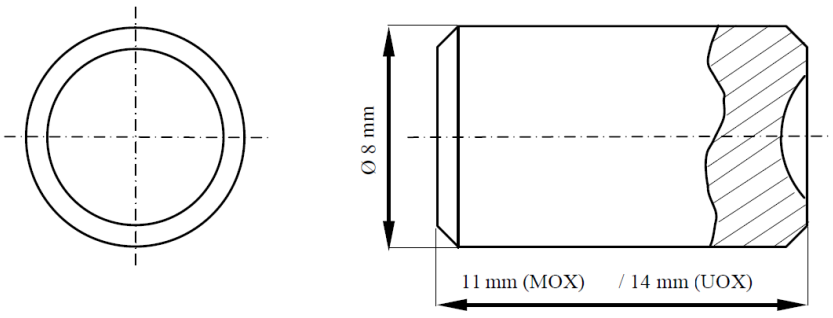

FIGURE 1.11 – Dimensions approximatives d'une pastille UOX ou MOX conçue pour un réacteur à eau pressurisée (REP) [24, 22].

Après contrôle qualité, les pastilles rectifiées sont engainées dans des gaines de Zircaloy qui sont ensuite pressurisées et soudées. Les crayons sont assemblés en fais-

ceau régulier pour constituer un assemblage MOX qui sera chargé en réacteur pour produire de l'électricité.

Le volume des évidements et l'espace entre la gaine de Zircaloy et la pastille sont calculés de manière à être compatibles avec les phénomènes observés lors de la phase d'irradiation en réacteur, tels que le dégagement des gaz de fission, la dilatation thermique différentielle entre la gaine et la pastille, ainsi que le gonflement des pastilles [24] (voir figure 1.10).

La structure d'un assemblage de MOX est similaire à celle d'un assemblage d'uranium enrichi : elle est constituée de tubes appelés "crayons", dans lesquels sont empilées des pastilles de combustible (figure 1.12).

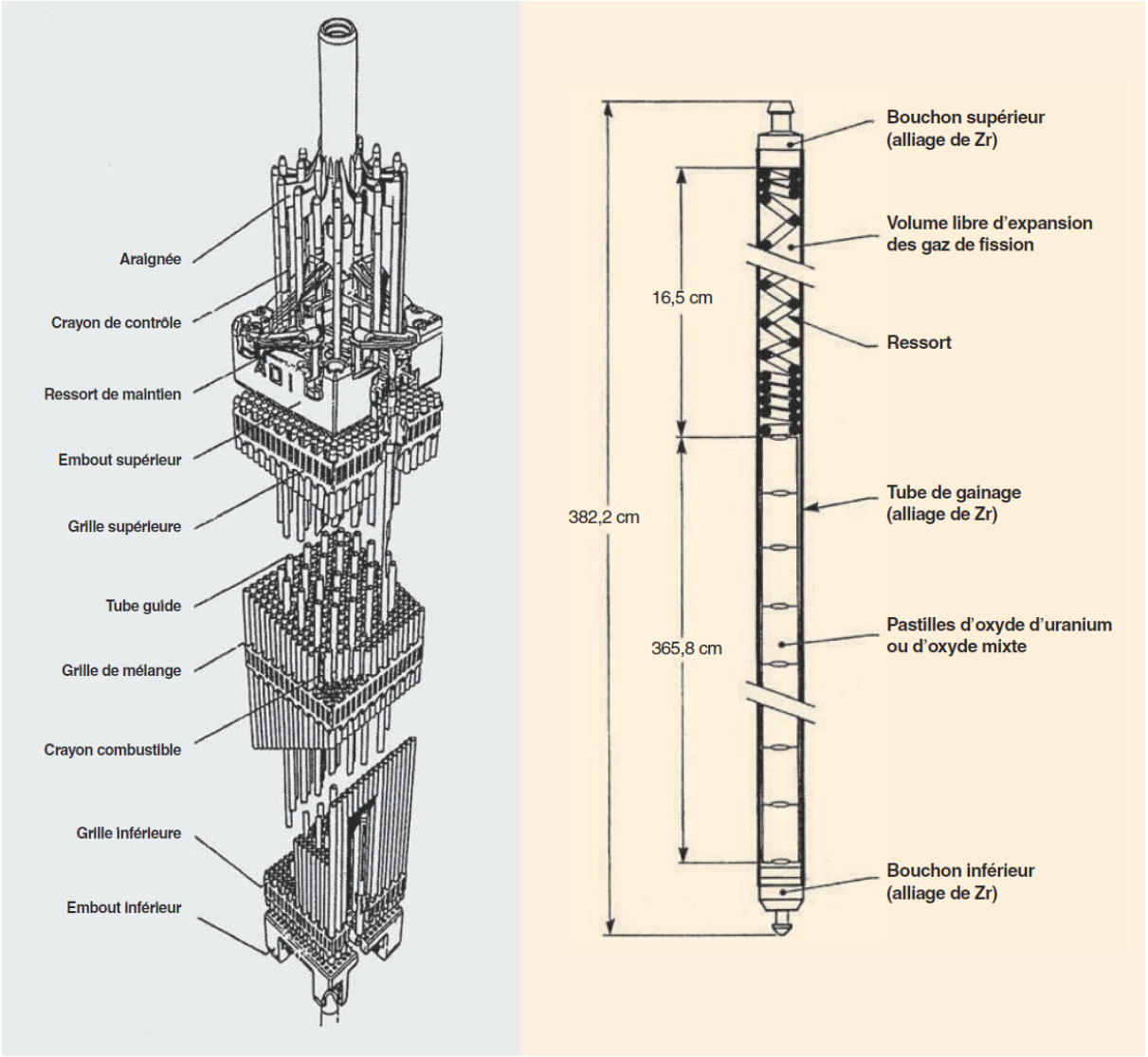

Figure 1.12 – Crayon et assemblage combustible UOX [14]

Un assemblage MOX, généralement constitué de 60 à presque 300 crayons, comprend des crayons de trois teneurs différentes en PuO_2 (basse, moyenne et haute teneur). Les crayons ont une longueur approximative de 4 mètres et contiennent près de 320 pastilles. Les crayons de combustible MOX devant répondre aux mêmes normes de sûreté que ceux en UO_2, cela signifie que ces crayons en MOX doivent respecter les mêmes contraintes thermiques et mécaniques que celles définies pour le combustible UO_2 [12].

1.1.5 Défauts des pastilles MOX

Les pastilles sont soumises à des critères de validation stricts et précis. La présence d'imperfections influence donc directement la quantité de matériau mis au rebut. Il est donc souhaité de mieux contrôler la génération des défauts des compacts crus. La plupart de ces derniers, tels que les éclats, les fissures et l'écrasement (figure 1.13) sont initiés pendant l'étape de pastillage et accentués pendant le frittage.

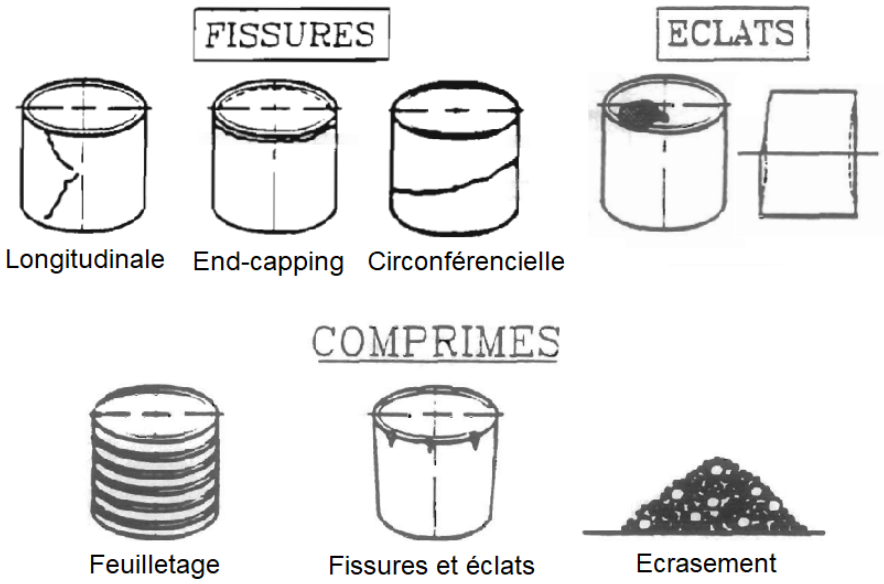

FIGURE 1.13 – Les principaux défauts répertoriés et illustrés par G. Kerboul [25].

Les phases les plus critiques de l'étape de pastillage pour la génération des défauts sont la décharge et l'éjection [25]. La pression d'accompagnement est un des paramètres de pressage qui peut être réglé pendant ces deux phases.

Si celle-ci n'est pas suffisamment élevée, des défauts de type "feuilletages" peuvent se manifester, se traduisant par une série de fissures circonférentielles le long de la pastille. En revanche, si la pression d'accompagnement dépasse largement la valeur optimale, cela peut causer un écrasement de la pastille (voir figure 1.14). Une pression d'accompagnement légèrement supérieure à la valeur optimale pourrait engendrer une fissuration ou même provoquer des éclats en extrémité de pastille.

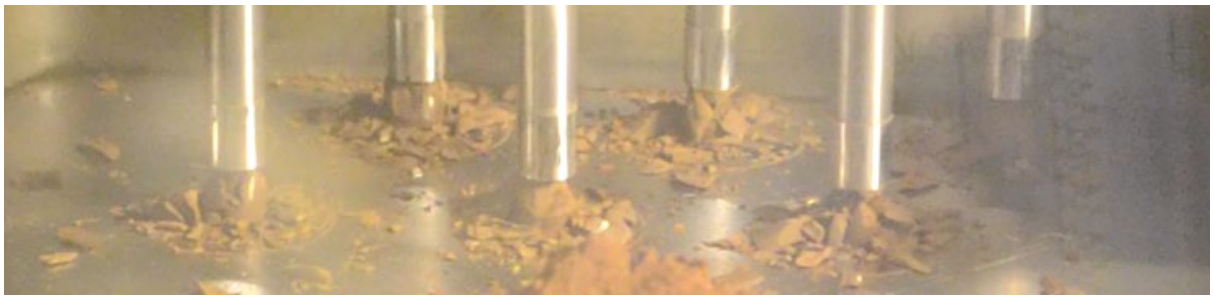

FIGURE 1.14 – Défauts générés observés lors du programme d'essais d'Orano

L'ajustement des paramètres de pressage est couramment mis en œuvre en production pour limiter le taux de rebuts. Toutefois, d'autres voies sont étudiées pour améliorer les rendements. L'une d'entre elles consiste à augmenter la solidité intrinsèque des comprimés crus. L'ajout d'additifs du type lubrifiant peut minimiser les frottements avec la matrice, améliorer la cohésion des comprimés et diminuer les risques d'endommagement. Une autre voie pour la réduction des défauts consiste à chanfreiner les poinçons, car les zones les plus propices à l'endommagement sont situées à la périphérie des compacts [26]. Le chanfrein sur les pastilles sert aussi à faciliter l'opération d'engainage.

Dans le cadre de la compaction des poudres nucléaires, plusieurs études ont déjà été menées pour améliorer les connaissances sur l'optimisation et le contrôle des défauts [26, 16, 27, 28, 29] :

En s'appuyant sur une analyse qui prend plus en compte le caractère granulaire du matériau poudre, Delette [26] a montré que les fissures dans les comprimés crus de MOX sont dues soit à des particules comportant un nombre trop faible de contact avec leurs voisines, soit à des particules dont certains contacts se sont rompus.

Klemm & Sobek [27] ont étudié le comportement de compaction des poudres d'UO_2,

mettant en évidence l'influence des variations du type et de la méthode de mélange des lubrifiants. Selon eux, la solidité des compacts peut être améliorée en augmentant la teneur en lubrifiant après l'étape de granulation.

Alvain [16] a démontré que l'augmentation de la teneur en lubrifiant réduit l'effet diabolo après compaction pour des poudres d'UO_2 lubrifiées.

Selon Palanki et al. [29], les poudres qui conduisent au phénomène de end-capping contiennent des agglomérats durs. Ils proposent donc un broyage préalable de la poudre avant compaction comme une stratégie potentielle pour atténuer ce phénomène.

Alzouma et al. [28] ont constaté qu'un excès de lubrifiant sur la paroi de la matrice peut avoir un effet négatif sur l'indice de frottement lors du pressage. Ils préconisent donc d'optimiser la quantité de lubrifiant pour assurer un mode de lubrification mixte.

1.1.6 Enjeux de la fabrication du combustible MOX

Tenue mécanique des compacts de MOX

La tenue mécanique des comprimés est un paramètre très important du procédé industriel. Les pastilles doivent avoir une solidité suffisante pour éviter les possibles défauts générés pendant leur manipulation et leur transport. Les deux types de poudres UO_2 (VH et VS) présentent une différence claire de solidité : les compacts UO_2 VH sont caractérisés par une contrainte à la rupture deux fois plus importante que les compacts UO_2 VS [22]. La poudre UO_2 VH est actuellement utilisée pour la fabrication du combustible MOX.

Variabilité des mélanges de poudres MOX

La microstructure d'une pastille frittée de MOX est composée de trois phases (figure 1.15) : la matrice (faible teneur en Pu), les amas (riches en Pu) et l'enrobage (teneur intermédiaire en Pu).

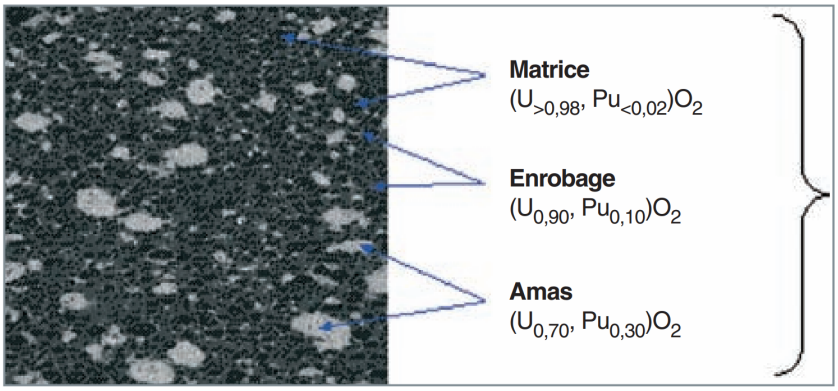

FIGURE 1.15 – microstructure du MOX d'une pastille frittée [14]

La poudre MOX a une composition finale complexe et ses propriétés mécaniques dépendent fortement de ses constituants, mais également des différentes étapes du procédé MIMAS.

1.2 Revue des modèles de compaction et de frittage

La modélisation et la simulation numérique tiendront une place importante dans cette thèse. Ici nous décrivons les principales modélisations (à l'exception des éléments discrets qui seront décrits dans le chapitre 2) qui ont été utilisées dans la littérature pour traiter la compaction. Cette description se concentre sur les efforts de modélisation dans le cadre de la compaction des poudres pour l'application combustible nucléaire.

Comme décrit à la section précédente, la compaction et le frittage des pastilles combustibles sont des étapes complexes du processus industriel de fabrication du combustible nucléaire. La modélisation est un outil important pour comprendre et optimiser ces étapes, notamment en renforçant la compréhension de la genèse des défauts (issus essentiellement de la compaction). Cette modélisation peut s'appuyer, pour la validation et l'ajustement des paramètres, sur des mesures expérimentales des contraintes (axiales et si possible radiales) obtenues à partir de poinçons et de matrices instrumentés. Ces modèles de compaction peuvent ensuite être complétés par des modèles sur l'étape de frittage. Différents modèles pour décrire la compaction et frittage de poudres sont proposés dans la littérature. Nous distinguons quatre types de modèle : **empiriques, semi-empiriques, continus** et **discrets**. Nous décrirons ici les trois premiers types de modèles tandis qu'on retrouvera les modèles discrets dans le chapitre 2).

1.2.1 Modèles empiriques

Un modèle empirique de compaction de poudre relie une mesure particulière de l'état de consolidation d'une pastille, telle que la porosité, la densité ou le taux de vide, à la pression de compaction. Par exemple, Walker [30] a proposé dès 1923 un modèle empirique qui prédit que la densité relative $\tilde{\rho}$ est une fonction logarithmique de la pression apparente P_{app} :

$$\tilde{\rho} = a + K \ln(P_{app}) \tag{1.1}$$

où, a est une constante et le coefficient K est appelé module de compression. La forme logarithmique de l'équation permet de reproduire correctement la limite de l'incompressibilité de la poudre pour les hautes densités. Cette forme générale est toujours une bonne approximation pour un grand nombre de poudres céramiques [31].

Aujourd'hui, la modélisation de la compaction de poudres est déjà bien établie avec de nombreux modèles empiriques, tels que les modèles de Heckel [32], Kawakita [33], Niesz [34], Adams [35] et CooperEaton [36]. L'ensemble de ces lois empiriques a été étudié dans le cadre de la compaction d'UO_2 par A. Ledac [20]. Parmi ces modèles, A. Ledac en a utilisé deux en particulier :

— le modèle de Heckel [32], pour les hautes pressions (P > 200 MPa, voir figure 1.16-b),

— et le modèle de Niesz [34], pour les basses pressions (P < 200 MPa, voir figure 1.16-a).

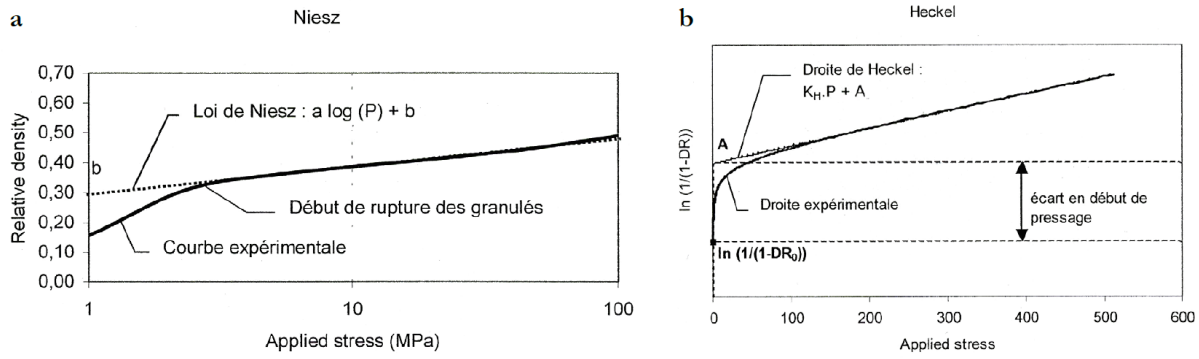

FIGURE 1.16 – Représentation de la courbe de compaction sur une poudre d'UO_2 par des lois empiriques [23]

L'équation de Heckel est l'une des équations empiriques les plus utiles pour décrire les propriétés de compaction des poudres. Des propriétés matérielles importantes (par exemple, la limite d'élasticité) des poudres peuvent être déduites de l'analyse de Heckel. Le modèle proposé par Heckel est représenté par l'équation suivante :

$$\ln\left(\frac{1}{1-\tilde{\rho}}\right) = K_H P_{app} + A_H \tag{1.2}$$

où A_H est une constante empirique pour représenter le réarrangement des particules

et K_H est une constante empirique lié à la compressibilité de la poudre. Le modèle de Heckel peut aussi exprimer la porosité en fonction de la pression appliquée [31], ce qui explique pourquoi ce modèle est bien adapté en fin de compaction. Le régime de densification étant régi par des réarrangements et fractures d'agrégats, la porosité intergranulaire a complètement disparu tandis que la porosité intragranulaire diminue [15].

Le modèle proposé par Niesz décrit la phase de réarrangement des agglomérats et reprend la forme de l'équation de Walker (1.1). Il est représenté par l'équation suivante :

$$\tilde{\rho} = a \log(P_{app}) + b \tag{1.3}$$

où a et b sont deux paramètres empiriques calculés à partir des données expérimentales.

Concernant les modèles empiriques pour le frittage, nous nous limitons au modèle de Fourcade qui propose une équation linéaire reliant le diamètre final $d_{\text{fritté}}(z)$ de la pastille à une hauteur z au diamètre du comprimé à cru $d_{cru}(z)$ en fonction de la densité relative $\tilde{\rho}(z)$ à cette hauteur [23] :

$$d_{\text{fritté}}(z) = d_{\text{cru}}(z) - (\beta - \alpha\tilde{\rho}(z)) \tag{1.4}$$

où α et β sont des coefficients empiriques positifs. L'équation (1.4) montre que lorsque $\tilde{\rho}(z)$ est grand (typiquement aux extrémités hautes et basses du comprimé), le diamètre de la pastille fritté est plus grand. C'est l'effet diabolo (figure 1.9).

Ces modèles empiriques sont généralement bien adaptés à une poudre particulière avec une morphologie donnée et une pression de compaction donnée. Mais une poudre présentant une variabilité importante, comme la poudre MOX, rend ces modèles inapplicables pour prédire son comportement si on varie la fraction volumique de l'un des composants. En effet, chaque nouvelle poudre nécessitera la détermination de nouveaux paramètres α et β. A noter aussi que l'équation (1.4) nécessite la connaissance de la densité à cru dans l'échantillon, donnée délicate à obtenir expérimentalement et

qui est généralement issue d'un calcul Éléments Finis (voir la section 1.2.3) à l'étape de compaction.

1.2.2 Modèles semi-empiriques

Les modèles semi-empiriques sont basés sur les lois de la mécanique des milieux continus mais conservent une part d'empirisme dans la résolution de ces lois. Ils permettent de décrire la distribution de contrainte et de densité à l'intérieur d'un comprimé pressé en matrice. Deux modèles sont plus particulièrement étudiés : les modèles de Janssen [37] et de Thompson [38].

Le modèle de Janssen, créé pour calculer l'évolution de la pression dans les silos à grains, repose sur l'équation d'équilibre d'une tranche de poudre à un instant donné de la compression. La tranche axiale prise à une hauteur z et rayon z d'un empilement supposé cylindrique est confiné dans une matrice indéformable (figure 1.17).

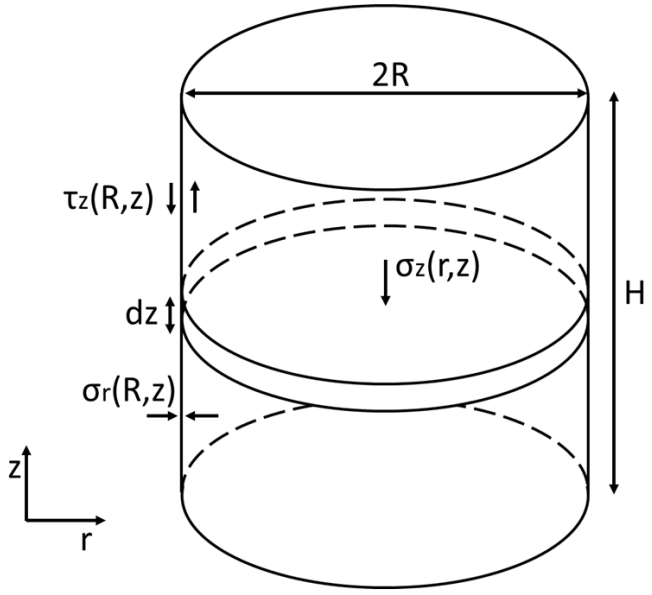

FIGURE 1.17 – Représentation du modèle des tranches de Janssen.

L'équation d'équilibre des milieux continus sur cette tranche s'écrit : $\mathrm{div}(\vec{\sigma}) = 0$. En coordonnées cylindriques, sur une tranche d'épaisseur dz, on obtient :

$$\frac{\partial \sigma_z(r,z)}{\partial z} = \frac{1}{r}\frac{\partial r\tau_z}{\partial r} \tag{1.5}$$

où σ_z et τ_z sont respectivement la contrainte axiale et la contrainte de cisaillement. Janssen fait l'hypothèse d'une friction linéaire de la poudre sur la paroi avec un coefficient de frottement constant et régi par une loi de Coulomb :

$$\tau_z(R,z) = \mu\sigma_r(R,z) \tag{1.6}$$

où μ est le coefficient de frottement à l'interface poudre-matrice et $\sigma_r(R,z)$ est la contrainte radiale à l'interface poudre-matrice.

Janssen fait aussi l'hypothèse que la contrainte radiale σ_r est proportionnelle en tout point à la contrainte axiale σ_z. Le coefficient de proportionnalité est défini comme l'indice de fluidité (η) :

$$\sigma_r(R,z) = \eta\sigma_z(R,z) \tag{1.7}$$

La combinaison des équations (1.5), (1.6) et (1.7) conduit à l'expression suivante :

$$R\mu\eta\sigma_z(R,z) = \int_0^R r\frac{\partial\sigma_z(r,z)}{\partial z}dr \tag{1.8}$$

Ce modèle propose une analyse mono-dimensionnelle de la compaction, en considérant que la contrainte n'évolue pas en fonction du rayon, donc $\sigma_z = \sigma_z(r,z) = \sigma_z(R,z)$. L'équation (1.8) s'écrit :

$$R\mu\eta\sigma_z = \frac{R^2}{2}\frac{\partial\sigma_z}{\partial z} \tag{1.9}$$

Avec l'équation (1.9), dans une compaction à simple effet, il est possible de calculer la contrainte transmise au poinçon inférieur en fonction de la contrainte appliquée par le poinçon supérieur.

$$\sigma_{trans} = \sigma_{app}\exp(-2\mu\eta\frac{H}{R}) \tag{1.10}$$

En connaissant la contrainte appliquée par le poinçon supérieur et la contrainte transmise au poinçon inférieur, l'équation (1.10) permet de déterminer le produit $\mu\eta$, appelé indice de friction. Ainsi, la contrainte transmise dans une tranche dz quelconque

du compact peut être calculée avec l'équation :

$$\sigma_z(z) = \sigma_{app} exp(-2\mu\eta\frac{z}{R}) \tag{1.11}$$

L'utilisation conjointe des équations (1.10) et (1.11) permet de déterminer la contrainte axiale à mi-hauteur, également appelée contrainte axiale moyenne :

$$\sigma_{z,moy} = \sqrt{\sigma_{app}\sigma_{trans}} \tag{1.12}$$

La figure 1.18-a représente graphiquement la modélisation de Janssen d'un comprimé d'UO_2 pressé en simple effet à 600 MPa avec les données expérimentales de Fourcade [23].

Le modèle de Thompson [38] reprend les hypothèses du modèle de Janssen jusqu'à l'équation (1.8) et considère un gradient de contrainte dans la direction radiale. Ce modèle prend en compte les résultats de H. Unkei [39] qui définit le frottement de la poudre sur les parois de manière empirique en supposant que la distribution radiale de la contrainte axiale est de type parabolique et centrée autour de l'axe de la matrice :

$$\sigma_z(r,z) = r^2 f(z) + c(z) \tag{1.13}$$

où $c(z)$ est la valeur de la contrainte au centre du comprimé. En effectuant l'intégration de l'équation (1.13) avec différentes hypothèses sur les conditions aux limites, Thompson arrive à l'équation ci-dessous :

$$\sigma_z(r,z) = \sigma_{app}\left[\left(2 - \frac{c}{\sigma_{app}}\right)\frac{r^2}{R^2}\exp\left(-4\mu\eta\frac{H}{R}\left(1 - \frac{z}{2R}\right)\right) + \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right)\frac{c}{\sigma_{app}}\right] \tag{1.14}$$

$$\frac{c}{\sigma_{app}} = -0,49w^3 + 1,77w^2 - 2,12w + 1,00 \tag{1.15}$$

$$w = \mu\eta\frac{H}{2R} \tag{1.16}$$

En intégrant l'équation (1.14), Thompson obtient une équation qui exprime la contrainte

transmise en fonction de la hauteur et du rayon du cylindre :

$$\sigma_{trans} = \sigma_{app}\left[\left(1 - 0,5\frac{c}{\sigma_{app}}\right)\exp\left(-4\mu\eta\frac{H}{R}\right) + 0,5\frac{c}{\sigma_{app}}\right] \tag{1.17}$$

La répartition des contraintes n'est plus homogène dans la direction radiale (figure 1.18-b). Ce modèle est donc plus représentatif que le modèle de Janssen. Ce modèle permet également de mettre en évidence des gradients de densité dans la pastille en couplant ces approches avec une loi de densification [16].

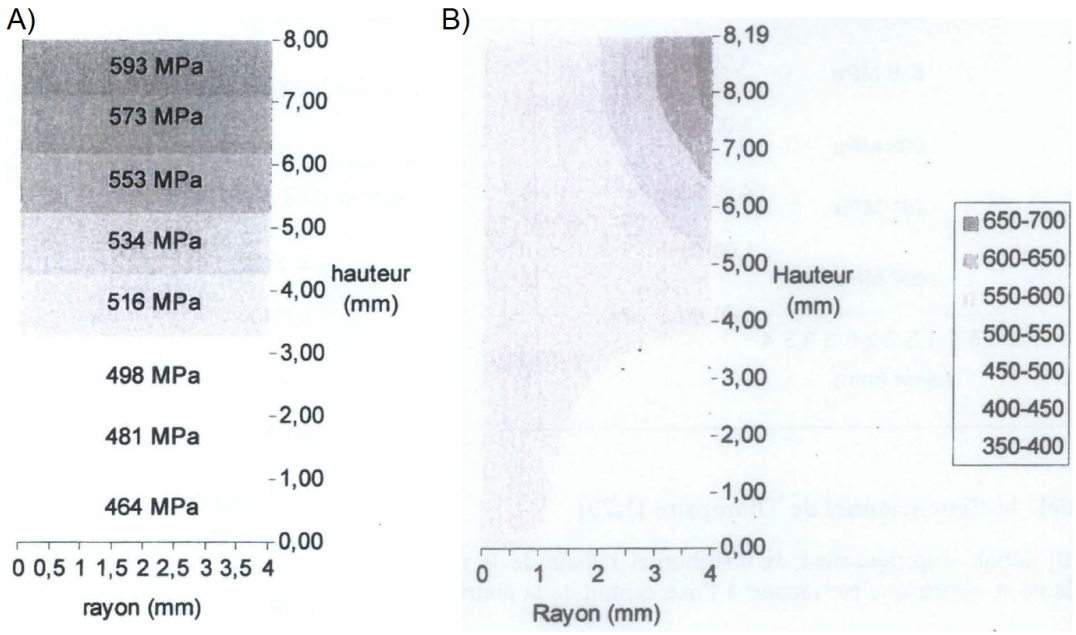

FIGURE 1.18 – Utilisation du modèle des tranches de Janssen (pas de gradient de contrainte radiale) et de Thompson (avec la possibilité d'un gradient de contrainte radiale) par Fourcade pour un comprimé d'UO_2 pressé en simple effet à 600 MPa [23].

Les modèles semi-empiriques ont été utilisées par J. Fourcade [23], afin de mettre en évidence le rôle du gradient des contraintes dans les pastilles lors des étapes de pastillages des poudres UO_2. L'étude de Fourcade contribue à la compréhension de la génération de défauts dans les pastilles d'UO_2 fabriquées par pressage uniaxial. Cependant ces modèles reposent sur de fortes hypothèses simplificatrices et conservent toujours un caractère empirique.

1.2.3 Modèles continus

Contrairement aux modèles empiriques, les modèles continus décrivent les processus de densification par des lois physiques, et ils considèrent l'empilement de poudre comme un milieu continu.

Lois constitutives élasto-plastiques d'une poudre

Les modèles élasto-plastiques permettent de décrire la compression des poudres et se révèlent efficaces pour modéliser la compaction uniaxial. Dans un modèle élasto-plastique, un matériau peut être déformé soit de manière élastique soit de manière plastique. Le type de déformation est déterminé par la fonction de charge f, un paramètre qui dépend du tenseur des contraintes σ_{ij} et des paramètres d'écrouissage k_α. Le tenseur des contraintes est une représentation utilisée en mécanique des milieux continus pour représenter l'état de contrainte, c'est-à-dire les forces surfaciques mises en jeu entre les portions déformées du milieu. Les paramètres d'écrouissage k_α décrivent l'évolution du comportement du matériau en fonction du chargement. La fonction de charge f est défini par :

— $f(\sigma_{ij}, k_\alpha) < 0$: comportement élastique.

— $f(\sigma_{ij}, k_\alpha) = 0$: comportement élasto-plastique.

- Si $\frac{\partial f(\sigma_{ij}, \tilde{\rho})}{\partial \sigma_{ij}} \geq 0$: condition de charge (densification).
- Si $\frac{\partial f(\sigma_{ij}, \tilde{\rho})}{\partial \sigma_{ij}} < 0$: condition de décharge (domaine élastique).

— $f(\sigma_{ij}, k_\alpha) > 0$: état de contrainte impossible.

La fonction de charge f est généralement représentée dans le plan des contraintes (P, Q) où P est la contrainte hydrostatique (premier invariant du tenseur des contraintes) :

$$P = \frac{1}{3}(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}) \tag{1.18}$$

et Q la contrainte déviatoire (second invariant du déviateur du tenseur des contraintes) :

$$Q^2 = \frac{1}{2}((\sigma_{11} - \sigma_{22})^2(\sigma_{22} - \sigma_{33})^2(\sigma_{33} - \sigma_{11})^2) + 3(\sigma_{12}^2 + \sigma_{23}^2 + \sigma_{31}^2) \tag{1.19}$$

La fonction de charge reconnaît donc le caractère compressible de la poudre via l'effet de la pression (au contraire d'un critère du type von Mises par exemple). Dans le cadre d'une compression en matrice cylindrique, l'expression de P et Q peut s'écrire :

$$P = \frac{1}{3}(\sigma_z + 2\sigma_r) \tag{1.20}$$

$$Q^2 = (\sigma_z - \sigma_r)^2 \tag{1.21}$$

Deux modèles élasto-plastiques souvent utilisés dans le cadre de la modélisation de la compaction des poudres sont les modèles de Cam-Clay et de Cap-Model.

Le modèle de Cam-Clay définit l'état de contrainte du matériau par une surface de charge unique (quand $f(\sigma_{ij}, k_\alpha) = 0$), représentée par une ellipse passant par l'origine et centrée sur l'axe des abscisses (figure 1.19). La variable d'écrouissage correspond à la densité relative du matériau.

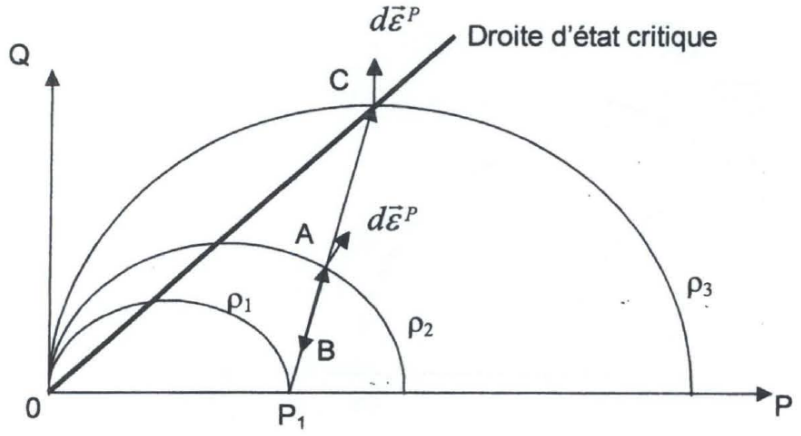

FIGURE 1.19 – Schéma de fonctionnement du modèle de Cam-Clay dans le plan P-Q (Pression-Déviateur) [23].

Sur la figure 1.19, ρ_1 est la densité obtenue pour un état de contrainte purement isostatique avec une pression P_1. Le domaine élastique de ce matériau à cette densité ρ_1 est représenté par l'aire sous la surface de l'ellipse qui passe par le point P_1 (ou surface de charge). A partir du point P_1, une augmentation à la fois de P et de Q, conduit à une densification plastique jusqu'au point A. Le domaine élastique est devenu plus important, avec une plus grande surface de charge (l'ellipse qui passe par le point A). On peut décharger et charger successivement le compact entre les points A et B sans

modifier l'état de densification du compact. Cependant, une charge axiale qui dépasse le point A engendre un comportement plastique et le matériau se densifie à nouveau. Un nouveau domaine élastique isodensité (ρ_2) est créé. La figure nous montre aussi que la densification par pressage est possible jusqu'au point C (correspondant à la densité ρ_3), à l'intersection de la droite d'état critique. La droite d'état critique définit la limite entre le domaine de densification et le domaine de dilatation. Au point C, toute augmentation de Q conduit à une dilatation et à la rupture.

Contrairement au modèle Cam-Clay, l'état du matériau dans les Cap-models est défini par deux surfaces de charges (figure 1.20) :

— une surface f_1 fixe, de plasticité qui représente la dilatance du matériau, et

— une surface f_2 écrouissable dépendant de la densité ou de la déformation volumique.

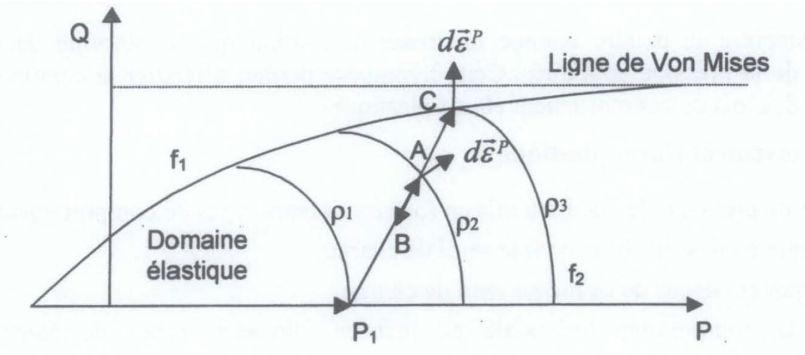

FIGURE 1.20 – Schéma de fonctionnement du Cap Modèle [23].

Similaire au modèle de Cam-Clay, l'évolution de la surface de charge f_2 au cours du pressage permet de prendre en compte l'état de densification du matériau. Au point C de la figure 1.20, la surface de charge définie par la densité ρ_3 rencontre la droite d'état critique. Le vecteur d'écoulement devient alors vertical et la densification n'est plus possible (état critique du matériau). Le vecteur d'écoulement $d\vec{\varepsilon}^P$ est supposé normal à la surface de charge. C'est la loi de normalité. La direction du vecteur d'écoulement indique s'il y a densification (aux points P_1 et A sur la Fig. 1.20), ou si on atteint l'état critique (limite entre densification et dilatation, le point C). Lorsque la densité augmente ($\rho_1 < \rho_2 < \rho_3$), le matériau poreux tend vers un matériau dense incompressible et le modèle tend vers la ligne de von Mises.

Méthode des éléments finis

La méthode des éléments finis (FEM) est un outil numérique qui permet de résoudre les équations aux dérivées partielles de la mécanique des milieux continus. Appliquée à la mise en forme des poudres, telles que la compaction et frittage, cette méthode utilise les modèles élasto-plastiques décrits précédemment comme loi de comportement. Par ailleurs, ces simulations permettent d'incorporer la géométrie ainsi que les conditions aux limites, comme les conditions liées au pressage et le frottement entre la poudre et les équipements (matrice). Dans le cadre des poudres UO_2 et MOX, la FEM a été utilisée afin d'étudier la formation du gradient de densité et des défauts lors des étapes de pastillage à simple et à double-effet (figure 1.21-a) et aussi lors du frittage (en prenant en compte les géométries simples et complexes des outils) [40, 16, 41, 42, 26, 43, 44].

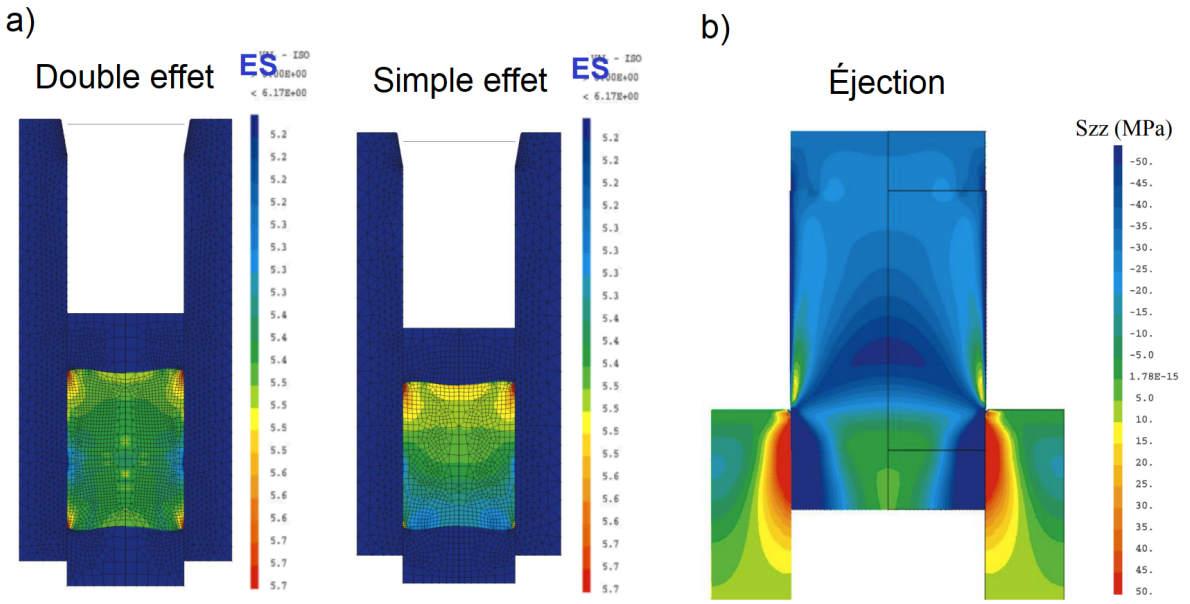

FIGURE 1.21 – MOX : a) Densité relative en fin de compaction à double et à simple effet b) Cartes d'endommagement, obtenues en fin d'éjection [45].

Un logiciel appelé "PreCAD combustibles MOX" dédié à la simulation de la compaction de poudres a été développé conjointement par Orano MELOX et le CEA. Ce logiciel utilise la FEM et il a contribué à la recherche de meilleures conditions de mise en forme des pastilles MOX [46].

La FEM a notamment permis de démontrer que la carte de densité obtenue en fin de compaction (figure 1.21-b) pour un comprimé MOX est liée aux conditions de frottement entre la poudre et la matrice [46, 40]. C'est un résultat classique obtenu par d'autres chercheurs pour des poudres céramiques [47, 48].

L'étude de Yanai valide cette relation entre le gradient de densité et le frottement à partir de la spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie (EDX) [40] (figure 1.22).

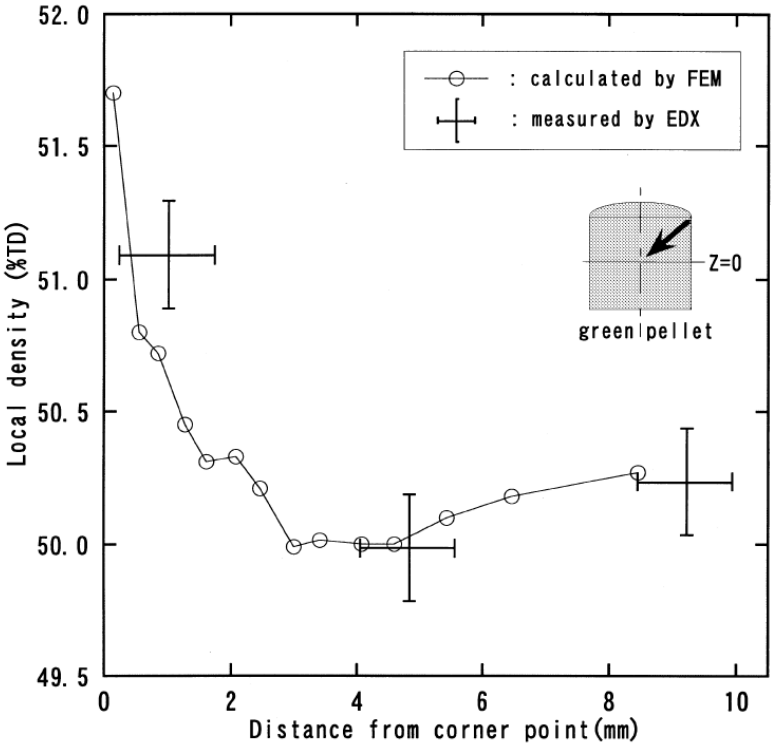

FIGURE 1.22 – Comparaison des densités locales estimées par FEM et EDX [40].

Dans cette étude, la FEM est comparée avec les données expérimentales d'EDX, en utilisant les mêmes conditions de compactage avec une presse à double effet et une poudre UO_2 identiques. Les résultats d'EDX montrent que la densité locale au coin de la pastille est très élevée, tandis que l'intérieur du compact présente une distribution de densité relativement homogène. De plus, la densité locale au centre de la pastille est légèrement plus élevée que celle de la portion intermédiaire.

Il convient de noter que la littérature scientifique manque de données expérimentales sur la carte de densités de pastilles crues de poudres nucléaires, particulièrement en ce qui concerne le combustible MOX. Cependant, des simulations FEM sur la

poudre d'UO_2 sont disponibles. L'étude de Yanai, en validant l'approche FEM avec des données expérimentales obtenues par EDX, confirme la fiabilité de ces simulations. Dans le cadre de ce travail, nous allons donc comparer les cartes de densité générées par nos simulations avec celles obtenues par FEM, en raison de la rareté des données expérimentales.

En offrant des perspectives intéressantes pour optimiser les cycles de fabrication, la FEM s'avère être une méthode très efficace pour simuler et étudier le processus industriel de compaction des poudres nucléaires. La FEM, permet, via un maillage fin de la poudre et des différents éléments piston-matrice, de simuler avec précision la cinématique des outils et l'interaction outils/poudre.

Cependant, les modèles implémentés dans la FEM sont issus de la mécanique des milieux continus et ils ne prennent pas en compte explicitement le caractère particulaire des poudres. Notamment, même si l'effet de la porosité (et son évolution par la densification) est bien pris en compte via l'évolution des surfaces de charge, des phénomènes importants qui caractérisent les milieux granulaires ne peuvent être pris en compte. Par exemple, le réarrangement intergranulaire et les phénomènes locaux de rupture ne sont pas directement décrits [23]. La rupture d'un comprimé est obtenue indirectement via un paramètre d'endommagement [26] et par la surface critique. De plus, chaque nouveau type de poudre a besoin d'être entièrement caractérisé. Il s'agit principalement de la détermination des paramètres des modèles élasto-plastiques. La détermination de ces paramètres nécessite des essais en matrice instrumentée réalisés à différentes pressions de compaction et pour différents états de contrainte pour caractériser correctement les surfaces de charge dans le plan P-Q (Fig. 1.19 et 1.20). Une modification au niveau de l'étape d'élaboration des poudres par exemple peut entraîner un changement de ces paramètres et nécessiter une nouvelle batterie de tests.

La figure 1.23 montre les essais expérimentaux nécessaires pour caractériser les surfaces de charge des modèles élasto-plastiques de Cap Model et de Cam-Clay pour une poudre donnée. Une partie seulement de ces essais peut être réalisée pour conduire à une identification minimale des paramètres des modèles Cap Model et de Cam-Clay.

Mais même dans ce cas, l'effort expérimental est considérable pour chaque poudre. Il est déjà techniquement délicat dans le cadre des poudres uranifères et extrêmement complexe pour les poudres plutonifères.

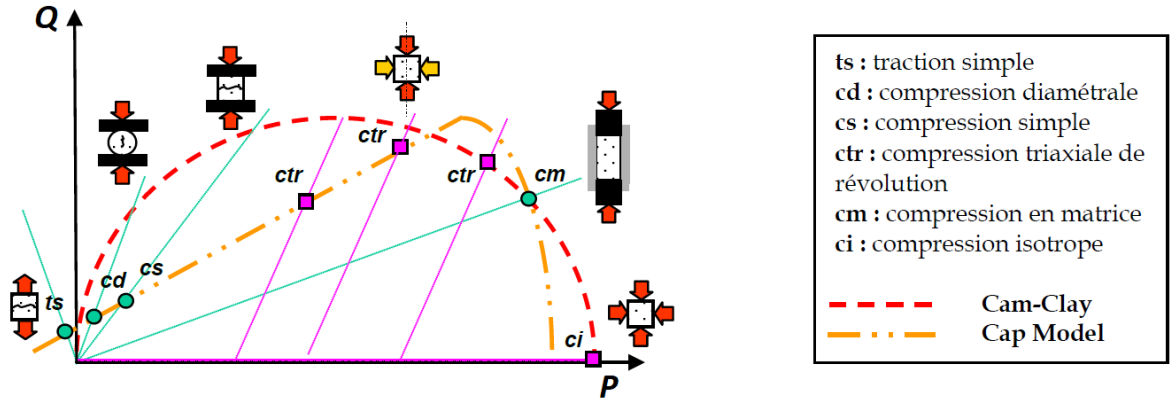

FIGURE 1.23 – Représentation des chemins de chargement de différents essais dans le plan (P,Q) pour identifier les modèles élasto-plastiques de Cap-Model et de Cam-Clay [22] dans le plan $P - Q$.

1.3 Conclusion

Les modèles empiriques, semi-empiriques et continus ont tous joué un rôle important dans l'optimisation de la production des pastilles nucléaires, en permettant une meilleure compréhension des mécanismes de compaction et de frittage. Cependant, chacun de ces modèles présente ses propres limitations.

Les modèles empiriques et semi-empiriques, malgré leur utilité pour la compréhension de la densification et du comportement sous charge, reposent sur un certain nombre d'hypothèses et conservent une part d'empirisme. Le modèle de Janssen [37] a l'intérêt d'introduire deux paramètres adimensionnels importants qu'on retrouvera plus tard dans ce manuscrit : l'indice de fluidité et l'indice de friction. Le premier caractérise les propriétés de réarrangement à l'intérieur de la poudre. Le second caractérise le frottement à l'interface poudre/matrice. Ces deux paramètres joueront un rôle important sur le gradient de densité en fin de compaction.

Les modèles elasto-plastiques, implémentés à l'aide de la Méthode des Eléments Finis (FEM), se révèlent efficaces pour la modélisation de la compaction et du frittage de poudres. Ils se rapprochent au plus près de la géométrie réelle de l'objet à produire et de la cinématique des outils de compaction. Toutefois, ces modèles sont issus de la mécanique des milieux continus et ne prennent pas en compte le caractère particulaire des poudres de manière directe. Chaque nouveau type de poudre a besoin d'être entièrement caractérisé avec des essais en matrice instrumentée pour plusieurs pressions de compaction. Pour les poudres nucléaires, qui sont le sujet de cette thèse, cette caractérisation pose des difficultés expérimentales supplémentaires.

Contrairement aux modèles continus, la **méthode des éléments discrets (DEM)**, est une méthode de simulation alternative, permettant de prendre en compte la microstructure granulaire des poudres de façon directe en modélisant chaque particule individuellement. Dans le cas de la compaction, la DEM permet de modéliser correctement le réarrangement et les déformations plastiques des particules de la poudre. Dans le cas du frittage, les phénomènes de diffusion ainsi que de coalescence des

grains peuvent être bien représentés par la DEM. Bien qu'elle ait un coût de calcul élevé, la DEM, une fois mise en place, est beaucoup moins lourde que la FEM d'un point de vue expérimental lors du changement du type de poudre. Ainsi, la DEM s'avère être une méthode intéressante pour simuler la compaction et le frittage des poudres nucléaires.

Dans le prochain chapitre, nous allons explorer en détail la méthode des éléments discrets (DEM). Nous examinerons ses forces et ses faiblesses, y compris son application dans le contexte des poudres nucléaires à travers une revue bibliographique. Nous discuterons également des lois constitutives spécifiques à la DEM, en particulier celles que nous utiliserons pour simuler la compaction et le frittage des poudres. Cette discussion préparera le terrain pour l'approche que nous adopterons au cours de cette thèse pour simuler ces processus critiques. Ainsi, nous verrons comment la DEM peut être utilisée pour améliorer encore la production des pastilles de combustibles nucléaires.

Chapitre 2

La méthode des éléments discrets

Le chapitre précédent (chapitre 1) a introduit divers modèles pour la simulation de la compaction et du frittage de poudres nucléaires, chacun présentant ses propres avantages et inconvénients. Les modèles empiriques et semi-empiriques, bien qu'adaptés pour anticiper de manière générale l'évolution d'une poudre lors de la compaction sont limités lorsqu'il s'agit de prédire des conditions plus réalistes, telles que la géométrie de la matrice, les mélanges de poudre et la cinématique. Les modèles continus, basés sur des lois physiques et utilisant la FEM, permettent de simuler la cinématique des outils et l'interaction outils/poudre. Cependant, ils ne prennent pas en compte directement le caractère granulaire des poudres et nécessitent la détermination des paramètres des lois de comportement pour chaque nouveau lot de poudre. Dans ce chapitre, nous allons explorer une autre approche qui permettra de lever certaines de ces limitations : **la méthode des éléments discrets (DEM - Discrete Element Method)**.

Les modèles discrets, plus particulièrement ceux fondés sur la DEM, prennent en compte la microstructure granulaire des poudres de façon directe. L'inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle est coûteuse en temps CPU. Cependant, le temps de calcul peut être largement réduit aujourd'hui lorsque des machines performantes et la parallélisation du calcul sont mises en place. Le temps de calcul peut également être réduit en diminuant simplement le nombre de particules simulées, en simulant des

particules plus grandes que la taille des particules réelles (voir section 2.2.3). Ainsi, la DEM s'avère être une méthode intéressante pour simuler le procédé de compactage et de frittage de poudres nucléaires. En particulier, elle doit permettre d'appréhender de manière naturelle les effets de mélange de poudre.

Dans ce chapitre, nous allons décrire de manière générale la DEM en insistant plus particulièrement sur les lois de contact qui ont été adoptées pour traiter la problématique de la compaction des poudres.

2.1 Description de la DEM

2.1.1 Généralités

Une tâche typique des ingénieurs qui traitent des milieux granulaires est d'évaluer comment les structures ou matériaux, composés d'éléments séparés tels que des grains, vont réagir mécaniquement. On peut penser à des situations telles que le blé stocké dans des silos, le gravier étalé sur une surface ou différents types de granulés en interaction mécanique avec leur environnement. Leur comportement est fortement influencé par leur structure interne discrète. Cette structure est dynamique et s'adapte en fonction des contraintes ou déformations imposées. Pour illustrer ce trait caractéristique d'un milieu granulaire, on peut penser au gravier dont la déformation résulte principalement du fait que les particules discrètes (et en première approximation indéformables) qui le constituent roulent et glissent entre elles, engendrant ainsi un réarrangement local de la microstructure. La déformation macroscopique résulte essentiellement de ces réarrangements entre particules.

Comme nous l'avons évoqué précédemment, les techniques de calcul basées sur la mécanique des milieux continus, comme la FEM, ne sont pas capables de représenter directement ces phénomènes (à noter que des travaux ont utilisé la FEM pour représenter individuellement des grains discrets mais ils peuvent être classés dans la famille des techniques discrètes [49, 50]). C'est la raison pour laquelle les chercheurs ont proposé des méthodes de modélisation alternatives et ont commencé à développer diffé-

rentes techniques d'éléments discrets dès les années 1970. La méthode des éléments discrets (DEM) a été initialement développée par Cundall & Strack [51] en 1979 pour traiter des problématiques de mécanique des roches. Elle est très similaire dans son principe à la dynamique moléculaire ou "Molecular Dynamics" (MD), une méthode de simulation datant des années 1950 [52, 53] qui permet d'analyser les mouvements des atomes et des molécules en écrivant explicitement leur équilibre mécanique via la deuxième loi de Newton. La principale différence est que la dynamique moléculaire utilise des potentiels interatomiques pour régir les déplacements des atomes, tandis que la DEM utilise des forces. Par ailleurs, la MD ne traite pas en général les rotations et les interactions tangentielles (frottements) qui sont importantes pour les milieux granulaires. La DEM est devenue un outil de plus en plus utile pour les ingénieurs à partir des années 1990, lorsque les ordinateurs ont atteint un niveau de développement tel que des problèmes réalistes pouvaient déjà être analysés en un temps de calcul raisonnable.

La DEM vise à simuler un milieu granulaire en modélisant chaque particule de ce milieu, généralement sous la forme d'une sphère. Dans le cas de la compaction, la DEM permet de modéliser correctement le réarrangement et si nécessaire les déformations plastiques des grains de poudre. Cependant, la phase des ruptures de particules est peu abordée en raison de la difficulté à reproduire ces mécanismes. La méthode pour simuler la rupture d'une particule (agglomérat ou agrégat) consiste à mailler cette particule avec plusieurs sphères liées par des liens qui peuvent se rompre suivant des lois mécaniques [54, 55, 56]. Une modélisation DEM permettant de simuler la rupture lors de la compaction d'agrégats cohésifs a été proposée par Martin, Bouvard, Delette et al. [57].

Dans le cas du frittage, la DEM a aussi été utilisée pour simuler le réarrangement et la densification par minimisation de l'énergie de surface de poudres céramiques [58, 59] et métalliques [60]. Plus récemment, les phénomènes de coalescence des grains lors du frittage ont aussi été abordées par la DEM [61].

Le schéma numérique de la DEM est relativement simple. Les étapes réalisées à

chaque pas de temps sont décrites ci-dessous et sont détaillées dans le paragraphe 2.1.5.

A chaque pas de temps, une liste des particules en contact est réalisée. Les interactions entre les particules sont régies par des forces de contact qui sont calculées pour chaque contact. La force totale (somme de l'ensemble des forces de contact et éventuellement des forces extérieures) exercée sur chacune des particules est déduite. Ces forces conduisent à un mouvement des particules, qui est dicté par l'intégration de la deuxième loi de Newton ($m\ddot{x} = \sum F$). La deuxième loi de Newton est résolue de manière explicite pour obtenir la nouvelle position et la nouvelle vitesse de chacune des particules à chaque pas de temps.

2.1.2 Smooth et non-smooth

La DEM peut être classée en deux familles : smooth et non-smooth. Dans l'approche smooth, les particules ont la possibilité de s'interpénétrer. Les contacts entre ces particules sont modélisés à l'aide de lois d'interactions considérées comme des ressorts et d'amortisseurs à réponse linéaire ou non. Ces lois d'interactions dépendent essentiellement de la taille du contact. C'est dans cette famille que se retrouve la méthode initiée par Cundall et al. [51] et qui est utilisée dans le cadre de cette thèse.

Dans les approches non-smooth (aussi dénommée dynamique des contacts, développée en particulier par l'université de Montpellier [62]), les grains sont supposés être parfaitement rigides et la réponse élastique du contact entre les particules est négligée. Les interactions sont décrites par des lois de chocs et par la friction de Coulomb. Ces équations s'écrivent comme des relations non-différentiables impliquant des sauts de vitesse et des seuils. D'un point de vue numérique, cela signifie que des pas de temps plus importants (méthode implicite), par rapport à la DEM smooth (méthode explicite), peuvent être utilisés.

2.1.3 Éléments discrets

Les éléments discrets peuvent soit correspondre directement aux unités physiques (par exemple, des roches, des grains de sable, des particules d'une poudre métallique

ou les cristallites d'une poudre céramique), soit à un ensemble d'éléments, comme un agglomérat (composé par des cristallites et agrégats). Les éléments de taille finie ("éléments discrets") doivent pouvoir se déplacer indépendamment des autres. Au cours des déplacements des éléments discrets, des contacts peuvent se former ou disparaître. Les éléments discrets peuvent avoir une grande variété de formes : convexes, concaves, sphériques, elliptiques ou plus récemment des formes géométriques directement obtenues d'observations tomographiques [63] (figure 2.1).

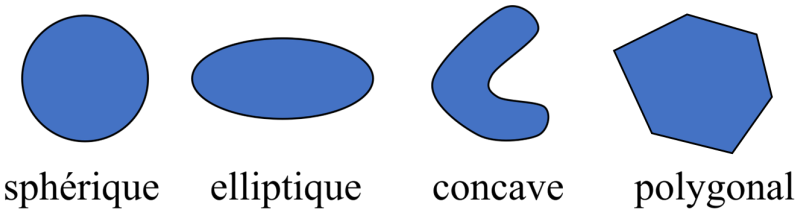

FIGURE 2.1 – Quelques exemples de formes d'éléments discrets en 2D.

Dans la très grande majorité des simulations (et ce sera le cas dans ce travail), les éléments discrets sont des sphères. En effet, elles sont plus faciles à traiter d'un point de vue numérique. La détection d'un contact entre deux sphères est extrêmement simple à coder (c'est la simple comparaison entre deux scalaires). Cette détection est beaucoup plus complexe à mettre en œuvre dès qu'on s'éloigne de la sphère [63, 64]. La taille d'une sphère varie suivant la microstructure du milieu granulaire : elle peut être de quelques mètres, par exemple pour la simulation d'une avalanche, ou de quelques nanomètres pour la simulation des cristallites [22].

2.1.4 Conditions aux limites

Deux types de conditions aux limites sont principalement utilisées pour la simulation avec la DEM (figure 2.2) : les parois rigides et les conditions périodiques.

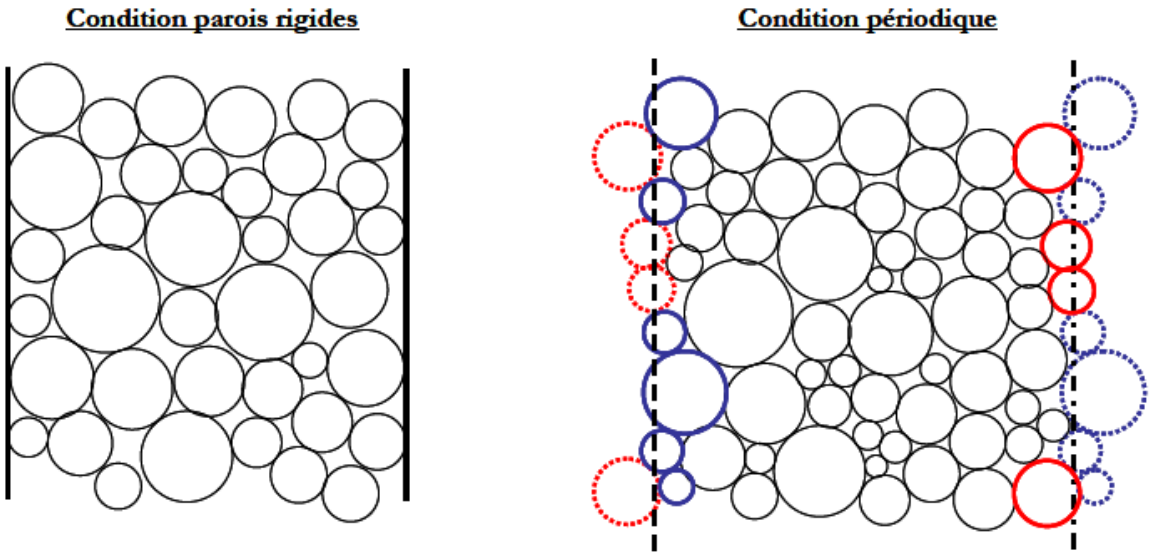

FIGURE 2.2 – Parois rigides et conditions périodiques [22].

Dans le cas de parois rigides, la boite de simulation est limitée par des parois rigides avec des forces d'interaction (typiquement répulsives) entre les particules et les parois. Avec cette approche, les parois peuvent avoir une géométrie très diverse, comme par exemple un cylindre, une sphère, un cône ou encore une géométrie complexe définie par un maillage. Cette méthode est utilisée lorsqu'on veut simuler un volume fini. Dans le cadre de la thèse, nous utilisons cette condition pour pouvoir simuler la totalité du comprimé cru et la géométrie réelle des poinçons et de la matrice.

Dans le cas de conditions périodiques, les particules qui sont proches d'une paroi périodique peuvent être en contact avec les particules de la paroi opposée. Sur la Figure 2.2, les particules en pointillés sont des particules dites 'images' qui sont en contact potentiellement avec les particules de la face opposée. Cela permet de représenter un volume infini (mais avec une périodicité imposée par la dimension de la boite) pris au cœur d'un matériau granulaire avec un nombre raisonnable de particules. Un parallélépipède rectangle est le choix le plus intuitif et le plus courant pour les conditions périodiques. A noter qu'on peut mixer des conditions périodiques suivant un axe et des conditions de parois rigides suivant un autre.

2.1.5 Résolution numérique

Les étapes réalisées à chaque pas de temps pour une simulation DEM sont schématisées sur la figure 2.3.

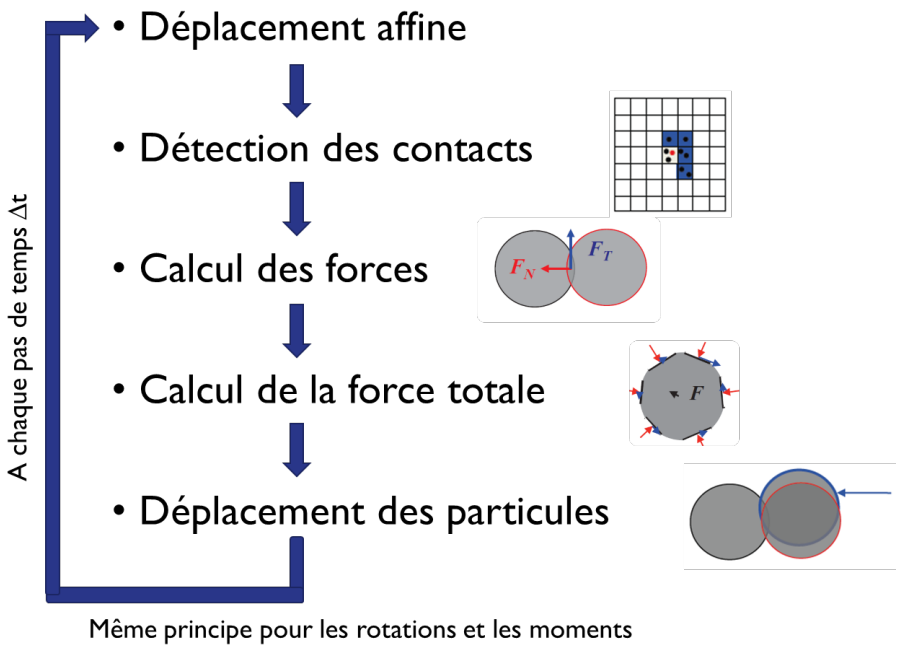

FIGURE 2.3 – Schéma des étapes réalisées à chaque pas de temps pour une simulation DEM.

Déplacement affine

A chaque pas de temps Δt, le centre de la particule i est déplacé par un incrément Δx_i^{aff} ce qui permet de réaliser la déformation macroscopique dictée par le tenseur des vitesses de déformation $\dot{\varepsilon}$:

$$\Delta x_{i,p}^{aff} = \dot{\varepsilon}_{i,pp} x_{i,p} \Delta t \tag{2.1}$$

où p est la $p$ième composante du vecteur x_i. Ce déplacement affine signifie qu'une particule située à une distance x_i donnée de l'origine aura un déplacement proportionnel à cette distance. Ce premier déplacement des particules conduit à un champ de déformation homogène de l'empilement des particules. L'utilisation du déplacement affine, bien que facultative, permet en générale d'atteindre plus rapidement l'équilibre mé-

canique entre les particules.

Détection des contacts

La détection des contacts est une partie fondamentale de la DEM. Pour des sphères, les contacts sont détectés en comparant la distance entre les centres des deux particules avec la somme de leurs rayons. En principe, toutes les paires de sphères doivent être considérées une par une avec, à chaque fois, un calcul de distance pour déterminer l'existence d'un contact. Le nombre de calculs nécessaires est proportionnel au carré du nombre de particules (N), ceci est appelé un problème en N^2 (double boucle). Il existe plusieurs approches pour optimiser ce processus très coûteux en termes de calcul.

La première méthode, appelée liste de Verlet, consiste à créer une liste de contacts potentiels, en augmentant le rayon des particules. Cette liste est plus grande que la liste des contacts réels. La figure 2.4-a montre par exemple que la liste des contacts réels ne contient que le contact (1-3), mais que la liste des contacts potentiels contient les contacts (1-2, 1-3, 1-4).

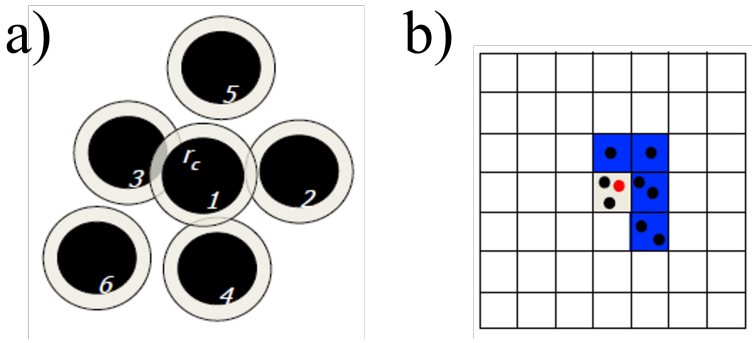

FIGURE 2.4 – a) Schéma de particules (noires) dont le rayon est augmenté pour déterminer une liste de contacts potentiels (liste de Verlet). b) Méthode Linked cell pour ne visiter que la cellule de la particule à considérer (particule rouge) et les cellules adjacentes (cellules bleues).

L'avantage d'une telle liste c'est qu'elle n'a pas besoin d'être réactualisée à chaque pas de temps comme la liste des contacts réels. Elle doit être réactualisée lorsque deux particules qui ne sont pas dans la liste des contacts potentiels peuvent entrer en contact (typiquement les particules (1-5)). Le rayon de coupure r_c doit être optimisé

entre une grande liste de contacts potentiels (qui coûtera cher ensuite pour détecter les contacts réels) et une petite liste (qu'il faudrait réactualiser très souvent).

Cependant, même s'il est opéré moins souvent, le nombre de calculs de distance est toujours proportionnel au carré du nombre de particules. Une stratégie complémentaire qui est souvent utilisée avec la liste de Verlet consiste à utiliser la méthode "Linked cell" (figure 2.4-b). Lorsque l'interaction entre les particules est à petite distance, il n'est pas nécessaire de considérer l'interaction avec les particules éloignées. La méthode "Linked cell" permet d'éliminer les calculs inutiles en divisant le système en régions plus petites, de sorte que les particules d'une région ne peuvent interagir qu'avec les particules de la même région ou des régions voisines. En utilisant cette liste, le problème est en $N\log(N)$ [65] (et non plus en N^2). La taille des cellules est dictée par la taille de la plus grande particule de l'empilement. Il est important d'effectuer ces deux optimisations lorsqu'on veut simuler de grands systèmes.

Une fois implémentées, ces deux méthodes permettent typiquement de réduire le temps CPU dédié à la recherche de contacts à quelques % alors que si elle est effectuée de manière brutale, la recherche de contacts peut représenter la majorité du temps CPU. Toutefois la méthode "Linked cell" devient moins efficace lorsqu'il existe une grande distribution de taille des particules. Dans ce cas, d'autres stratégies doivent être implémentées [66].

Calcul des forces

Les forces et les moments sont transmis lorsque deux sphères sont en contact. L'intensité et le signe (répulsif ou attractif) de ces forces dépendent des lois de contact utilisées (voir 2.2), de l'indentation et de la vitesse d'indentation entre les particules (figure 2.5). Ces forces sont décomposées en deux composantes dans le repère local du contact : une composante normale (N) et une composante tangentielle (T).

En ce qui concerne le moment, il est porté par le produit vectoriel de la force tangentielle T et du vecteur normal au contact.

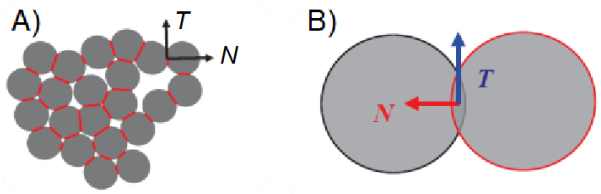

FIGURE 2.5 – a) Exemple d'un milieu discret simulé par la DEM. b) Indentation entre deux particules avec les composantes normale (N) et tangente (T) de la force.

Calcul de la force totale

Chaque particule peut avoir plusieurs contacts. La force totale exercée sur chaque particule est ensuite calculée :

$$F_{totale} = \sum f_{i,contact} \tag{2.2}$$

Un champ de force extérieur, tel que la gravité ou un champ électrique, peut s'ajouter à l'équation (2.2).

Déplacement des particules

Ces forces conduisent à un mouvement des particules $\ddot{x}_i$, qui est dicté par l'intégration de la deuxième loi de Newton à l'aide d'un algorithme explicite de type velocity Verlet [67].

$$m_i \ddot{x}_i = F_{totale} \tag{2.3}$$

où m_i est la masse de la particule. D'autres stratégies d'intégration peuvent être utilisées (Verlet, leap-frog, ...) [68, 69]. La deuxième loi de Newton est résolue de manière explicite pour obtenir la nouvelle position et la nouvelle vitesse de chacune des particules à chaque pas de temps. Une procédure similaire est réalisée pour les rotations et les moments.

2.1.6 Pas de temps

La DEM est une méthode explicite, le pas de temps doit donc être choisi pour assurer la convergence du schéma d'intégration. Sa valeur maximale peut être calculée

par :

$$\Delta t \approx f \sqrt{\frac{m_i}{k_N}} \tag{2.4}$$

où m_i est la masse la plus petite des deux particules en contact et k_N la rigidité ("stiffness") du contact. f est un paramètre de sécurité qui prend en compte le fait que chaque particule a plusieurs contacts (Eq. (2.4) est obtenue en considérant les oscillations d'un seul contact). Il est typiquement compris entre 0.1 et 0.01. Cette équation est appliquée pour chaque contact afin d'obtenir le pas de temps maximal qui permet d'assurer la stabilité du calcul. Appliquée à des valeurs de rigidités réelles, l'équation (2.4) conduit à un pas de temps très petit et donc à des simulations beaucoup trop longues.

Deux stratégies sont possibles pour augmenter Δt : diminuer k_N ou augmenter m_i. La diminution de k_N est typiquement utilisée lorsqu'on s'intéresse à la dynamique de l'empilement. Dans ce cas, la déformation au contact des particules (ou plus exactement l'indentation) est surestimée et les forces d'interaction ne sont pas correctes.

L'autre stratégie consiste à augmenter artificiellement la masse m_i des particules. Ceci conduit à diminuer les vitesses et les accélérations de plusieurs ordres de grandeur mais sans altérer les forces et les déplacements [70, 71]. Pour que cette renormalisation soit correcte, les effets inertiels doivent être négligeables. Il s'agit donc de vérifier que résoudre l'équation (2.3) est équivalent du point de vue numérique à résoudre :

$$\beta m_i \ddot{x_i} = F_{totale} \longrightarrow 0 \tag{2.5}$$

où β est le facteur de renormalisation. Si c'est le cas, l'empilement est alors considéré en équilibre quasi-statique. C'est typiquement le cas pour des conditions où les accélérations et les vitesses sont faibles.

2.1.7 Nombre d'inertie

Le nombre d'inertie est une grandeur adimensionnelle utilisée pour vérifier que les effets inertiels sont négligeables. Un nombre d'inertie inférieur ou égal à 10^{-3} [72]

permet d'assurer cette condition. Il est défini par :

$$I = \dot{\varepsilon} \sqrt{\frac{m}{Pd}} \tag{2.6}$$

où $\dot{\varepsilon}$ est la vitesse de déformation caractéristique imposée au système, P la pression macroscopique exercée sur l'empilement, m la masse et d le diamètre moyen des particules. I mesure le rapport des forces d'inertie sur les forces imposées. La condition de quasi-staticité est satisfaite pour la compaction en matrice (pour les vitesses de compaction typiquement utilisées pour le processus) et pour le frittage.

2.1.8 Contrainte macroscopique

A la fin de chaque pas de temps la contrainte macroscopique peut être calculée à l'aide de la formule de Love [73, 74] :

$$\sigma_{xy} = \frac{1}{V} \sum_{\text{contacts}} F_{totale} l_{ij} \tag{2.7}$$

L'équation fait la somme sur tous les contacts. V est le volume total de la boîte de simulation, F_{totale} est la force totale d'un contact, et l_{ij} est le vecteur qui relie les centres des deux particules i et j d'un contact.

2.1.9 Cinématique du contact

La cinématique du contact entre deux particules introduit les grandeurs utiles à la résolution du mouvement des particules. Considérons deux particules en contact i et j, comme illustré à la figure 2.6.

Chaque particule est caractérisée par son vecteur position $\vec{r}$, sa vitesse de translation $\vec{v}$ et sa vitesse angulaire $\vec{\omega}$. Le vecteur position $\vec{r}$ indique la position du centre de la particule dans l'espace. La vitesse de translation $\vec{v}$ représente la vitesse à laquelle le centre de la particule se déplace dans l'espace, tandis que la vitesse angulaire $\vec{\omega}$ est la vitesse à laquelle la particule tourne autour de son centre.

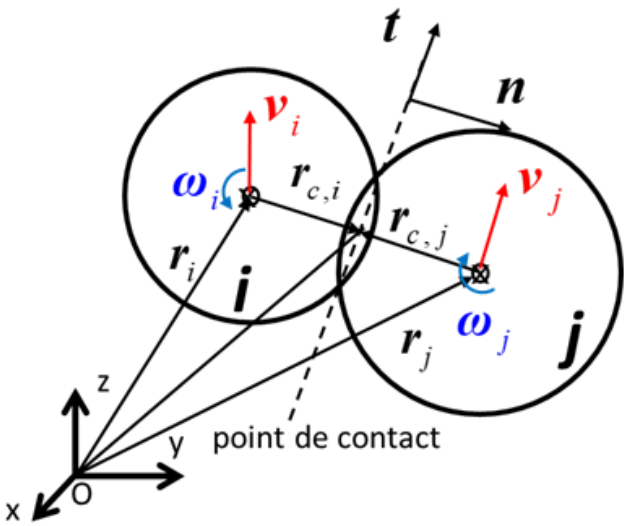

FIGURE 2.6 – Schéma représentant deux particules i et j en contact. Les vecteurs $\vec{v}$ et $\vec{\omega}$ représentent respectivement la vitesse de translation et la vitesse angulaire des particules.

Au point de contact entre les deux particules, nous définissons un vecteur normal unitaire $\vec{n}$, qui pointe de la particule i vers la particule j :

$$\vec{n} = \frac{\vec{r_j} - \vec{r_i}}{|\vec{r_j} - \vec{r_i}|} \tag{2.8}$$

et un vecteur tangentiel unitaire $\vec{t}$, perpendiculaire à $\vec{n}$, qui sera calculé ultérieurement.

Le vecteur de position $\vec{r_c}$ indique la position du point de contact par rapport au centre de la particule. La vitesse de la particule au point de contact, $\vec{v_c}$, peut être calculée en utilisant la vitesse de translation et la vitesse angulaire de la particule :

$$\begin{aligned} \vec{v}_{c,i} &= \vec{v}_i + \vec{\omega}_i \times \vec{r}_{c,i} \\ \vec{v}_{c,j} &= \vec{v}_j + \vec{\omega}_j \times \vec{r}_{c,j} \end{aligned} \tag{2.9}$$

Si la rotation n'est pas prise en compte, l'équation (2.9) se simplifie comme suit :

$$\begin{aligned} \vec{v}_{c,i} &= \vec{v}_i \\ \vec{v}_{c,j} &= \vec{v}_j \end{aligned} \tag{2.10}$$

La vitesse relative des particules au point de contact, $\vec{v}_{c,rel}$, peut être obtenue en comparant les vitesses des deux particules au point de contact :

$$\vec{v}_{c,rel} = \vec{v}_{c,j} - \vec{v}_{c,i} \tag{2.11}$$

Le vecteur tangentiel unitaire $\vec{t}$ peut enfin être calculé par la relation :

$$\vec{t} = \frac{\vec{v}_{c,rel} - (\vec{v}_{c,rel} \cdot \vec{n})\vec{n}}{|\vec{v}_{c,rel} - (\vec{v}_{c,rel} \cdot \vec{n})\vec{n}|} \tag{2.12}$$

Nous pouvons également déterminer l'indentation normale δ_n en utilisant l'équation suivante :

$$\delta_n = |r_j - r_i| - (R_i + R_j) \tag{2.13}$$

où R représente le rayon de la particule. Si un contact existe, alors $\delta_n < 0$. Dans les calculs des forces, nous utilisons généralement la valeur absolue de δ_n, soit $|\delta_n|$. Le déplacement tangentiel accumulé, noté $\vec{\delta}_t$, peut être calculé comme suit :

$$\vec{\delta}_t = \int_{t_c}^{t} \vec{v}_{rel,t} dt \tag{2.14}$$

où $v_{rel,t}$ est la composante tangentielle de $\vec{v}_{c,rel}$ et t_c le temps initial du contact. Notez que t dans l'intégrale se réfère au temps, et non au vecteur tangentiel $\vec{t}$. $\vec{v}_{rel,t}$ est donnée par :

$$\vec{v}_{rel,t} = \vec{v}_{c,rel} \cdot \vec{t} \tag{2.15}$$

Enfin, le rayon équivalent R^* peut être calculé par :

$$R^* = \left(\frac{1}{R_i} + \frac{1}{R_j} \right)^{-1} \tag{2.16}$$

Dans les sections suivantes, nous utiliserons ces variables cinématiques pour décrire les lois de contact entre les particules.

2.2 Lois de contact

Comme nous l'avons évoqué précédemment, les lois de contact jouent un rôle essentiel dans le calcul des forces. Ces lois définissent l'interaction entre les particules et peuvent caractériser divers comportements. Par exemple, elles peuvent décrire un comportement élastique [75, 76], plastique [77, 78, 79], avec liaisons ("bonds" en anglais) [80, 55] et peuvent encore décrire le frittage [58, 81, 82].

Dans les sections suivantes, nous allons explorer en détail les différents types de lois de contact, en mettant l'accent sur les plus connues et celles qui sont particulièrement pertinentes pour cette thèse. La figure ci-dessous, qui représente trois particules en contact, servira de référence pour illustrer ces différentes lois.

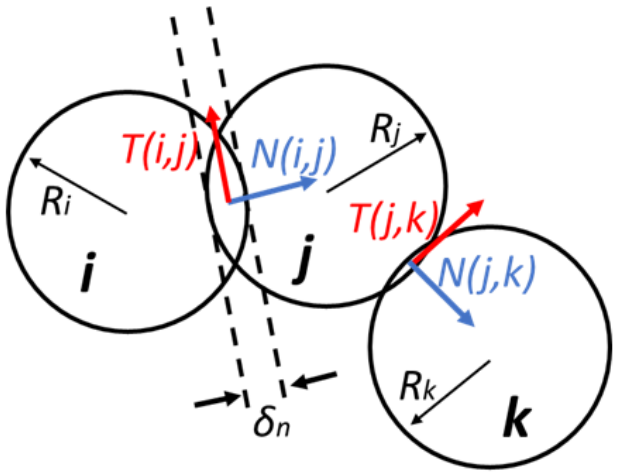

FIGURE 2.7 – Schéma représentant trois particules i, j et k en contact. N étant la force normale et T la force tangentielle.

2.2.1 Comportement élastique

La première catégorie de loi de contact que nous examinons est l'élasticité. Un des modèles les plus connus et les plus utilisés pour décrire ce type de comportement est le modèle de Hertz [83], développé au 19ème siècle. Cette loi, exprimée par les équations suivantes, permet de calculer la force normale (N dans la figure 2.7) entre deux particules (i et j) de rayons R_i et R_j et de propriétés élastiques (E_i, ν_i) et $\left(E_j, \nu_j\right)$

respectivement :

$$N^{Hertz} = \frac{4}{3} E^* R^{*1/2} \delta_n^{3/2} \tag{2.17}$$

$$E^* = \left(\frac{1 - \nu_i^2}{E_i} + \frac{1 - \nu_j^2}{E_j} \right)^{-1} \tag{2.18}$$

où E^* est le module d'Young équivalent. L'équation (2.17) montre que la loi de Hertz est une loi non-linéaire. Elle peut être étendue pour inclure les phénomènes d'adhésion entre les particules. L'adhésion introduit une force de traction nécessaire pour séparer les particules. Ce phénomène est le résultat des forces d'attraction et de répulsion en compétition entre les atomes ou les molécules individuels à la surface des particules. Des modèles tels que DMT [84] (Derjaguin-Muller-Toporov) et JKR [85] (Jonhson-Kendall-Roberts) sont des exemples classiques de cette approche [86]. Selon Maugis [87], le modèle DMT est adapté pour des particules de petite taille avec un matériau rigide et une énergie de surface modérée, tandis que le modèle JKR est plus adapté pour des matériaux mous avec une grande énergie de surface et des particules plus grandes. Les modèles DMT et JKR s'écrivent :

$$N^{\mathrm{JKR}} = \frac{4}{3} E^* R^{*1/2} \delta_n^{3/2} - 2\sqrt{2\pi w E^* a^3} \tag{2.19}$$

$$N^{\mathrm{DMT}} = \frac{4}{3} E^* R^{*1/2} \delta_n^{3/2} - 2\pi w R^* \tag{2.20}$$

où w représente le travail d'adhésion et a le rayon de contact. w est directement lié à l'énergie de surface γ (J.m^{-2}) du matériau :

$$w = 2\gamma \tag{2.21}$$

Pour un contact hertzien, le rayon de contact a est donné par :

$$a^2 = R^* \delta_n \tag{2.22}$$

Le frottement peut également être intégré dans ce modèle. Les détails du calcul de la force tangentielle sont développés dans la section 2.2.4.

2.2.2 Comportement plastique

Il est également possible de modéliser un comportement de type élastoplastique au niveau du contact entre deux particules i et j. Le régime plastique est défini par :

$$\sigma = \sigma_i \varepsilon^{1/m} \tag{2.23}$$

où σ_i est un paramètre plastique de la particule i, m est le coefficient d'écrouissage et σ et ε sont respectivement la contrainte et la déformation. L'équation (2.23) exprime la contrainte axiale σ en fonction de la déformation axiale imposée ε. L'expression de la force normale adoptée ici est issue des travaux de Storakers et al. [88] :

$$N^{plast} = 2^{1-\frac{1}{2m}} 3^{1-\frac{1}{m}} \pi \sigma^* c(m)^{2+\frac{1}{m}} R^{*1-\frac{1}{2m}} \delta_n^{1+\frac{1}{2m}} \tag{2.24}$$

où σ^* est le paramètre plastique équivalent entre les deux particules i et j :

$$\sigma^* = \left(\frac{1}{\sigma_i} + \frac{1}{\sigma_j} \right)^{-1} \tag{2.25}$$

et $c(m)$ une fonction du coefficient d'écrouissage [88] :

$$c(m)^2 = 1.43 \exp(m) \tag{2.26}$$

Pour un matériau parfaitement plastique ($m \to \infty$), l'équation (2.24) se simplifie :

$$N^{plast} = 6\pi \sigma^* c(m)^2 R^* \delta_n \tag{2.27}$$

Dans le modèle de Storakers et al. [88], les deux particules doivent avoir le même coefficient d'écrouissage m (mais pas nécessairement le même paramètre plastique σ_i). Le rayon de contact en plasticité diffère du rayon de contact en élasticité et est

déterminé par :

$$a^2 = 2c\,(m)^2\,R^*\delta_n \tag{2.28}$$

Dans ce modèle élastoplastique, la transition de l'élasticité à la plasticité est déterminée par la condition suivante :

$$N^{plast} \leq N^{Hertz} \tag{2.29}$$

Bien que ce critère assure une transition en force continue, il peut conduire à une surestimation de l'indentation δ_n lors de la transition élastoplastique [89]. De plus, l'utilisation des équations (2.22) et (2.28) entraîne un saut discontinu du rayon de contact.

Le modèle de Storåkers et al. présente certaines limites, notamment en ce qui concerne la densité relative. En effet, ce modèle est fondé sur l'hypothèse que les contacts entre les particules sont indépendants, c'est-à-dire que chaque contact agit comme s'il était isolé. Cette hypothèse est valide pour des densités inférieures à 0,8. Cependant, au-delà de cette densité, l'interaction mutuelle des contacts ne peut pas être ignorée [90].

Il existe des modèles alternatifs comme celui de Garner et al.[91] qui propose une loi de contact adaptée pour des densités élevées, mais qui dépend toujours de l'indentation, sans prendre en compte la densité locale. À l'inverse, le modèle de Harthong et al.[79], introduit un paramètre local de densité relative, ce qui lui permet de simuler de manière plus réaliste la compaction jusqu'à une densité relative d'environ 0,95[79]. Harthong et al. utilisent une méthode appelée MDEM (Meshed Distinct Element Method) pour dériver cette nouvelle loi de contact pour la DEM. En utilisant la méthode des éléments finis pour la compaction de particules discrètes maillées, la MDEM a l'avantage de décrire avec précision la déformation des particules et de fournir des résultats précis pour des densités élevées. La figure 2.8 compare le modèle de Storåkers (qui ne dépend que de l'indentation δ_n), le modèle de Harthong et la MDEM, tous appliqués à la compaction hydrostatique de 15 particules sans frottement. Le paramètre

F/K_2R^2 représente la contrainte macroscopique. On observe une concordance entre la MDEM, le modèle de Harthong et le modèle de Storåkers lorsque la densité relative est inférieure à 0,85. Pour des densités plus élevées, la loi linéaire de Storåkers sous estime clairement la contrainte macroscopique.

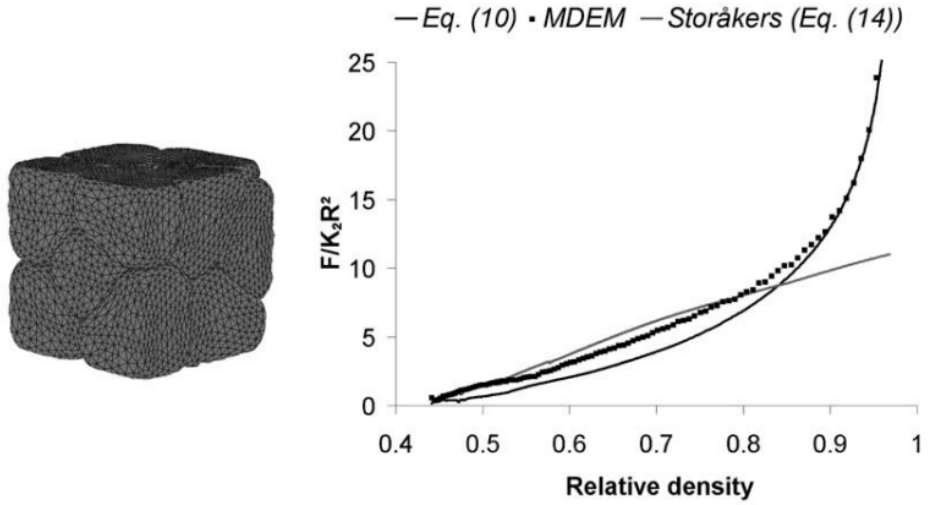

FIGURE 2.8 – Comparaison entre le modèle de Storåkers, le modèle de Harthong (noté "Eq. (10)" dans la figure) et la MDEM pour la compaction hydrostatique de 15 particules [79].

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi d'adapter le modèle de Harthong pour décrire le comportement plastique entre les agglomérats de poudres céramiques. Nous avons opté pour ce modèle car il n'est pas limité en densité relative, ce qui le rend plus réaliste par rapport aux autres modèles pour décrire la totalité du processus de compaction depuis les faibles densités (réarrangement des particules) jusqu'aux densités élevées (plastification des agglomérats). Des détails supplémentaires sur cette adaptation sont fournis dans la section suivante.

2.2.3 Plasticité à haute densité

Échelle des agglomérats

Considérons un compact cylindrique de 5 mm de rayon R_{cyl} et de 13 mm de hauteur h, qui correspond approximativement à la taille du compact après la compaction.

En supposant que le rayon des particules soit constant, le nombre de particules N_{part} nécessaire pour représenter le compact entier est déterminé par :

$$D = \frac{V_{part}}{V_{cyl}} = \frac{N_{part}\frac{4}{3}\pi R_{part}^3}{\pi R_{cyl}^2 h} \quad \therefore \quad N_{part} = \frac{3DR_{cyl}^2 h}{4R_{part}^3} \tag{2.30}$$

Ici, D représente la densité relative, V_{part} est la somme des volumes des particules et V_{cyl} est le volume du compact cylindrique avec les dimensions h et R_{cyl}. Si nous prenons en compte que le R_{part} des cristallites, des agrégats et des agglomérats est respectivement de 0.05, 0.5 et 50 microns (Fig. 1.4), alors N_{part} est de l'ordre de 10^{14}, 10^{12} et 10^6 respectivement. Il devient clair qu'il est numériquement impossible de simuler les particules à l'échelle des cristallites et des agrégats, car cela nécessiterait un nombre de particules incompatible avec des temps de calcul raisonnables. Une telle simulation prendrait des mois, voire des années, pour réaliser simplement les premiers pourcents de déformation en matrice, sans même prendre en compte la mémoire RAM requise, qui serait irréaliste.

Par conséquent, nous avons choisi de ne représenter que les agglomérats. En effet, en utilisant uniquement des agglomérats, la simulation complète du compact peut être réalisée en quelques heures. De plus, nous observons également que si nous prenons une taille légèrement supérieure à la taille typique des agglomérats, par exemple 60 microns au lieu de 50 microns, nous réduisons le nombre de particules par un facteur de 3 (voir le dénominateur de l'équation (2.30)), réduisant d'avantage le temps de calcul.

Ainsi, dans cette approche, souvent appelée "coarse grain" en anglais [92], un agglomérat est considéré pour la DEM comme une seule particule poreuse. Cette approche permet de bien représenter la déformation et le réarrangement des particules, qui correspondent aux deux premières étapes de la compression d'une poudre granulée décrites par Fourcade [15]. Cependant, elle ne peut pas représenter explicitement la rupture des agglomérats, qui serait nécessaire pour simuler la troisième étape de densification microscopique décrite par Fourcade. De plus, dans cette approche,

nous ne prenons pas en compte les mouvements de rotation des agglomérats. En effet, comme le montre la figure 2.8, les agglomérats subissent une plastification importante et les surfaces de contact entre agglomérats sont assez grandes pour considérer que les moments résistants interdisent la rotation. La figure 2.9 résume cette approche.

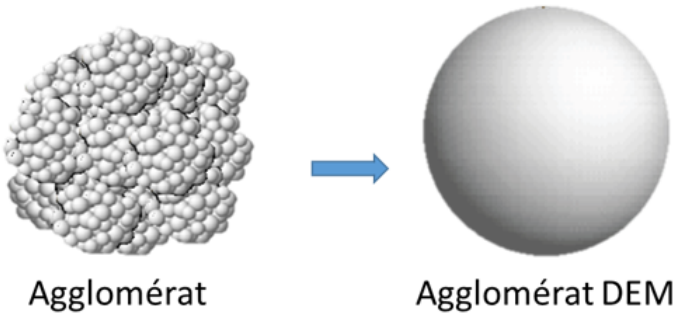

FIGURE 2.9 – Un agglomérat est modélisé comme une seule sphère poreuse DEM.

Description du modèle

Dans le modèle élastoplastique que nous proposons pour la thèse (et adapté de celui proposé par Pizette et al. [93]), un contact peut subir une déformation plastique, une décharge élastique, et une rupture. Le modèle doit pouvoir aussi prendre en compte l'histoire plastique (et la rupture) du contact. Comme le modèle plastique précédent (section 2.2.2), ce modèle est appliqué aux particules dont le comportement plastique est défini par l'équation (2.23).

La figure 2.10 illustre ce modèle élastoplastique conçu pour représenter le contact entre deux agglomérats.

La figure montre l'évolution typique d'un contact, représenté par un point rouge. Initialement, au point 1, les deux agglomérats ne sont pas en contact. Lorsque les deux particules entrent en contact et que l'indentation augmente (point 2), une déformation plastique est engendrée. Entre les points 2 et 3, le contact se décharge élastiquement. L'indentation diminue. Lorsque l'indentation augmente après une décharge élastique, la recharge sera d'abord élastique réversible jusqu'au point 4.

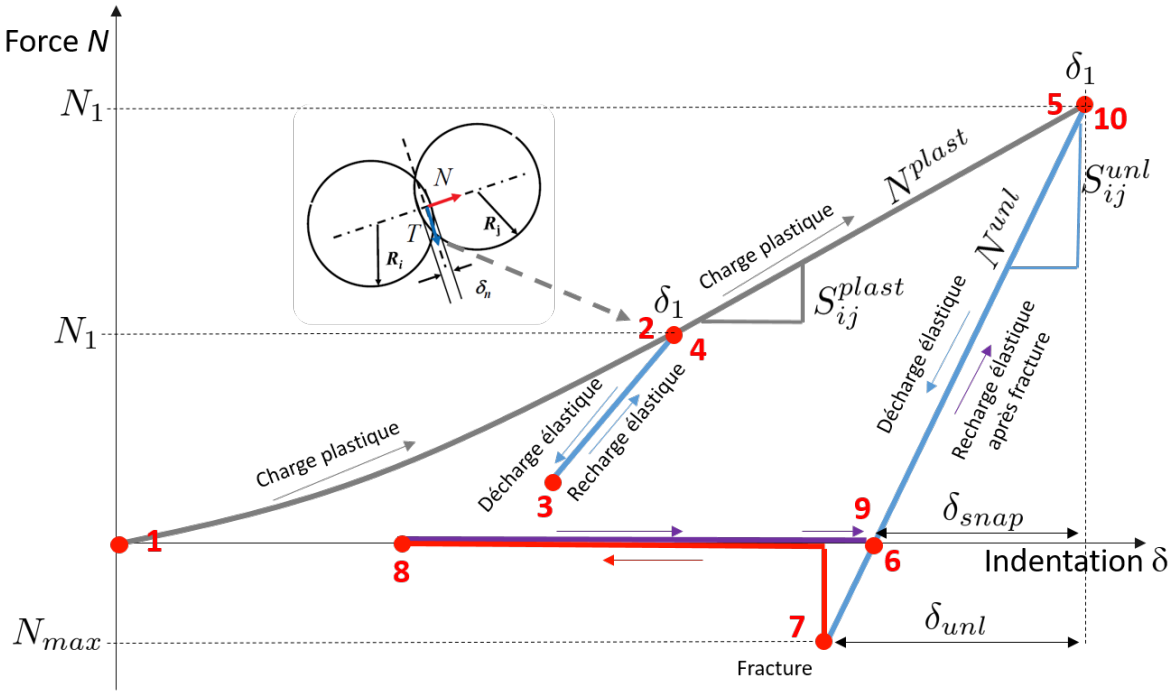

FIGURE 2.10 – La force normale de contact N entre deux agglomérats en fonction de l'indentation δ. Les différentes phases d'un contact sont la plasticité (1-2, 2-5), l'élasticité réversible suite à une décharge (2-3, 3-4, 5-6-7), la rupture (7-8-9) ou la recréation d'un contact rompu (9-10). La rupture intervient à une force critique en traction N_{max}. La raideur du contact en décharge (la pente de la courbe bleue) augmente au fur et à mesure que l'indentation plastique augmente. Les forces sont positives lorsqu'elles sont répulsives.

Lorsque l'indentation atteint δ_1 (l'indentation plastique maximum atteinte lors de la déformation plastique précédente), le contact se plastifie de nouveau jusqu'au point 5. Le contact peut de nouveau se décharger élastiquement. Le modèle considère que la déformation plastique imposée au contact a créé une liaison adhésive. Cette liaison peut résister à une force de traction avant de rompre au point 7. En ce point, la force devient nulle et les deux particules plastifiées peuvent continuer à se séparer (point 8) Si les particules se rapprochent à nouveau, la force reste nulle jusqu'au point 9. En ce point, le contact peut se recharger élastiquement jusqu'au point 10 où il se déformera à nouveau plastiquement.

La déformation plastique (représentée par les courbes grises dans la figure 2.10), est adaptée du modèle à haute densité proposé par Harthong [79]. Aucun domaine élastique n'est considéré pendant la déformation plastique, en raison de la nature fragile des agglomérats. La force normale répulsive N^{plast} pour deux particules, i et j, au

temps $t + \mathrm{d}t$ est :

$$N^{plast}(t + \mathrm{d}t) = N^{plast}(t) + 2S_{ij}^{plast} d\delta_n \tag{2.31}$$

où S_{ij}^{plast} est la raideur du contact, qui est la somme de deux termes, S_1 et S_2 :

$$S_{ij}^{plast} = 2\sigma^* R^* (S_1 + S_2) \tag{2.32}$$

Les paramètres S_1 et S_2 ont été formulés et validés par la MDEM.

Le coefficient d'écrouissage m et le paramètre plastique σ^* sont des paramètres matériau qui contrôlent l'allure de la courbe de déformation plastique. Le coefficient d'écrouissage modifie la courbure de la courbe de déformation plastique et le paramètre plastique en modifie l'amplitude.

Lorsque l'on considère un contact entre deux matériaux différents avec des paramètres plastiques σ_i et σ_j, σ^* s'écrit :

$$\sigma^* = 2^{\frac{1}{m}} (\sigma_i^{-m} + \sigma_j^{-m})^{-\frac{1}{m}} \tag{2.33}$$

Le terme S_1 dans l'équation (2.32) est conservé de [79], et dépend de l'indentation δ_n au contact :

$$S_1 = \alpha_1(m) \exp\left(\beta_1(m) \frac{\delta_n}{2R^*}\right) + \gamma_1(m) \exp\left(\delta_1 \frac{-\delta_n}{2R^*}\right) \tag{2.34}$$

où α_1, β_1, γ_1 sont des fonctions de m et δ_1 est une constante [79]. Le terme S_2 dépend de la densité relative locale, et est adapté pour prendre en compte la porosité des agglomérats :

$$S_2 = \alpha_2(m) \frac{\left[\max\left(0, \tilde{\rho}_{i,j} - \tilde{\rho}_{0i,j}\right)\right]^2}{(1 - \tilde{\rho}_{i,j})^{\beta_2}} \tag{2.35}$$

où $\alpha_2(m)$ est une fonction du coefficient d'écrouissage m [79], β_2 est un paramètre qui dépend de la porosité des agglomérats, $\tilde{\rho}_{i,j}$ est la densité relative locale autour des particules, et $\tilde{\rho}_{0i,j}$ est la densité relative locale initiale (avant l'indentation plastique, voir figure 2.11).

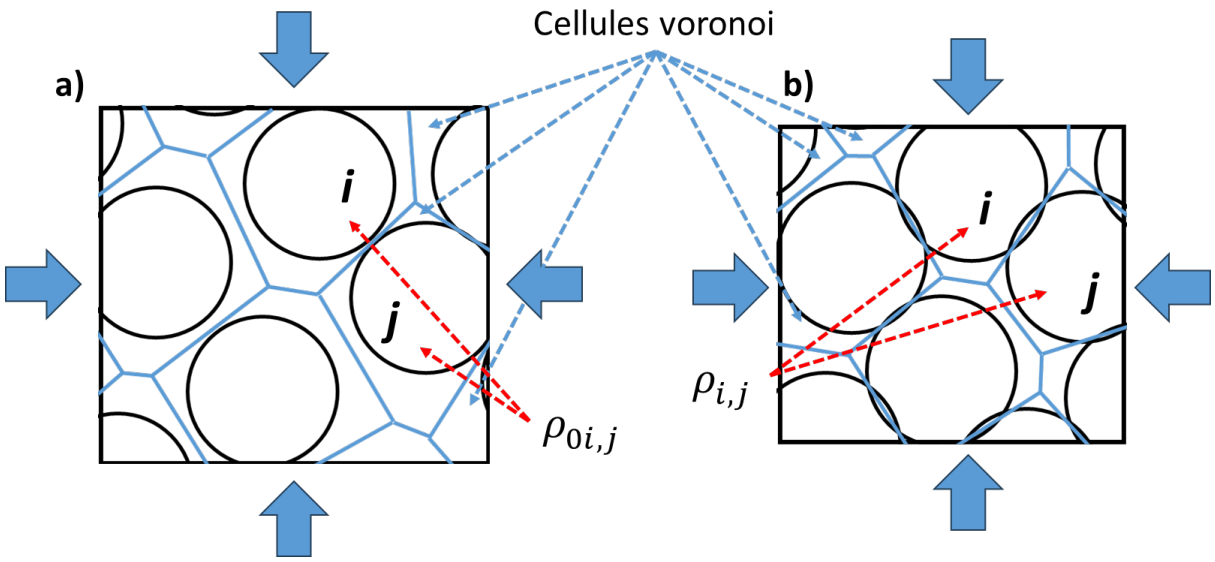

FIGURE 2.11 – Illustration 2D d'un empilement de particules montrant les cellules de Voronoï et la densité locale. a) Avant compaction isostatique. b) Après compaction isostatique.

$\tilde{\rho}_{i,j}$ et $\tilde{\rho}_{0i,j}$ sont déterminés par le produit : $\tilde{\rho}_{DEM}\tilde{\rho}_{aggl}$. Dans cette expression, $\tilde{\rho}_{DEM}$ représente la densité relative en supposant des particules denses (sans porosité) et $\tilde{\rho}_{aggl}$ est la densité relative de l'agglomérat (qui prend en compte la porosité des particules). Une valeur de $\tilde{\rho}_{aggl} = 1$ indique l'absence de porosité au sein des particules DEM. $\tilde{\rho}_{DEM}$ est calculé en utilisant les tessellations de Voronoï avec le package Voro++ [94]. Notez que lorsque $\tilde{\rho}_{i,j}$ tend vers un, S_2 tend vers l'infini pour modéliser l'incompressibilité de la poudre en fin de compaction. L'équation (2.35) permet de prendre en compte l'écrouissage du matériau particulaire dû à la densification locale. Cela contraste avec les modèles DEM standard qui ne considèrent que l'indentation mutuelle entre les particules (modèle de pairs).

La décharge élastique est exprimée en considérant une raideur élastique S_{ij}^{unl} :

$$N^{unl} = N_1 - S_{ij}^{unl}\delta_{unl} \tag{2.36}$$

où N_1 est la force à l'indentation plastique maximale (δ_1) et δ_{unl} est la quantité d'indentation récupérée élastiquement ($\delta_{unl} = \delta_1 - \delta$, figure 2.10). La raideur élastique est modélisée en considérant qu'une liaison a été formée entre les deux particules pendant

la déformation plastique et en utilisant le modèle de Jefferson et al. [54, 95] :

$$S_{ij}^{unl} = 2E^* f_N\left(\frac{a_b}{R^*}, \nu\right) a_b \tag{2.37}$$

où E^* est le module d'Young équivalent (Eq. (2.18)), et a_b le rayon de la liaison formée pendant la déformation plastique ($a_b^2 = 2R^*\delta_1$). La décharge élastique dépend donc des paramètres élastiques des agglomérats et de la taille a_b de la liaison. En d'autres termes, la raideur élastique d'un contact en décharge dépend de son histoire plastique. La fonction f_N a été dérivée par Jefferson et al. [95] et augmente typiquement de 1 à 1.3 à mesure que la taille relative $\frac{a_b}{R^*}$ augmente. La raideur de la déformation plastique est limitée par la raideur de la décharge ($S_{ij}^{plast} = \min[S_{ij}^{plast}, S_{ij}^{unl}]$) pour garantir que la réponse plastique n'est jamais plus rigide que la réponse élastique.

La liaison formée pendant la déformation plastique peut supporter des forces de traction comme illustré à la figure 2.10. La force nécessaire pour rompre cette liaison, N_{max}, dépend de la taille du contact entre les agglomérats :

$$N_{max} = \sigma_N \pi a_b^2 \tag{2.38}$$

où σ_N est la résistance à la traction, à ajuster avec les données expérimentales. Le seul mode de rupture d'une liaison est en traction (pas de rupture en cisaillement). Lorsque la force de traction N atteint N_{max}, la liaison se rompt (point 7, figure 2.10) et la force est annulée. Un contact rompu peut être réactivé lorsque $\delta_{unl} = \delta_1 - \delta_n < \delta_{snap}$, avec δ_{snap} donné par :

$$\delta_{snap} = \frac{N_1}{S_{ij}^{unl}} \tag{2.39}$$

Une fois que δ_{snap} est atteint lors du rechargement, le contact se recharge élastiquement en suivant la branche N^{unl} (9-10) sur la figure 2.10, jusqu'à ce que l'indentation augmente au-dessus de δ_1 et que le contact se re-plastifie.

Le modèle de force tangentielle est composé d'un mode d'adhérence et d'un mode de glissement. Deux coefficients de frottement sont utilisés : le frottement entre les

agglomérats μ_{aggl} et le frottement entre les agglomérats et la matrice $\mu_{matrice}$. Plus de détails sur le modèle de force tangentielle peuvent être trouvés dans la section suivante.

2.2.4 Force tangentielle

Les modèles de force tangentielle sont généralement caractérisés par trois éléments principaux : l'élasticité, le frottement et l'amortissement. Ces modèles dépendent souvent de la force de contact normale et leur formule reste constante, quel que soit l'état du contact, qu'il soit élastique 2.2.1, plastique 2.2.2 2.2.3 ou en décharge 2.2.3. La force tangentielle passe par deux étapes successives, communément appelées "collant" et "glissant" [22].

Pour modéliser ces deux étapes, nous allons utiliser le modèle de Hertz-Mindlin pour la partie "collante" ($\vec{T_c}$) et une approche de type Coulomb pour la partie "glissante" ($\vec{T_g}$). La force tangentielle est alors calculée par $\|\vec{T}\| = \min(\|\vec{T_c}\|, \|\vec{T_g}\|)$. Dans le contexte du modèle de Hertz-Mindlin, à chaque pas de temps, un incrément $\Delta\vec{T_c}$ est ajouté à la force tangentielle de l'étape précédente. $\vec{T_c}$ est exprimé par :

$$\begin{aligned} \vec{T_c}(t) &= \vec{T_c}(t - \Delta t) + \Delta\vec{T_c} \\ \Delta\vec{T_c} &= -8G^* a \vec{v}_{rel,t} \mathrm{d}t \end{aligned} \tag{2.40}$$

où G^* est le module de cisaillement équivalent :

$$\frac{1}{G^*} = \frac{(2-\nu_i)(2+2\nu_i)}{E_i} + \frac{(2-\nu_j)(2+2\nu_j)}{E_j} \tag{2.41}$$

La norme de la force tangentielle ne peut dépasser le produit μN (frottement de Coulomb), où μ est le coefficient de frottement et N la force normale. Si la condition $\|\vec{T_c}\| \geq \mu N$ est réalisée, la force tangentielle $\vec{T_g}(t)$ est donnée par :

$$\vec{T_g} = \frac{\vec{T_c}}{\|\vec{T_c}\|}\mu N \tag{2.42}$$

A noter que la variation de la direction de la force tangente en mode glissant est toujours donnée par l'incrément vectoriel $\vec{v}_{rel,t}\mathrm{d}t$. La figure 2.12 illustre la décomposition de la force tangentielle en ses composantes "collante" et "glissante".

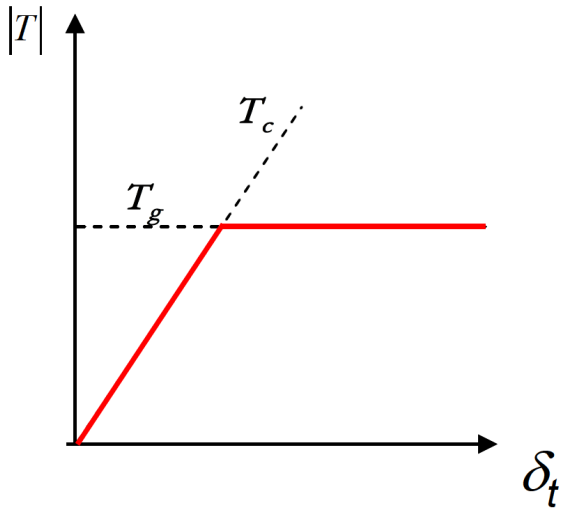

FIGURE 2.12 – Décomposition de la force tangentielle en ses composantes "collante" ($\vec{T}_c$) et "glissante" ($\vec{T}_g$). La force tangentielle, représentée en rouge, est le minimum entre $\vec{T}_c$ et $\vec{T}_g$ [22].

2.3 Code dp3D

Il existe aujourd'hui de nombreux codes qui utilisent la DEM. La communauté française de la DEM est d'ailleurs très dynamique avec des codes open-source tels que Yade ou Granoo. Le code LIGGGHTS, issu du code de dynamique moléculaire LAMMPS est aussi très utilisé. Des codes commerciaux sont aussi apparus dans les dernières années (Altair, PFC, ...).

Dans le cadre de la compaction et frittage des poudres nucléaires, le code **dp3D** (Discrete Powder 3D) [96] est intéressant car il permet de simuler les deux étapes avec un seul code et d'utiliser le comprimé cru compacté numériquement comme objet de départ pour l'étape de frittage. Le code dp3D est développé au laboratoire SIMaP et est un code dédié à la recherche pour les simulations en conditions quasi-statiques (effets inertiels négligeables). Ce code est principalement destiné à modéliser des matériaux utilisés pour des applications en science des matériaux et qui présentent des caractéristiques particulaires telles que des poudres. Les lois de contact pour la compaction et le frittage sont déjà implémentées dans ce code mais peuvent être modifiées si nécessaire. Le code dp3D offre également la capacité de simuler une variété de configurations d'empilement en 3 dimensions, en tenant compte de plusieurs matériaux (comme dans le cas d'un mélange de poudres), de la distribution des tailles des particules, ainsi que de la présence d'objets de formes diverses. Le code est écrit en Fortran90 et l'environnement informatique est sous Linux. Le code est parallélisé en openMP. Les conditions périodiques et les objets rigides peuvent être utilisés pour les conditions aux limites.

Pour lancer une simulation, au moins deux fichiers sont nécessaires : "input_dp3D" et un fichier des coordonnées. Le fichier input_dp3D (figure 2.13) spécifie les conditions de la simulation, les modèles, les outputs, la cinématique et les paramètres matériau. Le fichier des coordonnées, quant à lui, défini les 3 coordonnées des centres des sphères, leurs rayons ainsi que les objets. Le code dp3D est intégré avec des outils de post-traitement pour tracer les sorties du code ou visualiser les empilements à

différents instants de la compaction. Un manuel d'aide est périodiquement actualisé.

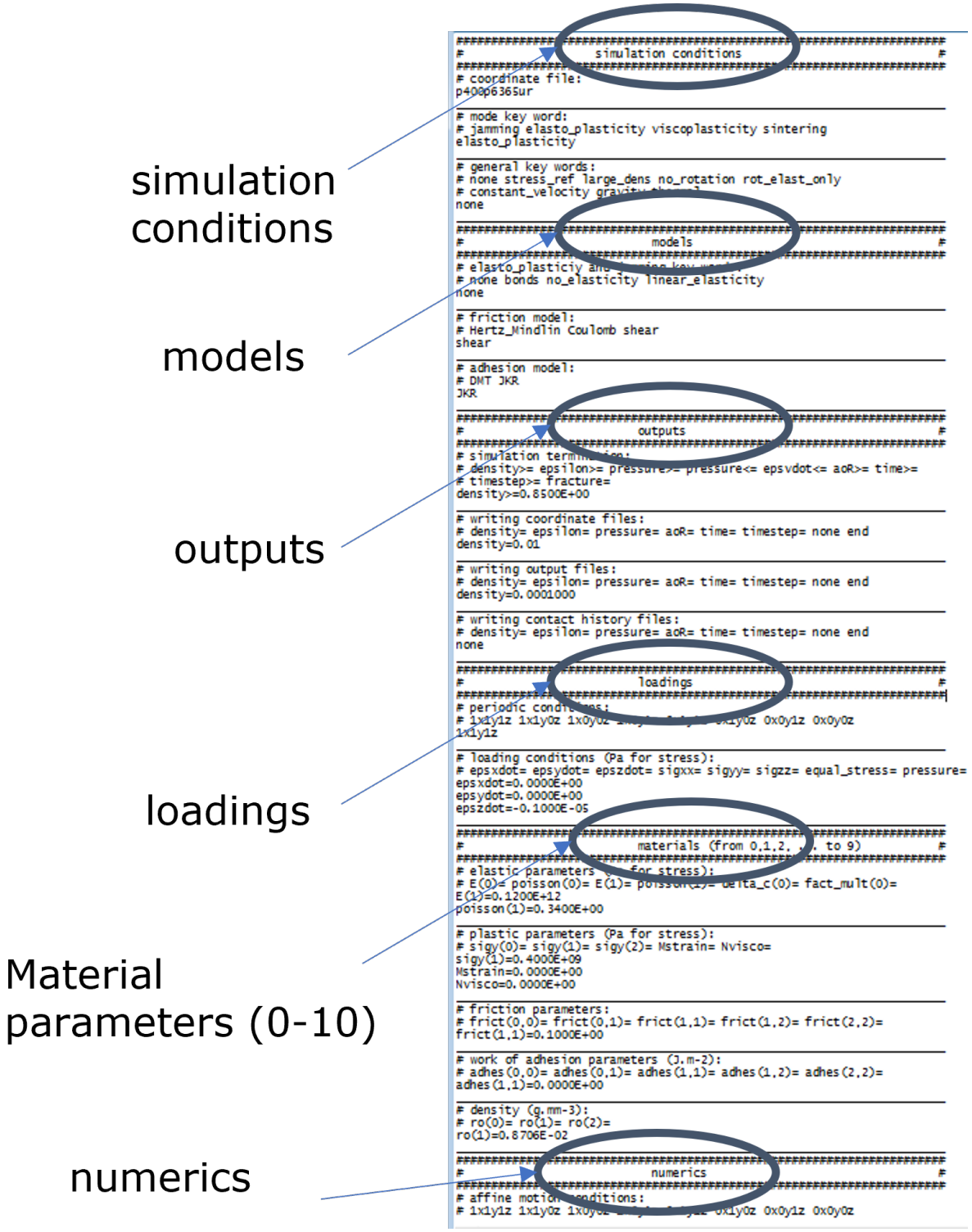

FIGURE 2.13 – Fichier texte typique input_dp3D utilisé pour lancer une simulation.

2.4 Application de la DEM aux poudres nucléaires

Il existe très peu de simulations DEM appliquées aux poudres nucléaires, et encore moins dans le domaine de la compaction et du frittage, particulièrement en ce qui concerne le MOX.

De plus, bien que la DEM ait l'avantage de modéliser chaque particule individuellement, permettant ainsi de prendre en compte directement la microstructure granulaire des poudres (contrairement à la FEM), elle est limitée par son temps de calcul élevé. Cette limitation la rend moins adaptée à la représentation de grands volumes, ce qui n'est pas avantageux pour les industriels. Ces derniers cherchent plutôt à étudier le compact dans son intégralité, pendant et après la compaction et le frittage. Par conséquent, la DEM a été relativement peu utilisée jusqu'à présent et les simulations que l'on trouve sont souvent réalisées avec la FEM, car elle permet de modéliser l'ensemble du comprimé.

Parmi les rares documents trouvés qui appliquent la DEM aux poudres nucléaires, on peut citer la thèse de B. Saint-Cyr [97] et celle de P. Pizette [22], ainsi que son travail post-doctoral.

Dans sa thèse intitulée "Modélisation des matériaux granulaires cohésifs à particules non convexes : Application à la compaction des poudres d'UO_2", B. Saint-Cyr présente un modèle dédié à l'étude numérique des propriétés rhéologiques et microstructurales des poudres d'UO_2. Ce modèle prend en compte les aspects non convexes des agrégats, et leurs interactions par frottement et cohésion. Saint-Cyr et al. [98] ont observé, lors de simulations 2D, que les agrégats dans un emballage cisaillé tendent à former plus de contacts avec moins d'agrégats voisins à mesure que le degré de non-convexité augmente. De plus, Azéma et al. [99] ont constaté, à travers des simulations en 3D, que l'angle interne de friction augmente avec la non-convexité. Toutefois, les travaux de B. Saint-Cyr sont encore très éloignés du processus industriel.

Dans ses travaux, P. Pizette a utilisé la DEM pour caractériser la structure des poudres d'UO_2 à l'échelle des cristallites, soit l'échelle la plus fine de la microstructure

et à l'échelle des agrégats. Il a également utilisé la DEM pour modéliser les phénomènes de réarrangement et de fracture des agrégats qui se produisent lors de la compaction. Pour modéliser les agrégats, P. Pizette a proposé deux approches distinctes, illustrées à la figure 2.14 :

— Dans la première, dite "sphères poreuses", chaque agrégat est modélisé comme une sphère poreuse, sans possibilité de fracture. Cette approche ressemble à la nôtre (voir section 2.2.3), qui s'applique aux agglomérats [93].

— Dans la seconde, dite "agrégats de cristallites", chaque agrégat est conçu comme un assemblage de particules primaires, ou cristallites, chacune étant représentée par une sphère. Les interactions entre les agrégats sont déterminées par les cristallites qui les composent [100, 54].

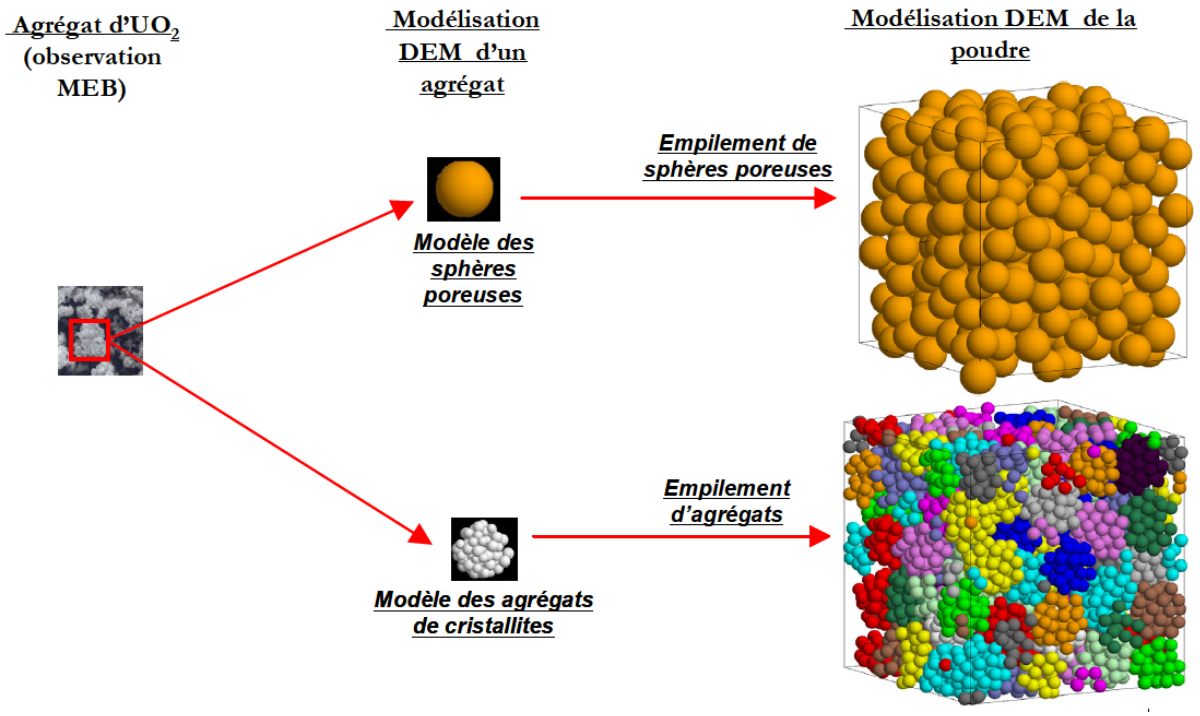

FIGURE 2.14 – Les différents modèles DEM de P. Pizette [22].

La méthode des sphères poreuses a été utilisée pour faciliter l'élaboration des lois de comportement macroscopique à intégrer dans les modèles aux éléments finis [93], comme illustré dans la figure 2.15. En particulier, P. Pizette a démontré la faisabilité d'expériences numériques qui simulent (à l'échelle d'un petit volume périodique) des essais tri-axiaux complexes pour générer des surfaces isodensités via la DEM de type

Cam-Clay (Fig. 1.19) ou Cap model (Fig. 1.20). La méthode des plans d'expérience a été utilisée pour faciliter l'identification des paramètres matériau du modèle DEM à partir des deux types d'essais expérimentaux disponibles (compaction uniaxiale en matrice et essai diamétral de compression).

P. Pizette a également contribué à la compréhension des différences de solidité des comprimés issus des poudres produites par voie sèche (VS) et par voie humide (VH) [54]. Ces travaux de modélisation ont mis en évidence que des cristallites de petites tailles (100 nm) étaient favorables à une bonne cohésion du comprimé cru par rapport à des cristallites de plus grandes tailles (300 nm). A cette échelle, ce sont les forces de van der Waals qui génèrent l'adhésion décrite par les lois de type DMT (eqn (2.20)). Toutes les modélisation DEM de P. Pizette utilisent des conditions périodiques. Elles s'attachent donc à simuler un petit élément de volume, très éloigné du comprimé réel.

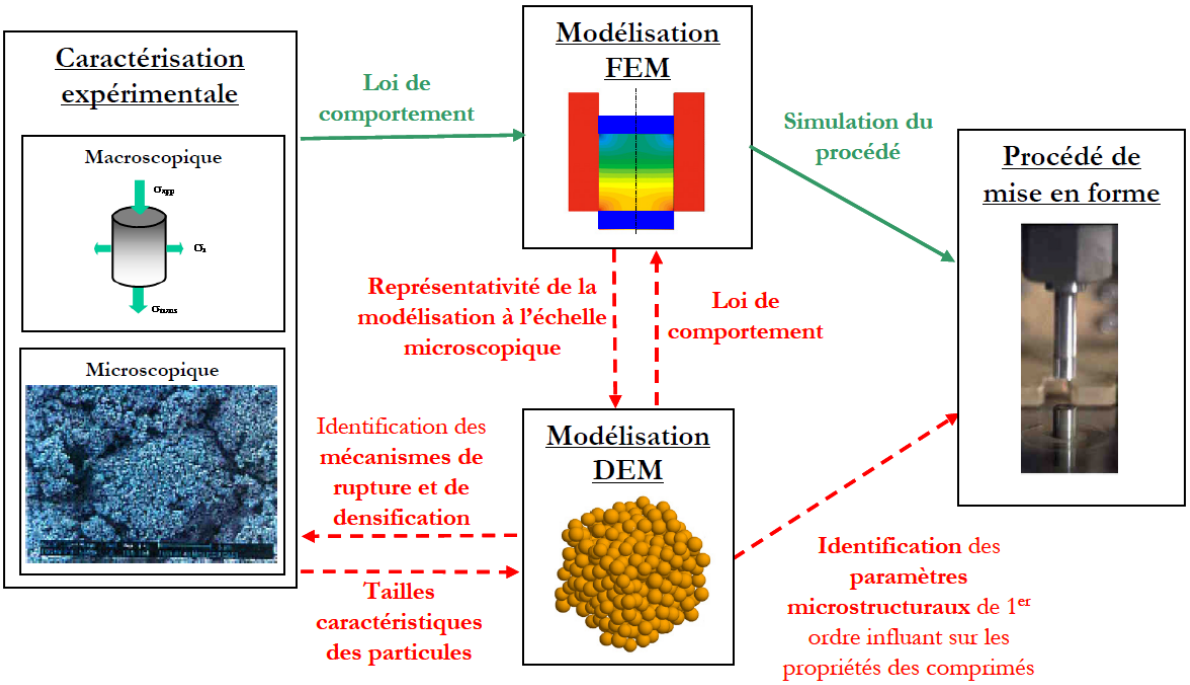

FIGURE 2.15 – Schéma sur l'apport de la DEM sur la FEM [22].

Dans son travail post-doctoral [101], P. Pizette se rapproche davantage de la microstructure des poudres MOX. Les agrégats de PuO_2 et la chamotte ont été modélisés et une méthodologie a été mise en place pour modéliser les mélanges mère et final.

2.5 Conclusion

La DEM est une méthode exigeante en termes de temps de calcul, ce qui explique pourquoi les études de P. Pizette et de B. Saint-Cyr se concentrent sur un petit volume du matériau. C'est également pour cette raison que les approches basées sur la FEM ont été plus largement adoptées dans un contexte industriel au cours des vingt dernières années.

En raison de ces contraintes de temps de calcul, la DEM n'a pas encore été utilisée pour simuler la compaction et le frittage des poudres MOX à l'échelle d'un comprimé entier. Cependant, le temps de calcul peut être considérablement réduit en utilisant des machines performantes et en mettant en œuvre la parallélisation des calculs. De plus, le nombre de particules simulées peut être réduit en adoptant des stratégies adaptées au problème à traiter, par exemple en simulant des particules plus grandes que la taille réelle des particules, comme discuté dans la section 2.2.3.

L'objectif principal de cette thèse est donc de **développer un outil numérique efficace et fiable qui peut simuler les étapes de compaction et de frittage des mélanges de poudres à l'échelle d'un comprimé entier. Cet outil devra intégrer de manière explicite les différents composants du mélange et reproduire au mieux les conditions industrielles du processus, y compris la géométrie du comprimé et des outils.**

Concernant l'étape de compaction, nous avons opté pour l'utilisation du modèle de B. Harthong car il n'est pas limité en densité relative, contrairement aux autres modèles plastiques [79]. En effet, à l'exception de ce modèle, les lois de contact existantes ne reproduisent pas tous les phénomènes physiques impliqués dans la densification des milieux granulaires, ce qui les limite à une densité relative d'environ 0,8. Le modèle de Harthong a donc été implémenté et adapté dans le code dp3D afin de prendre en compte notre approche des agglomérats poreux. Notre approche se classe dans les simulations DEM de la littérature qui sont basées sur la méthode "coarse grain". Dans cette approche des agglomérats poreux, nous représenterons le mélange secondaire de

la poudre MOX comme étant composé de deux types d'agglomérats : un agglomérat d'UO_2 pur, et un agglomérat de mélange primaire. Le mélange primaire, étant plus complexe à caractériser car il est de composition variable (chamotte, PuO_2 et UO_2), nous avons décidé de caractériser dans une première étape uniquement les agglomérats d'UO_2. Pour ce faire, nous comparerons nos simulations avec les données expérimentales obtenues par P. Pizette sur l'UO_2. Ainsi, dans le chapitre 3, nous mettrons en œuvre la compaction à simple effet de la poudre d'UO_2 seule, en utilisant une géométrie cylindrique, conformément aux paramètres utilisés par P. Pizette. Cette étape nécessitera un ajustement des paramètres matériau (utilisés dans la description de notre modèle élastoplastique) tels que le coefficient d'écrouissage m, le paramètre plastique σ^*, le coefficient de frottement μ, le module de Young E et la résistance à la traction σ_N.

L'un des principaux défis de cette thèse sera de déterminer les paramètres du modèle pour la compaction des agglomérats de mélange primaire, en raison de l'absence de données expérimentales dans la littérature. Le chapitre 4 est dédié à la caractérisation de ces agglomérats ainsi qu'à la compaction d'un mélange de poudre MOX. Cette fois, nous mettrons en œuvre une compaction à double effet, afin de nous rapprocher davantage du processus industriel. Cette compaction prendra en compte la géométrie industrielle ainsi que sa cinématique. L'ajustement des paramètres matériau sera effectué de manière plus sommaire, en recourant à des hypothèses simplificatrices en raison du manque de données sur les poudres MOX.

Le chapitre 5 servira de preuve de concept pour le frittage de la pastille préalablement compactée et permettra de valider l'influence du gradient de densité, généré lors de la compaction, sur la géométrie finale du comprimé. L'approche adoptée pour le frittage ainsi que la description du modèle utilisé y seront également détaillées.

Chapitre 3

Compaction des agglomérats d'UO_2

Le chapitre précédent a introduit les généralités de la méthode des éléments discrets et a également abordé un aspect central de cette thèse en décrivant l'approche des sphères poreuses ainsi que le modèle élasto-plastique utilisé dans nos simulations. Comme mentionné précédemment, en raison du nombre élevé de particules, nous avons choisi de représenter uniquement les agglomérats, en excluant les agrégats et cristallites. Ces agglomérats possèdent une porosité que notre modèle élasto-plastique intègre. Par conséquent, la poudre MOX est représentée ici comme étant constituée de deux types d'agglomérats : les agglomérats de "mélange primaire" et les agglomérats d'UO_2 pur. Ces deux types forment ensemble le mélange secondaire.

Dans ce chapitre, nous allons modéliser numériquement les agglomérats d'UO_2 pour obtenir leur modèle numérique. En particulier, nous nous intéresserons à leur compaction en matrice.

3.1 La poudre UO_2 étudiée par P. Pizette

La littérature offre peu de renseignements sur la compaction des poudres nucléaires. La thèse de Pizette se distingue par la richesse de ses données sur le sujet. Elle constituera une base expérimentale importante pour ajuster les paramètres matériau du modèle DEM présenté au chapitre précédent. Bien que les conditions de pressage de P. Pizette (simple effet) diffèrent de celles d'Orano (double effet), cela ne devrait

pas influencer significativement l'ajustement (ou "fitting" en anglais) des paramètres matériau de la poudre. Par conséquent, notre modélisation du comportement lors du pressage de l'agglomérat d'UO_2 pur s'appuiera fortement sur les travaux de Pizette.

Pizette a mené une étude approfondie sur la compaction des poudres d'UO_2 à l'aide d'une matrice instrumentée. Il a réalisé ces essais avec plusieurs objectifs :

— Obtenir des courbes de compressibilité pour des poudres de référence.

— Analyser l'évolution de l'état de contrainte lors de la décharge des compacts.

— Évaluer l'impact de la teneur en U_3O_8 sur le comportement du mélange UO_2 VS et U_3O_8.

Dans ce chapitre, nous nous limitons à la poudre VH (section 1.1.1), car elle est la plus similaire à la poudre d'UO_2 utilisée à Orano.

3.1.1 Dispositif de compression et mesures associées

Pizette a étudié la mise en forme des poudres uranifères à l'aide d'un dispositif de compression uni-axiale (simple-effet) doté d'une matrice instrumentée (cf. figure 3.1).

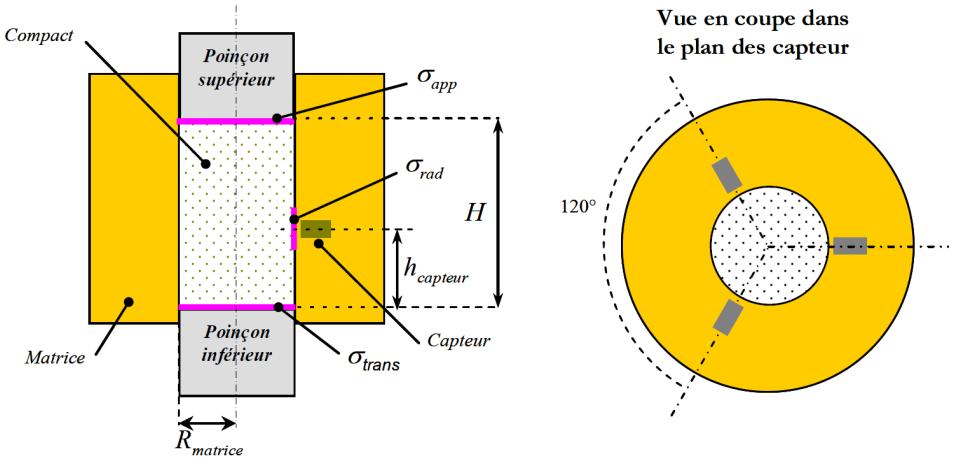

FIGURE 3.1 – Dispositif de compaction en matrice instrumenté utilisé au CEA LCU [22].

Le système d'acquisition de ce dispositif, développé au LCU (CEA Cadarache), permet de mesurer la contrainte axiale appliquée (σ_{app}), la contrainte transmise (σ_{trans}) et la contrainte radiale (σ_r) lors des phases de charge, décharge et éjection du comprimé. Pour déterminer la contrainte radiale, trois capteurs de force, situés à une hauteur

$h_{capteur}$ par rapport au poinçon inférieur, ont été intégrés dans la matrice. Ces capteurs de force ne mesurent σ_r que sur une petite surface de quelques millimètres carrés. Ainsi, Pizette a utilisé le modèle de Janssen (Eq. (1.11)) pour calculer la contrainte axiale au niveau des capteurs radiaux et obtenir l'indice de fluidité [22] (Eq. (1.7)).

La matrice, en carbure de tungstène, peut être considérée comme parfaitement rigide, éliminant ainsi les effets potentiels de sa déformation radiale pendant la charge. Afin de calibrer le dispositif, des essais préliminaires ont été effectués sur des poudres inertes d'alumine et de fer. De plus, chaque essai de compaction en matrice a été réalisé trois fois pour garantir la reproductibilité des résultats.

3.1.2 Cinématique des essais de P. Pizette

La figure 3.2 illustre la cinématique associée aux phases de charge, décharge et éjection lors des expériences menées par P. Pizette. Cette section détaille ces phases et décrit leur importance pour la phase d'ajustement.

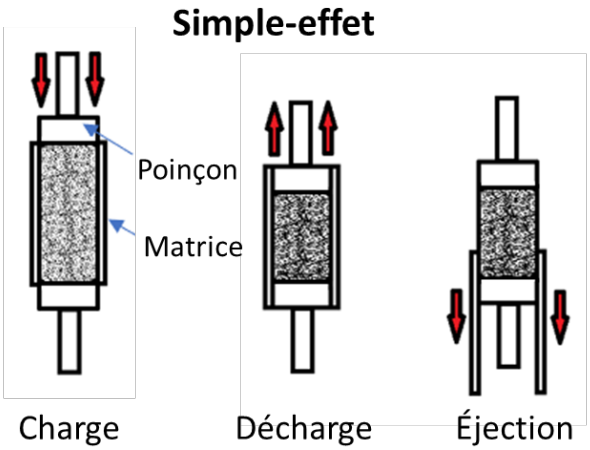

FIGURE 3.2 – Cinématique de la presse utilisée par P. Pizette.

La poudre est compactée à l'aide d'une presse cylindrique à simple effet équipée de deux poinçons plats, jusqu'à atteindre une pression axiale maximale. Le poinçon supérieur est ensuite progressivement déchargé jusqu'à une pression intermédiaire (la pression d'accompagnement). Cette pression est conservée pendant la phase d'éjection, où le compact glisse hors de la matrice.

Charge

L'ajustement des paramètres matériau des agglomérats d'UO_2 lors de cette phase se basera sur :

— La courbe de densification de la poudre UO_2 VH, où la densité relative en charge est exprimée en fonction de la contrainte moyenne (voir figure 3.3).

— L'évolution des indices de fluidité et de friction au cours de la compaction en matrice (illustrée sur la figure 3.4).

La thèse de Pizette étant confidentielle, il a été choisi d'introduire une variable × au niveau de l'axe des contraintes. Il est important de noter que l'objectif de cette section n'est pas de discuter quantitativement les résultats obtenus par P. Pizette. Ses résultats sont présentés ici principalement pour illustrer qualitativement les données utilisées pour l'ajustement des agglomérats d'UO_2.

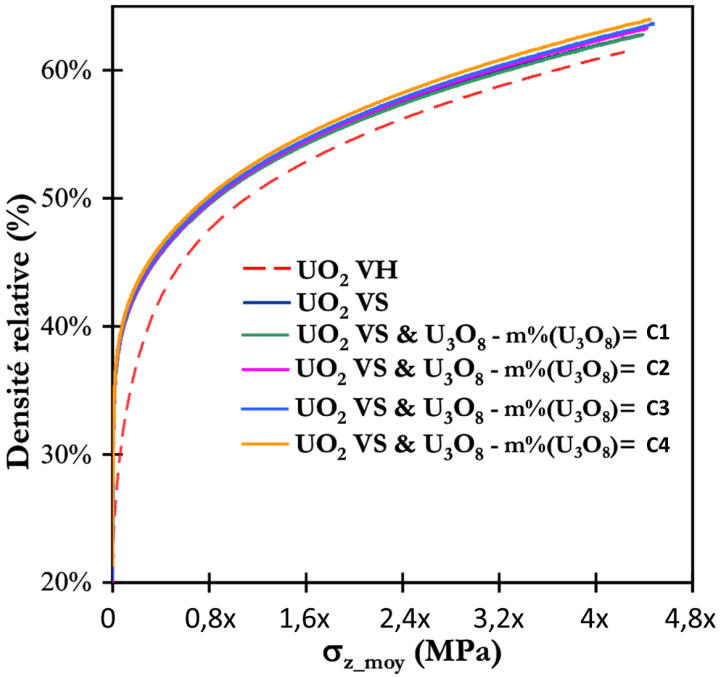

FIGURE 3.3 – Densité relative en fonction de la contrainte moyenne à différentes compositions (UO_2+U_3O_8) et voies de synthèse (VH et VS) [22]. La variable × est utilisée pour préserver la confidentialité des propriétés à la compaction de la poudre.

La figure 3.3 montre une évolution typique de la compaction d'une poudre céramique sous forme d'agglomérats (Fig. 1.16). On remarque très peu d'influence de la teneur en U_3O_8. Une différence claire est observée entre les poudres VS et VH, avec la

poudre VS qui se densifie plus à contrainte moyenne donnée.

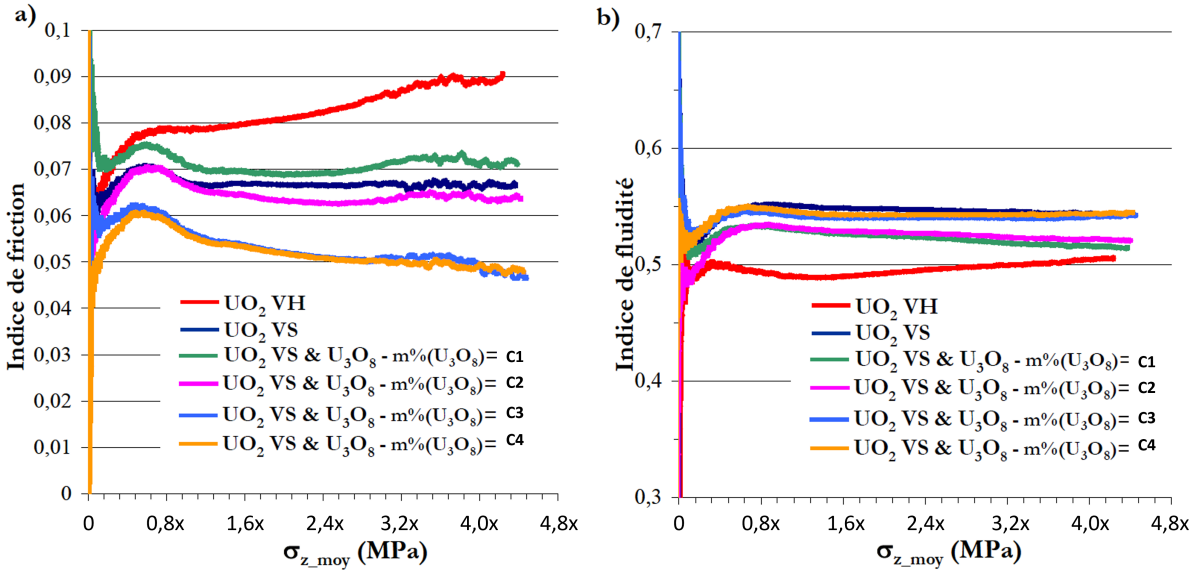

FIGURE 3.4 – Évolution des indices a) de friction et de b) fluidité au cours de la compaction [22] à différentes compositions (UO_2+U_3O_8) et voies de synthèse (VH et VS).

Les indices de fluidité et de friction permettent, à l'aide des équations (1.7), (1.10) et (1.12), d'obtenir les contraintes σ_{app}, σ_{trans} et σ_r en fonction de la densité relative. Ces données expérimentales pourront être directement comparées aux simulations DEM.

La figure 3.4-a montre que l'indice de friction permet de détecter clairement l'influence de la teneur en U_3O_8 sur la poudre VS. Une augmentation de la teneur en U_3O_8 tend à diminuer l'indice de friction. L'U_3O_8 pourrait donc être utile pour la lubrification poudre/matrice. La poudre VH exhibe un indice de friction plus élevé que toutes les autres poudres.

La figure 3.4-b montre que l'indice de fluidité dépend assez peu (il n'y a pas de tendance claire) de la teneur en U_3O_8. L'indice de fluidité de la VH est plus faible que la VS. Ces deux résultats sont cohérents avec l'observation de la figure 3.3 qui montre que la VS est plus facile à densifier que la VH.

Il n'existe pas à notre connaissance de mesures expérimentales concernant la distribution de densité en fin de compaction pour la poudre UO_2. Il est donc nécessaire de se baser sur les simulations FEM réalisées par P. Pizette pour modéliser cette dis-

tribution. La figure 3.5-a montre le résultat obtenu.

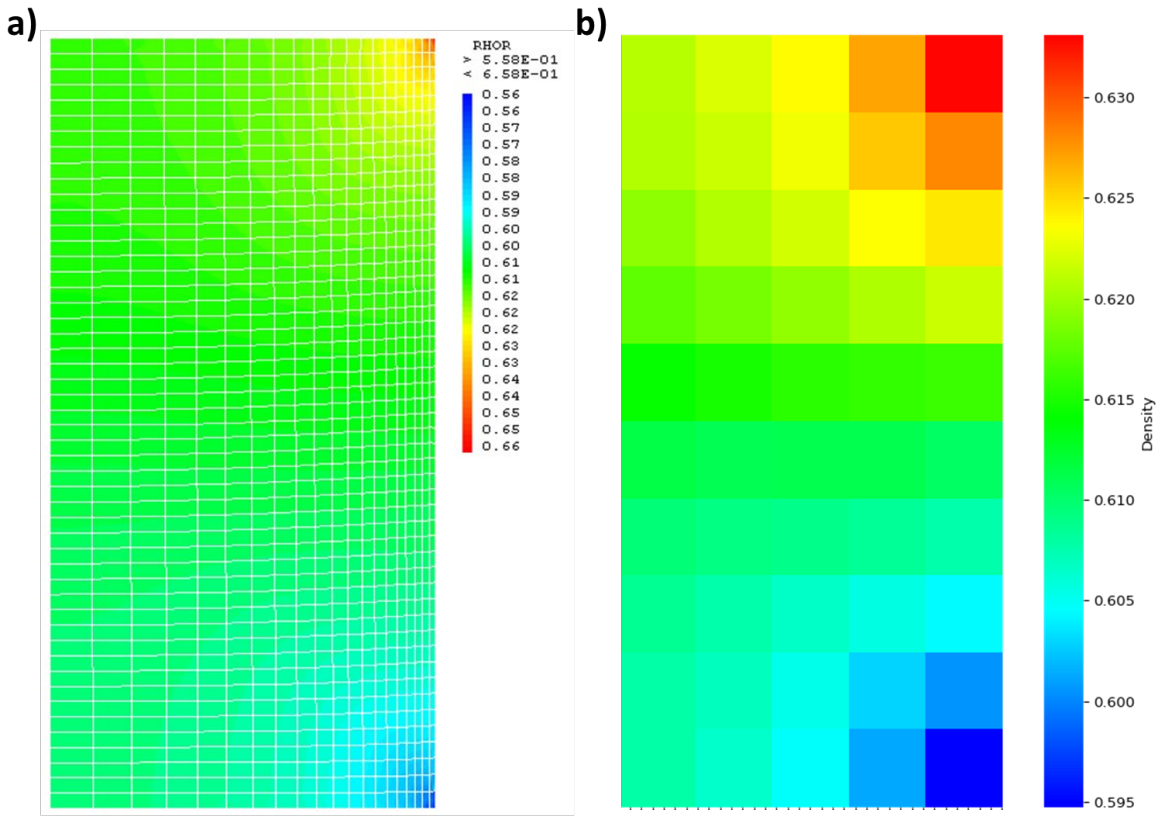

FIGURE 3.5 – Répartition de la densité relative obtenue par la FEM a) données initiales [22] et b) données retraitées sur un maillage plus grossier et homogène. La valeur de chaque pixel représente la densité moyenne de a).

La figure 3.5-b illustre le traitement effectué à partir des données initiales issues du calcul FEM. La valeur de chaque pixel donne la densité moyenne des mailles correspondantes de la figure 3.5-a. Ce traitement est nécessaire pour diverses raisons : Il permet d'homogénéiser le maillage généré par la FEM afin d'obtenir un nombre de pixels identique à celui de la carte de densité générée par nos simulations DEM ; En diminuant le nombre de pixels, la comparaison entre FEM et DEM est simplifiée ; Enfin, ce traitement contribue à minimiser l'apparition d'éventuels artefacts dans les cartes de densité produites par la DEM (cf. 3.2.1).

Pour cela, un code Python dédié à la numérisation et au traitement des cartes de densité, ou plus généralement des "heatmaps" (cartes de chaleur), a été développé. Ce code est open-source, simple à installer et est accessible via le lien suivant : `https://github.com/gilmarGNJ/heatmap_digitizer`.

Les figures 3.5-a et b sont cohérentes avec ce qui est attendu lors d'une compaction simple effet en matrice (voir aussi les Figs. 1.9 et 1.18) : la zone qui subit le mouvement relatif entre poudre et matrice le plus grand (en haut et en périphérie radiale) est la plus densifiée. La zone où ce mouvement relatif est le plus faible est au contraire la moins densifiée.

Décharge

Durant cette phase, l'évolution des contraintes axiales et radiales pour les poudres d'UO_2 VH sera utilisée en fonction de la déformation axiale (figure 3.6).

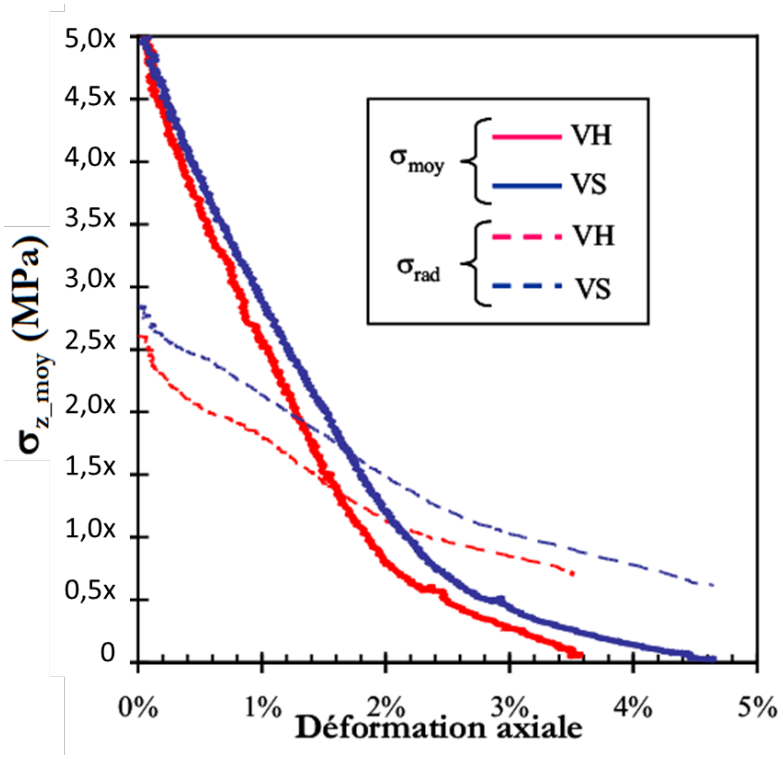

FIGURE 3.6 – Contraintes axiales moyennes et radiales en fonction de la déformation axiale pendant la décharge [22] pour les poudres VH et VS.

La figure 3.6 montre un comportement similaire entre les poudres VS et VH. On remarque en particulier que lors de la décharge, la contrainte axiale moyenne devient plus faible que la contrainte radiale. C'est bien ce qui est attendu lors de cette décharge où le comprimé reste contraint radialement par la matrice alors que le poinçon supérieur est relevé.

Éjection

Lors de l'ajustement des paramètres matériau pour les agglomérats d'UO_2, la phase d'éjection n'est pas simulée. En effet, en prenant en compte la décharge, les propriétés élastiques de la poudre à la décharge sont déjà intégrées. Le comportement élastique de la poudre lors de l'éjection devrait être similaire à celui observé pendant la décharge. Il serait possible d'intégrer cette étape supplémentaire pour l'ajustement mais il est préférable de limiter, dans le cadre d'une application industrielle, le nombre de données nécessaires à l'ajustement des paramètres matériau.

Essais de rupture

Les essais de rupture des comprimés crus ne seront pas intégrés à l'ajustement, car le modèle élasto-plastique n'a pas été développé dans ce cadre. Des développements supplémentaires sont nécessaires à ce sujet, ce qui constitue une perspective future pour cette thèse.

3.2 Modèle numérique des agglomérats d'UO_2

Ce chapitre s'appuie sur l'élaboration d'un modèle numérique pour représenter les agglomérats de poudre d'UO_2. L'objectif est de simuler, tester et analyser ces agglomérats dans un environnement virtuel, en se basant sur les données exposées dans la section précédente. Ce modèle numérique est conçu pour prédire le comportement des agglomérats sous différentes conditions. Pour les agglomérats de poudre MOX, cela pourrait inclure des variations de composition. En ce qui concerne les agglomérats de poudre d'UO_2, étudiés dans ce chapitre, le modèle offre la possibilité de simuler des variations comme le taux de lubrifiant ou les conditions de pressage (pression maximale, pression d'accompagnement, simple ou double-effet, etc.).

Dans cette section, la mise en œuvre de la DEM pour la création de notre modèle numérique sera détaillée.

3.2.1 L'échantillon numérique

Afin de réaliser un modèle numérique fidèle des agglomérats d'UO_2 pur étudiés par Pizette, il est essentiel de reproduire les mêmes conditions de pressage. Cela implique de respecter la géométrie des outillages de la presse, notamment les poinçons plats et la matrice (hauteur et diamètre), de reproduire la densité initiale (d'environ 20%) et de suivre la même cinématique, en l'occurrence le pressage en simple effet.

Il est également important de reproduire au mieux les points les plus pertinents de la microstructure de la poudre dans le cadre de la simulation d'un process industriel. Ceci nous amène à considérer le nombre de particules à simuler ainsi que leur porosité.

Nombre de particules

Les agglomérats d'UO_2 étudiés par Pizette ont un diamètre variant entre 10 et 200 microns. Comme discuté dans la section 2.2.3, cela se traduit par un nombre élevé de particules simulées, approximativement de l'ordre de 10^6. Bien que ce nombre soit relativement élevé, il reste gérable pour une simulation DEM, avec une durée de calcul

de l'ordre de la semaine pour un code parallélisé.

Toutefois, pour répondre aux contraintes industrielles, le modèle de calcul doit être capable de fournir des résultats rapidement, typiquement en l'espace d'une journée.

L'augmentation de la taille des particules permet de réduire significativement le nombre de particules pour un volume donné, comme mentionné dans la section 2.2.3 du chapitre 2. Cependant, en augmentant excessivement cette taille, on compromet la précision des résultats. Des artefacts peuvent apparaître sur la carte de densité, notamment au milieu de la pastille, où des variations brusques de densité peuvent être identifiées. Après analyse, un seuil optimal autour de 400µm a été identifié pour la taille des agglomérats. Cette dimension a donc été retenue pour les simulations ultérieures.

Une simulation avec des dimensions ou une géométrie similaire à celles typiquement utilisées par Orano ne prendrait désormais qu'une journée au lieu d'une semaine, en simulant environ 40 000 particules. Pour le modèle numérique des agglomérats étudiés par P. Pizette, cela représente environ 20 000 particules.

Il est à noter que nos agglomérats présentent une distribution homogène de la taille avec une variation d'environ 5%. Une distribution normale n'a pas apporté de différences majeures dans la microstructure de la simulation, mais a considérablement augmenté le temps de calcul, en raison de l'adaptation nécessaire de la maille de la méthode "Linked cell" 2.1.5 face à la grande variabilité de la taille des particules.

Porosité des agglomérats

Le code dp3D mesure une densité géométrique relative $\tilde{\rho}_{DEM}$ (cf. section 2.2.3) lors d'une simulation. Cette densité est calculée en supposant que les particules sont denses, c'est-à-dire sans porosité. La densité relative du compact $\tilde{\rho}$ peut être approchée en introduisant la densité des agglomérats $\tilde{\rho}_{aggl}$: $\tilde{\rho} = \tilde{\rho}_{DEM} \times \tilde{\rho}_{aggl}$. Une valeur de $\tilde{\rho}_{aggl}$ égale à 0,41 est adoptée.

Cette valeur est cohérente avec celle mesurée par porosimétrie au mercure pour des agglomérats d'une poudre VH [19]. Pour la poudre VS, la valeur mesurée est de

0,34 [19].

Préparation d'un échantillon numérique

La préparation d'un échantillon numérique consiste principalement à générer le fichier des coordonnées (cf. 2.3). Dans ce fichier, les coordonnées x, y et z des centres des sphères qui représentent les agglomérats sont définies, ainsi que leurs rayons, et les objets associés (les poinçons plats et la matrice cylindrique).

Dans dp3D, une stratégie courante pour obtenir ce fichier des coordonnées consiste à créer initialement un gaz de particules (un ensemble de particules distribuées de manière aléatoire), puis à le densifier jusqu'à atteindre une densité souhaitée. Cette densité représente la densité initiale dans notre simulation de compaction.

La densification du gaz de particules, appelée "jamming", est réalisée en imposant une vitesse de déformation à la boîte de simulation et en définissant une pression maximale macroscopique. Cette pression détermine l'indentation initiale des agglomérats au début de la compaction. Le jamming utilise une loi élastique, ce qui signifie que les indentations initiales des agglomérats n'entraînent aucune déformation plastique. Le frottement entre les particules est supprimé lors du jamming. L'étape de jamming a été décrite en détail et étudiée avec dp3D [75].

L'approche adoptée dans ce travail consiste à réaliser le jamming jusqu'à une densité initiale souhaitée, afin d'obtenir un échantillon mère. Cet échantillon cylindrique a des dimensions géométriques plus grandes que celles utilisées par Pizette. Ainsi, pour réaliser la compaction avec une géométrie différente de celle de Pizette, il suffit d'enlever les particules de l'échantillon mère qui se trouvent à l'extérieur de la géométrie souhaitée, pour obtenir un empilement de particules prêt à être compacté.

Cette approche est particulièrement utile pour l'objectif final de la thèse, qui vise à développer un outil numérique permettant de modifier facilement la géométrie des poinçons et de la matrice sans avoir besoin de refaire le gaz de particules et le jamming. Elle permet également de garantir que toutes les simulations commencent avec la même microstructure et la même densité initiale. Ainsi, les variations observées

entre deux simulations à l'issue de la compaction sont directement liées aux propriétés de la poudre, à la géométrie du compact et aux conditions de pressage, et non aux conditions de préparation de la microstructure numérique. Une conséquence de cette stratégie est que lorsqu'on change la géométrie de la matrice ou des poinçons, on modifie également le nombre de particules.

Notre échantillon mère cylindrique, qui contient environ 330 000 particules et présente une densité géométrique relative $\tilde{\rho}_{DEM}$ de 0,45, a une hauteur de 50 mm et un diamètre de 25 mm. Les dimensions de l'échantillon mère définissent aussi les limites des échantillons pouvant être simulés pour la compaction. En d'autres termes, bien qu'une géométrie souhaitée puisse être définie pour les simulations, cette géométrie ne peut pas dépasser les dimensions de l'échantillon mère. Les dimensions retenues permettent déjà de simuler une large gamme de géométries de comprimé.

Dans l'objectif de déterminer les paramètres matériau du modèle DEM, les dimensions de l'échantillon sont adaptées à celles de la géométrie utilisée par Pizette. La figure 3.7 illustre l'obtention de ce fichier de coordonnées.

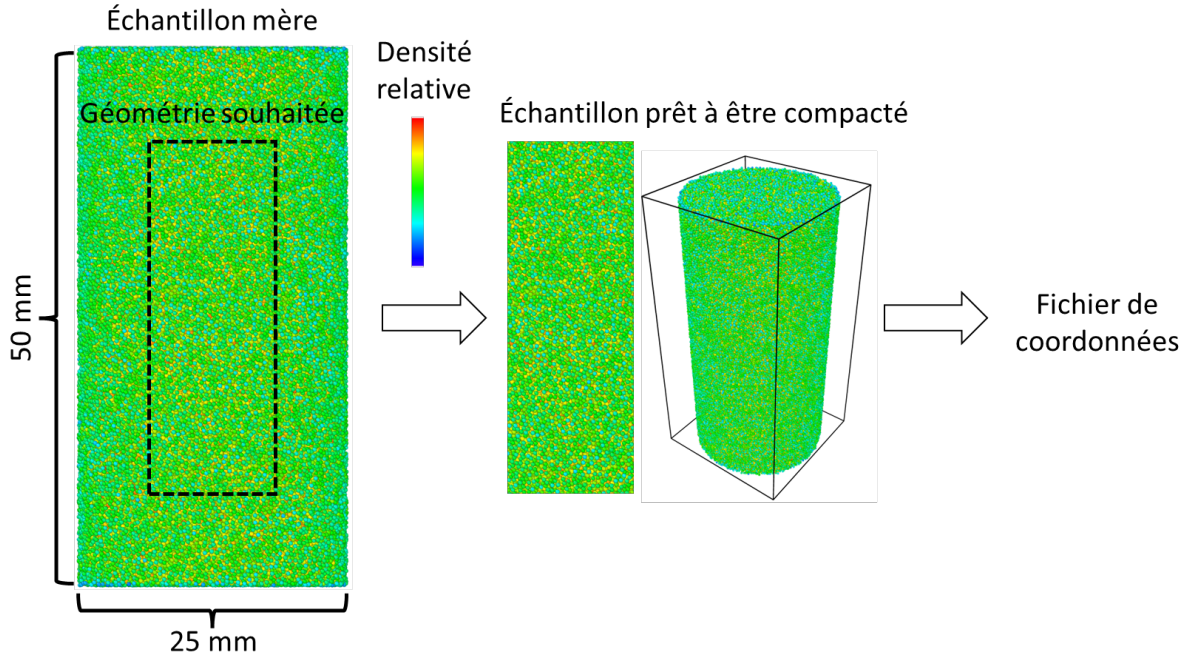

FIGURE 3.7 – Représentation schématique de la procédure d'obtention d'un échantillon numérique adapté à partir de l'échantillon mère.

3.2.2 Simulation des étapes de charge et décharge

Pour lancer une simulation avec le code dp3D, deux fichiers sont nécessaires : **input_dp3D** et un **fichier des coordonnées**. Le fichier input_dp3D (Fig. 2.13) spécifie les conditions de la simulation, les modèles utilisés, les paramètres matériau et les outputs.

La condition de terminaison pour la simulation de la charge est une densité relative $\tilde{\rho} = \tilde{\rho}_{DEM} \times \tilde{\rho}_{aggl} = 0.6$ qui correspond à la densité en fin de la charge des poudres étudiées par Pizette. Pour la décharge, la condition de terminaison est une déformation axiale, correspondant à celle réalisée pendant la décharge de Pizette (figure 3.6).

La vitesse de déformation axiale est appliquée uniquement au poinçon supérieur, la matrice et le poinçon inférieur restant fixes, configurant ainsi une cinématique à simple-effet.

Pour la charge et la décharge, la vitesse de déformation est constante et imposée à $1.E-05 s^{-1}$ pour assurer une simulation quasi-statique (avec changement de signe lors du passage de la charge à la décharge).

La décharge utilise le dernier fichier de coordonnées généré par la simulation de la charge.

Paramètres Matériau

Le fichier input_dp3D exige la spécification des paramètres nécessaires pour décrire à la fois la poudre (dans ce cas, les agglomérats d'UO_2) et les objets (poinçons et matrice). Lorsqu'un composite est simulé, comme ce sera le cas dans le chapitre 4 pour le MOX, les paramètres matériau de chaque agglomérat doivent également être renseignés.

La matrice et les poinçons sont en en carbure de tungstène [22]. On considère donc que la matrice et les poinçons ne peuvent se déformer plastiquement. Un module d'Young E, de 550 GPa a été adopté [102]. Une valeur de $\beta_2 = 2$ (Eq. (2.35)) a également été adoptée.

Les autres paramètres matériau doivent être déterminés par ajustement. Ces paramètres sont :

— le module d'Young E des agglomérats (Eq. (2.36)),

— le coefficient d'écrouissage plastique m (Eq. (2.31)),

— le paramètre plastique σ^* des agglomérats (Eq. (2.31)),

— le coefficient de frottement μ entre agglomérats (Eq. (2.40)),

— le coefficient de frottement μ entre un agglomérat et la paroi (Eq. (2.40)),

— la résistance à la traction σ_N des agglomérats (Eq. (2.38)).

La détermination de ces six paramètres matériau sera effectuée par un ajustement. La section 3.3 fournira des détails sur la manière de réaliser cet ajustement. Une fois ces paramètres matériau déterminés, la simulation de la charge et de la décharge pourra être effectuée.

Comparaison des Résultats DEM avec les Données Expérimentales

Comme discuté au début de ce chapitre, il est possible de comparer directement l'évolution de σ_{app}, σ_{trans} et σ_r avec les données expérimentales de P. Pizette, à partir des résultats de simulation de dp3D.

Cependant la comparaison des gradients de densité entre FEM et DEM est plus problématique. Les simulations FEM ont été réalisées en 2D axisymétrique, alors que les simulations DEM donnent des informations en 3D. Pour résoudre ce problème, un code Python a été développé dans le but de transformer les cartes de densité 3D en des représentations en 2D. Le fonctionnement de ce code est résumé ici :

1. **Génération de la Carte de Densité en 3D :** Tout d'abord, une méthode déjà abordée dans le chapitre 2, appelée tessellations de Voronoï [94], est utilisée. Cette méthode, initialement utilisée pour déterminer la densité locale $\tilde{\rho}_{DEM}$ des agglomérats dans le modèle, est ici employée pour générer les cellules de Voronoï, qui nous informent sur la densité locale en 3D.
2. **Division de l'Échantillon Numérique :** Pour passer de 3D en 2D, l'échantillon numérique est divisé en plusieurs couches et en plusieurs tores. Le nombre de

couches et de tores dépend de la résolution souhaitée pour notre carte de densité en 2D.

3. **Méthode de Monte Carlo :** Nous déterminons par la méthode de Monte Carlo, pour chaque tore, quelles sont les cellules qui le composent ainsi que leurs fractions volumiques.

4. **Calcul des Densités Moyennes :** Avec les fractions volumiques et la densité de chaque cellule, la densité moyenne pour chaque tore est calculée, représentant un pixel dans la carte de densité en 2D.

5. **Obtention de la Carte de Densité en 2D :** En moyennant chaque tore, une carte de densité en 2D est finalement obtenue.

Ces étapes pour constituer la carte de densité en 2D sont illustrées dans la figure 3.8.

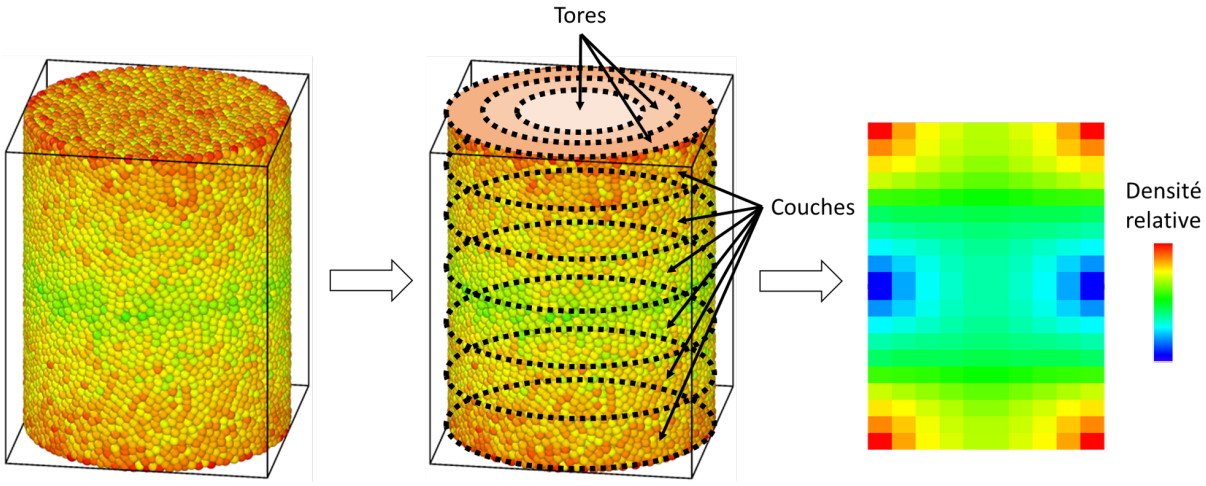

FIGURE 3.8 – Illustration du processus de transformation d'une carte de densité 3D en une carte de densité 2D. L'échantillon numérique est d'abord divisé en plusieurs couches et tores. Ensuite, la méthode de Monte Carlo est utilisée pour déterminer les cellules composant chaque tore et leurs fractions volumiques pour finalement calculer la densité moyenne de chaque tore, qui représente un pixel dans la carte de densité 2D.

3.3 Ajustement des Paramètres Matériau

L'objectif principal de cette section est de déterminer les paramètres matériau qui permettent de reproduire le comportement des agglomérats d'UO_2 observé expérimentalement. Comme mentionné précédemment, il s'agit d'un ensemble de six paramètres qui doivent être optimisés.

Une approche simple pour résoudre ce problème d'ajustement consisterait à ajuster manuellement chacun de ces paramètres, puis à lancer une simulation pour évaluer la qualité de l'ajustement. Les critères d'évaluation seraient basés sur la comparaison entre les résultats de la simulation (notamment les valeurs de σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité) et les données expérimentales, pendant les phases de charge et de décharge.

Toutefois, cette approche présente plusieurs inconvénients majeurs :

— Le nombre de paramètres à optimiser est relativement élevé (six dans notre cas), ce qui rend l'espace des paramètres complexe et difficile à explorer manuellement.

— Chaque simulation est coûteuse en temps de calcul. Dans notre cas, une seule simulation prend environ une journée, ce qui rend cette approche manuelle non seulement exigeante en temps, mais aussi très difficile à mettre en pratique.

— Cette méthode ne garantit pas de trouver la solution optimale, mais seulement une solution qui semble satisfaisante. Elle introduit donc une forte dose d'arbitraire.

En raison de ces contraintes, il est nécessaire de recourir à des méthodes d'ajustement plus systématiques et automatisées, capables de naviguer efficacement dans l'espace des paramètres et de trouver une solution qui soit à la fois physiquement cohérente et en adéquation avec les données expérimentales.

Plusieurs méthodes d'ajustement peuvent être envisagées pour résoudre ce problème [103, 104, 105, 106], parmi lesquelles :

— Ajustement par grille,

— Ajustement par méthodes de descente de gradient,

— Ajustement par Algorithmes Évolutionnaires,

— Ajustement par Apprentissage Machine.

Deux revues de ces différentes méthodes ont été proposées, l'une par R. Marler et al.[107] et l'autre par A. Nguyen et al.[108].

3.3.1 Ajustement par Grille

L'optimisation par grille, également connue sous le nom de "grid search", est l'une des méthodes les plus simples et les plus directes pour identifier les meilleurs paramètres pour un modèle [109]. Elle consiste à créer une grille multidimensionnelle des paramètres à optimiser (6 dimensions dans notre cas) et à évaluer la fonction objectif à chaque point de cette grille. La fonction objectif (voir l'annexe A) est une métrique qui quantifie à quel point une solution donnée est proche de l'optimal.

Bien que cette méthode soit facile à comprendre et à mettre en œuvre, elle présente des inconvénients majeurs, en particulier en termes d'efficacité. Le nombre de simulations nécessaires augmente selon N^P, où N est le nombre de points dans la grille et P est le nombre de paramètres [109]. Par conséquent, une légère augmentation du nombre de paramètres ou de points peut entraîner une augmentation significative du temps de calcul. Dans notre cas, avec 6 paramètres et une grille de 10 points pour chaque paramètre, cela nécessiterait 10^6 simulations, ce qui est infaisable.

Réduire le nombre de points pour accélérer le processus peut compromettre la validité de la solution. En d'autres termes, un compromis doit être trouvé entre la précision de la solution et le temps de calcul. La recherche sur grille est donc souvent considérée comme inefficace, en particulier pour les problèmes à haute dimension comme le nôtre.

3.3.2 Ajustement par Méthodes de Descente de Gradient

Les méthodes de descente de gradient sont des techniques d'optimisation qui utilisent le gradient de la fonction objectif pour guider la recherche d'un minimum. Le

gradient est essentiellement une mesure de la pente ou de la direction dans laquelle la fonction augmente le plus rapidement. En utilisant cette information, la méthode ajuste itérativement les paramètres dans la direction opposée au gradient, c'est-à-dire vers la direction où la fonction diminue le plus rapidement, dans le but de trouver un minimum (si l'objectif était de maximiser la fonction, on se déplacerait dans la direction du gradient plutôt que dans la direction opposée) [104, 107].

Bien que ces méthodes soient souvent plus rapides que d'autres techniques d'optimisation, elles peuvent être lentes dans des contextes où chaque évaluation de la fonction objectif est coûteuse en temps. En effet, étant donné leur nature itérative, chaque étape dépend de la précédente, ce qui signifie que les évaluations ne peuvent pas être effectuées en parallèle. Dans notre cas, où une simulation DEM est nécessaire pour chaque évaluation, cela peut entraîner des temps de calculs cumulés considérables.

Une autre difficulté avec les méthodes de descente de gradient est qu'elles trouvent souvent des minima locaux, et il n'y a aucune garantie qu'elles identifient le minimum global, en particulier pour les fonctions non convexes [104].

Il est également important de noter que ces méthodes nécessitent que la fonction objectif soit différentiable.

3.3.3 Ajustement par Algorithmes Évolutionnaires

Les algorithmes évolutionnaires, telles que les algorithmes génétiques (AG), sont des méthodes d'optimisation inspirées des mécanismes de la sélection naturelle, tel que proposé par la théorie de l'évolution de Charles Darwin. Ces méthodes sont particulièrement adaptées aux problèmes d'ajustement de grande dimension et non-convexes [105]. Elles sont capables d'explorer un grand espace de solutions possibles de manière plus efficace que l'ajustement par grille, et ne nécessitent pas que la fonction objectif soit différentiable.

Un AG fonctionne en suivant principalement quatre étapes [105] :

— **Création de la population** : Une population initiale d'individus, appelés "chromosomes", est générée. Chaque chromosome représente une solution possible

au problème d'optimisation et est composé d'un ensemble de paramètres, appelés "gènes" (figure 3.9). La génération initiale peut être aléatoire, couvrant ainsi une vaste gamme de solutions potentielles. Une grande diversité de cette population est souhaitable, mais une population excessive peut entraîner une augmentation importante des temps de calcul.

— **Sélection naturelle** : Après une évaluation basée sur une fonction objectif, seuls les meilleurs individus sont sélectionnés pour la reproduction.

— **Croisement (Reproduction)** : Les individus sélectionnés sont croisés entre eux pour produire la prochaine génération. Les chromosomes des descendants sont un mélange des gènes des parents. Dans certains AG, deux parents sont couramment utilisés pour générer un descendant, bien que des variantes puissent permettre plusieurs parents.

— **Mutation** : Pour maintenir la diversité génétique au sein de la population, des mutations aléatoires sont introduites dans les gènes des descendants.

Ce processus est répété sur plusieurs générations jusqu'à ce qu'un critère d'arrêt soit atteint, comme un nombre maximal de générations ou une valeur cible pour la fonction objectif.

FIGURE 3.9 – Représentation des gènes et chromosomes dans une population.

En résumé, les AG offrent une approche robuste et adaptable pour trouver des solutions optimales ou quasi-optimales à des problèmes complexes, en simulant le processus évolutif naturel.

Dans le cadre de cette thèse, les algorithmes génétiques ont été utilisés lors de la première année pour valider un modèle préliminaire, qui était alors plus simple que la

version actuelle. Ce premier ajustement s'est concentré sur les valeurs de contraintes sans prendre en compte la carte de densité en fin de compaction. Cette approche combinait l'ajustement par algorithmes génétiques avec un ajustement manuel pour prendre en compte la carte de densité. Les résultats de cette première phase d'ajustement ont été publiés et peuvent être consultés dans l'article suivant : [110].

3.3.4 Ajustement par Apprentissage Machine

Arthur Samuel, l'un des pionniers de l'apprentissage machine, notamment reconnu pour ses travaux sur les programmes d'échecs auto-apprenants, a défini en 1959 ce domaine comme étant celui qui "donne aux ordinateurs la capacité d'apprendre sans être explicitement programmés" [111]. En d'autres mots, au lieu d'être explicitement programmés pour effectuer une tâche, ces systèmes analysent les données et apprennent des tendances pour prendre des décisions.

Le choix de procéder à l'ajustement par apprentissage machine a été fait pour plusieurs raisons. L'un des principaux avantages de cette méthode est sa flexibilité. Une fois la base de données établie, il est possible d'ajuster le modèle à différentes poudres nucléaires, telles que la poudre UO_2 VS ou la poudre MOX, sans nécessiter de nouvelles simulations coûteuses. Il suffit d'entraîner un nouveau modèle, ce qui ne prend que quelques dizaines de minutes en temps CPU.

Pour cette étude, l'apprentissage supervisé a été choisi comme méthode d'ajustement par apprentissage machine. Dans cette approche, le modèle est entraîné en utilisant un ensemble de données d'entrée (à savoir, les six paramètres matériau) pour lequel les sorties correctes sont connues (σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité). Le modèle apprend à partir de cette paire d'entrées-sorties jusqu'à ce qu'il puisse faire des prédictions précises sur de nouvelles données. Une fois le modèle entraîné, il est possible de déterminer l'ensemble des 6 paramètres matériau qui donnent des sorties qui s'approchent le plus de la poudre expérimentale.

L'ajustement par apprentissage machine dans notre contexte utilise un apprentissage par lots ("batch learning" en anglais). Cela signifie que le système est entraîné en

utilisant l'ensemble des données disponibles en une seule fois, au lieu de recevoir les données séquentiellement comme dans l'apprentissage incrémental (ou "online learning" en anglais) [112].

De plus, notre approche est basée sur des modèles ("model-based" en anglais). Cela signifie que des modèles prédictifs sont utilisés pour faire des inférences à partir des données. En contraste, les méthodes basées sur des instances ("instance-based" en anglais) font des prédictions en se basant directement sur les exemples de données précédemment observés, sans créer un modèle explicite [106].

Les étapes typiques d'un processus d'apprentissage machine sont les suivantes [106] :

1. Cadrer le problème et avoir une vision globale.
2. Obtenir les données.
3. Explorer les données pour en tirer des informations.
4. Préparer les données pour les algorithmes d'apprentissage machine.
5. Explorer et sélectionner les meilleurs modèles.
6. Affiner le modèle pour obtenir une solution optimale.
7. Présenter la solution.
8. Lancer le modèle.

Cadrer le problème et avoir une vision globale

Avant de se concentrer sur les détails techniques relatifs à l'ajustement par apprentissage machine, il est essentiel de cadrer le problème et d'avoir une vision globale. Bien que certains points aient déjà été abordées, notamment concernant le type d'apprentissage machine choisi et les autres méthodes d'ajustement existantes, il reste des éléments clés à clarifier.

Objectif L'objectif principal est de créer un modèle numérique des agglomérats de poudres d'UO_2. Plus précisément, nous souhaitons développer un modèle capable de déterminer les six paramètres matériau qui, lorsqu'ils sont insérés dans le code dp3D,

produisent des valeurs de σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et du gradient de densité se rapprochant le plus de celles observées expérimentalement pour la poudre d'UO_2.

Stratégie Pour atteindre cet objectif, il est judicieux de décomposer le problème en étapes plus simples à gérer et qui sont résumées sur la figure 3.10.

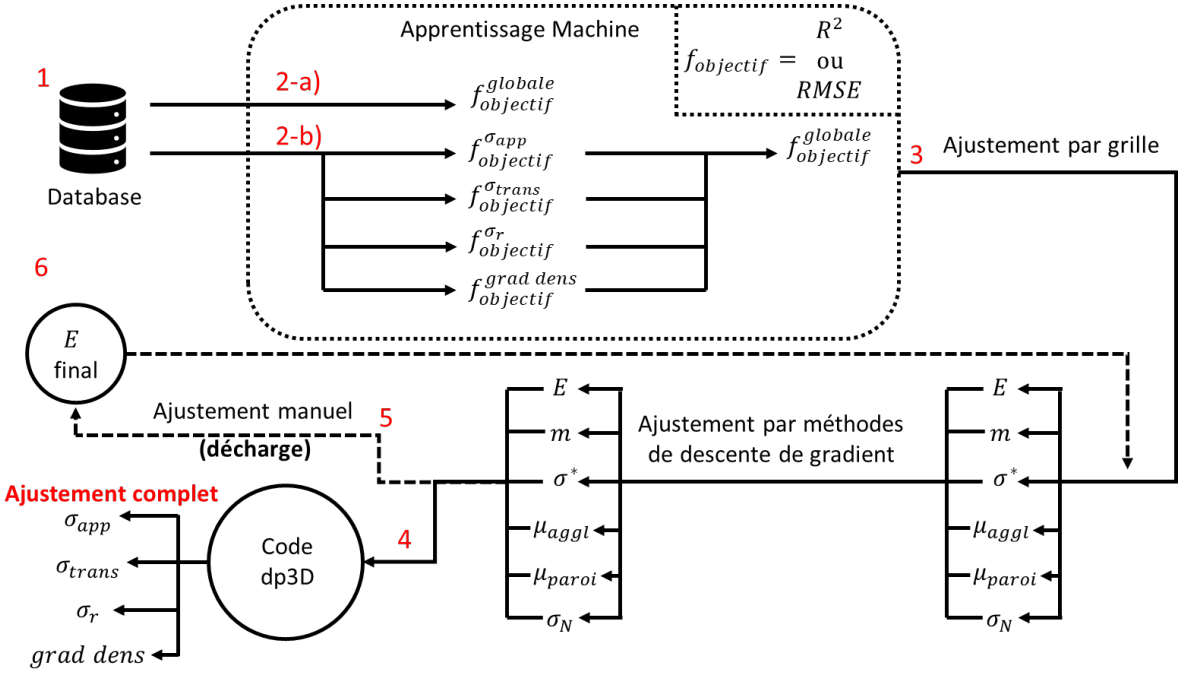

FIGURE 3.10 – Schéma représentant les différentes étapes de l'ajustement par apprentissage machine pour les agglomérats de poudres d'UO_2. Les étapes vont de la séparation des phases de charge et de décharge, à la prédiction d'une sortie unique, en passant par l'ajustement des paramètres et la simulation DEM complète, jusqu'à l'harmonisation des phases de charge et de décharge. Cette approche structurée permet une meilleure compréhension et une mise en œuvre efficace de l'ajustement.

1. Séparation des étapes de charge et de décharge : Plutôt que de traiter simultanément ces deux étapes, nous commencerons par nous concentrer sur l'étape de charge. Cette approche séquentielle permettra une meilleure maîtrise des paramètres et des résultats à chaque étape.
2. Prédiction d'une sortie unique : Au lieu de prédire plusieurs courbes comme σ_{app}, σ_{trans}, σ_r, et le gradient de densité, nous simplifions le modèle en prédisant une seule métrique. Cette métrique, qui peut être un R-carré ou un RMSE (voir annexe A) entre la simulation et les données de P. Pizette, servira d'indicateur de la proximité des paramètres simulés par rapport aux données expéri-

mentales. Non seulement cela simplifie le modèle, mais cela réduit également la taille nécessaire de la base de données.

Ce modèle visant à prédire une unique métrique, nommée "fonction objectif", peut être conceptualisé de deux manières différentes :

(a) Un modèle unique : Un seul modèle prédit la fonction objectif globale basée sur les quatre sorties (σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité).

(b) Un ensemble de modèles : Quatre modèles distincts sont entraînés, chacun se concentrant sur la prédiction de la fonction objectif pour une sortie spécifique. Cette approche, bien que plus complexe, offre plusieurs avantages. D'une part, elle permet de fournir des informations détaillées sur la manière dont chaque sortie évolue en fonction des variations des six paramètres. D'autre part, elle offre la flexibilité d'attribuer des poids différents aux fonctions objectifs lors de la détermination de la fonction objectif globale. Cette différenciation des poids peut être justifiée par l'importance relative de chaque ajustement. Par exemple, on pourrait décider d'attribuer un poids plus faible à l'ajustement du σ_r, car les données expérimentales pour cette mesure radiale sont moins précises.

    La fonction objectif globale peut ensuite être obtenue en moyennant les fonctions objectifs des quatre modèles en tenant compte de ces poids. Toutefois, une attention particulière doit être accordée à cette moyenne, car les fonctions objectifs peuvent avoir des échelles différentes. Par exemple, si le RMSE est utilisé, il est nécessaire de le normaliser. Si le R-carré est utilisé, ce problème ne se pose pas car il a toujours une même échelle avec une valeur maximale de 1.

3. Une fois ce modèle de prédiction de la fonction objectif bien établi et précis, nous pouvons passer à l'étape suivante : identifier les six paramètres matériau qui correspondent le mieux à la poudre expérimentale. C'est l'essence même de l'ajustement. Pour cette étape, nous avons opté pour un ajustement par grille. Cette méthode est particulièrement adaptée ici car le modèle ob-

tenu par apprentissage machine prédit la fonction objectif en quelques millisecondes pour un ensemble de 6 paramètres. Cette rapidité permet l'utilisation d'une méthode d'ajustement plus simple. Pour affiner davantage les résultats obtenus par l'ajustement par grille, la fonction "minimize" de la bibliothèque "scipy.optimize" est utilisée. Cette fonction utilise des techniques d'optimisation basées sur des méthodes de descente de gradient [113], qui exploitent les dérivées de la fonction à optimiser pour guider la recherche vers un minimum. Dans notre contexte, elle aidera à affiner davantage les paramètres pour obtenir la meilleure correspondance possible avec les données expérimentales.

4. Après avoir déterminé l'ensemble optimal des 6 paramètres pour la phase de charge, une simulation DEM complète est effectuée. Cette simulation fournit les courbes de contraintes en fonction de la densité ainsi que le gradient de densité pour la phase de charge.

5. Une fois la phase de charge ajustée, nous nous concentrons sur l'ajustement de la phase de décharge. Cette étape est relativement simple. En effet, les courbes de sortie (voir figure 3.6) dépendent principalement du module d'Young. Cela signifie que nous n'avons besoin que d'une base de données très restreinte, avec seulement quelques dizaines de simulations, car seul le module d'Young varie. Pour constituer cette base de données, uniquement la phase de décharge est simulée en faisant varier le module d'Young. L'ajustement peut alors être effectué manuellement, étant donné le faible nombre de simulations.

6. Il est important de noter qu'à ce stade, la phase de charge est ajustée avec un ensemble de paramètres différent de celui de la phase de décharge, car le module d'Young a été modifié. Pour harmoniser les deux phases, une fois l'ajustement manuel de la décharge effectué, l'ajustement de la charge est répété, mais en fixant le module d'Young obtenu pendant l'ajustement de la décharge. Cela garantit que la décharge présente essentiellement le même comportement, même si les cinq autres paramètres matériau ont été modifiés par rapport au premier ajustement de la charge. Cette hypothèse peut être vérifiée en simulant à nou-

veau la décharge. Au final, un ajustement cohérent pour les deux phases, charge et décharge, est obtenu.

En adoptant cette approche structurée, il est possible de mieux naviguer dans les complexités du problème et de progresser de manière systématique vers notre objectif.

Obtenir les données

L'acquisition de données, en l'occurrence les simulations DEM, constitue l'étape la plus importante dans la mise en œuvre du modèle d'apprentissage machine [106]. La qualité et la quantité des données déterminent en grande partie la performance du modèle. Des données bien choisies et représentatives permettent d'entraîner un modèle robuste et précis, capable de généraliser à de nouvelles situations. À l'inverse, des données insuffisantes ou mal adaptées peuvent conduire à un modèle surajusté ou sous-performant [106].

Au sein du groupe GPM2 de SIMaP, nous disposons d'un cluster composé d'environ 20 nœuds. Bien que ces nœuds aient des configurations variées, en moyenne, chaque nœud est capable d'exécuter 3 simulations simultanément. Cela donne une capacité de 60 simulations en parallèle, soit 120 simulations environ par jour. Pour constituer une base de données de 3000 simulations, considérée comme relativement modeste, il faudrait mobiliser le cluster pendant près de 25 jours.

Face à cette contrainte temporelle, une alternative est d'exploiter le cluster Dahu de GRICAD (voir documentation). Accessible aux étudiants et au personnel de l'Université Grenoble Alpes (UGA), ce cluster, géré par OAR, offre des milliers de nœuds. Il permet de lancer environ 1000 simulations par jour. Grâce à cette puissance de calcul, nous avons opté pour une base de données plus large, avec près de 10 000 simulations, ce qui représente 10 jours d'acquisition.

Le choix du nombre de simulations est en partie arbitraire. Si le modèle ne parvient pas à prédire efficacement la fonction objectif, cela pourrait indiquer la nécessité d'acquérir davantage de données [114]. Dans les perspectives futures, il serait souhaitable d'envisager l'acquisition d'une base de données encore plus vaste afin d'améliorer la

précision du modèle.

Avant de lancer ces 10 000 simulations, il est essentiel de définir la méthode de variation des six paramètres matériau. D'abord, une plage de variation pour chaque paramètre a été fixée. La détermination de cette plage peut s'appuyer sur des critères physiques (plage raisonnable pour les paramètres matériau). Par exemple, une limite supérieure de 1 pour le paramètre m (Eq. (2.31)) est choisie pour rester dans le cadre d'un matériau au comportement plastique standard. La détermination de cette plage peut aussi s'appuyer sur notre propre expérience avec les simulations DEM qui, selon notre jugement, produisent de bons résultats. Par "bons résultats", nous entendons des simulations qui correspondent aux données expérimentales. Il est tout à fait possible qu'en explorant d'autres plages, un ensemble de paramètres offrant une meilleure correspondance avec les données expérimentales puisse être trouvé. Toutefois, ce choix a été fait en raison de la taille limitée de notre base de données. Il est donc essentiel de se concentrer sur une plage où il est le plus probable de trouver les meilleurs résultats. Les plages choisies sont les suivantes :

— E : [1, 100] GPa
— σ^* : [10, 1000] MPa
— m : [0.6, 1]
— σ_N : [0.1, 100] GPa
— μ_{paroi} : [0.1, 0.4]
— μ_{aggl} : [0.0, 0.2]

La méthode choisie pour générer l'ensemble des paramètres matériau pour les 10 000 simulations est le "Latin Hypercube Sampling" (LHS). Le principe de cette méthode est de diviser chaque dimension (dans notre cas, six dimensions) en intervalles égaux et de garantir que chaque intervalle est échantillonné une seule fois [115]. Cela permet de s'assurer que l'espace des paramètres est échantillonné de manière uniforme et que l'échantillonnage est bien réparti [115].

La principale différence entre le LHS et une méthode comme Monte Carlo [116] est que, tandis que Monte Carlo échantillonne de manière aléatoire et peut donc échan-

tillonner de manière répétée des régions de l'espace des paramètres, le LHS garantit une couverture uniforme de l'espace.

Concernant la gestion de la mémoire, il est à noter que les simulations sont particulièrement lourdes en ressources. Ainsi, pour optimiser l'espace de stockage, une fois qu'une simulation est réalisée, seules les données les plus importantes sont conservées. Il s'agit des quatre sorties principales ainsi que des fichiers input_dp3D et des coordonnées initiales. Cette précaution permet, si nécessaire, de relancer la simulation ultérieurement. Les quatre sorties principales (σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité) seront comparées avec les données de P. Pizette à fin de générer dans la base de données, RMSE et R-carré pour chaque simulation.

Pour exécuter ces nombreuses simulations, un code Python a été élaboré permettant d'automatiser cette tâche. Ce code est conçu pour générer à la fois le fichier de coordonnées et le fichier `input_dp3D`. De plus, il gère une base de données SQLite afin d'éviter les conflits d'écriture qui pourraient survenir lorsque plusieurs simulations tentent d'écrire simultanément dans la base de données.

Suite à l'acquisition de la base de données, il est essentiel de déterminer le jeu de test, ou "test set" en anglais. Le jeu de test est un sous-ensemble de la base de données initiale qui est mis de côté et non utilisé lors de l'entraînement du modèle d'apprentissage machine [117]. La raison principale de cette séparation est de pouvoir évaluer la performance du modèle sur des données qu'il n'a jamais vues auparavant, garantissant ainsi une évaluation impartiale de sa capacité à généraliser à de nouvelles données. En d'autres termes, alors que le jeu d'entraînement (ou "train set") est utilisé pour "apprendre" et ajuster le modèle, le jeu de test sert à tester la précision et la robustesse du modèle dans des conditions réelles et inédites [117].

Exploration des données pour en extraire des informations

L'Analyse Exploratoire des Données, ou "EDA" pour Exploratory Data Analysis [118] en anglais, permet de comprendre la nature et la structure des données, d'identifier d'éventuelles anomalies et de déceler des tendances ou des relations entre les va-

riables. Voici les méthodes utilisées lors de cette phase :

Matrice de corrélation visualisée sous forme de heatmap : Cette visualisation permet d'identifier rapidement les relations linéaires entre les variables. Une forte corrélation entre deux variables peut indiquer une redondance ou une multicollinéarité, ce qui peut être important lors de la sélection des caractéristiques pour l'apprentissage machine [119].

La figure 3.11 présente la matrice de corrélation entre les six paramètres matériau.

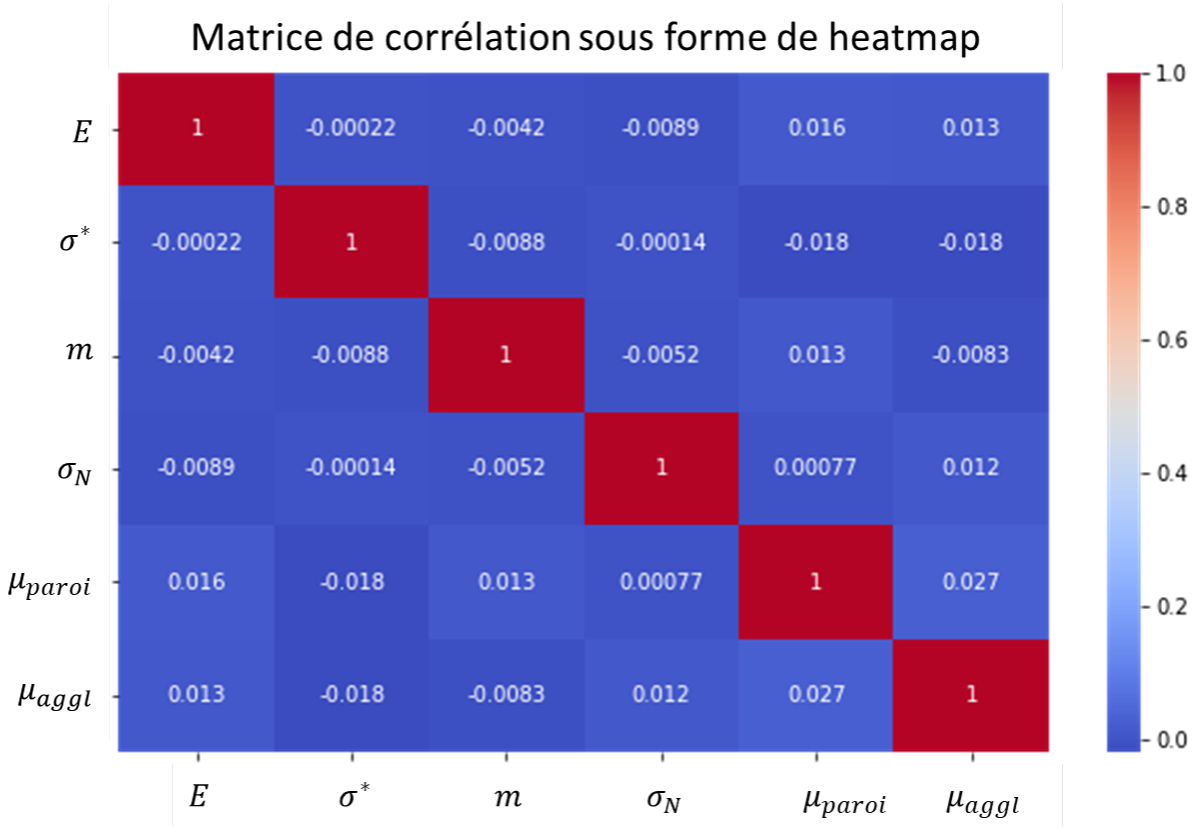

FIGURE 3.11 – Matrice de corrélation entre les six paramètres matériau.

Comme le montre clairement cette figure, il n'y a pas de corrélation forte entre les paramètres matériau, car les coefficients de corrélation sont très faibles. Bien que certaines corrélations négatives soient observées, elles sont négligeables en raison de leur faible magnitude. Une corrélation négative indique que lorsque la valeur de l'une des variables augmente, l'autre tend à diminuer, et vice versa. Cependant, dans ce contexte, ces faibles valeurs signifient qu'il n'y a pas de relation linéaire significative entre ces paramètres. La seule valeur qui se distingue légèrement est la corrélation

entre μ_{aggl} et μ_{paroi}, avec un coefficient de 0,027. Bien que cette valeur soit légèrement plus élevée que les autres, elle reste faible et peut généralement être considérée comme négligeable. Cela suggère que les paramètres matériau sont indépendants les uns des autres, ce qui est bénéfique car cela signifie que chaque paramètre apporte des informations uniques au modèle et évite les problèmes de multicollinéarité lors de la modélisation.

Pair Plot : Il s'agit d'une matrice de graphiques de dispersion permettant de visualiser les relations bivariées entre chaque paire de caractéristiques. Cela aide à comprendre les relations linéaires et non linéaires entre les variables [120, 106].

La figure 3.12 présente les pair plots pour nos six paramètres matériau. Dans notre cas, les graphiques montrent une dispersion homogène des points, ce qui indique l'absence de relations linéaires et non linéaires évidentes entre les paramètres. Cela suggère que les variations d'un paramètre ne sont pas systématiquement associées à des variations spécifiques d'un autre paramètre. Cette observation est cohérente avec les faibles coefficients de corrélation observés précédemment dans la matrice de corrélation.

Les graphiques présents sur la diagonale représentent les distributions univariées de chaque paramètre sous forme d'histogrammes. Ces histogrammes montrent la distribution des valeurs pour un paramètre donné. Dans notre cas, ils confirment que les données pour chaque paramètre sont bien réparties sur l'ensemble de la plage définie avec une distribution homogène, ce qui est conforme à notre méthode de génération de données. Cette homogénéité est généralement favorable à l'apprentissage machine, évitant les biais et permettant une meilleure généralisation du modèle.

Pour clarifier, si une corrélation forte existait entre deux paramètres, nous nous attendrions à voir une tendance claire dans le graphique de dispersion, où les points s'aligneraient le long d'une ligne ou d'une courbe spécifique. Un exemple fictif illustrant une telle corrélation forte est présenté en annexe B.1.

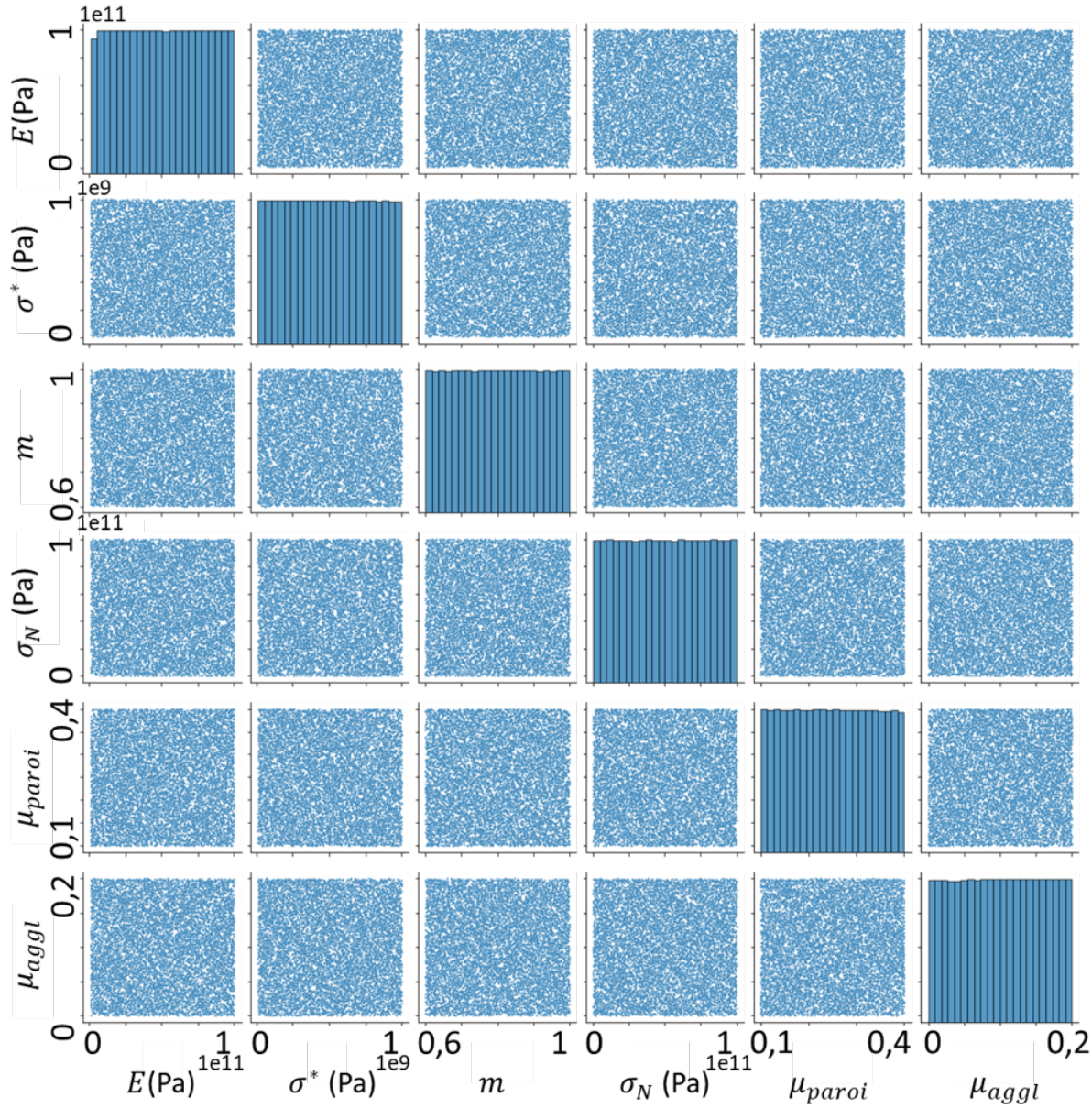

FIGURE 3.12 – Pair plot illustrant les relations bivariées entre les six paramètres matériau.

Des **Box Plots** ont également été réalisés pour visualiser la distribution des paramètres matériau. Cependant, étant donné que ces résultats ne fournissent pas d'informations substantiellement différentes par rapport à ce qui a déjà été présenté, ils ont été inclus en annexe B.2 pour une consultation optionnelle.

Graphiques de dispersion entre les caractéristiques et la variable cible : Ces graphiques permettent d'analyser la relation entre chaque variable d'entrée et la variable cible. La variable cible, également appelée valeur à prédire, représente ce que le modèle cherche à prédire à partir des données d'entrée [121].

Diverses analyses peuvent être menées à partir de ces graphiques. La variable cible peut correspondre à ce que la fonction objectif globale tente de prédire, c'est-à-dire la moyenne des valeurs σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et du gradient de densité. Elle peut également correspondre à ce que les fonctions objectif intermédiaires cherchent à estimer, soit individuellement σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité. Ces relations peuvent être évaluées en utilisant le RMSE (normalisé) ou le R-carré comme métrique de performance.

En raison de la similitude des résultats obtenus pour les variables cibles intermédiaires avec ceux de la variable cible globale, nous mettons principalement l'accent sur les résultats de la variable cible globale, évalués à l'aide du RMSE normalisé. Cependant, les résultats relatifs à la variable cible intermédiaire pour le gradient de densité seront également présentés, car ils se distinguent des autres et requièrent une analyse spécifique.

La figure 3.13 présente le RMSE normalisé moyen pour chaque paramètre matériau. Pour les paramètres E, σ_N, μ_{paroi} et μ_{aggl} : les points sont dispersés de manière assez uniforme sur l'ensemble du graphique, sans montrer de tendance claire. Cependant, une concentration accrue de points est observée lorsque la variable cible approche de zéro, indiquant une erreur moindre. Cela suggère que, pour ces paramètres, il existe de nombreuses combinaisons qui peuvent conduire à des erreurs faibles, mais aucune tendance spécifique n'est discernable.

Pour le paramètre m : le graphique présente une concentration de points vers le bas à mesure que m augmente. Cette tendance suggère qu'une augmentation de la valeur de m est généralement associée à une réduction de l'erreur. En d'autres termes, des valeurs plus élevées de m semblent favoriser des prédictions plus précises. Toutefois, il est à noter que sur l'ensemble de la plage de m, il est possible de trouver des solutions avec une grande précision (erreur proche de zéro), indiquant que d'autres facteurs ou combinaisons de paramètres peuvent également jouer un rôle significatif dans la détermination de la précision.

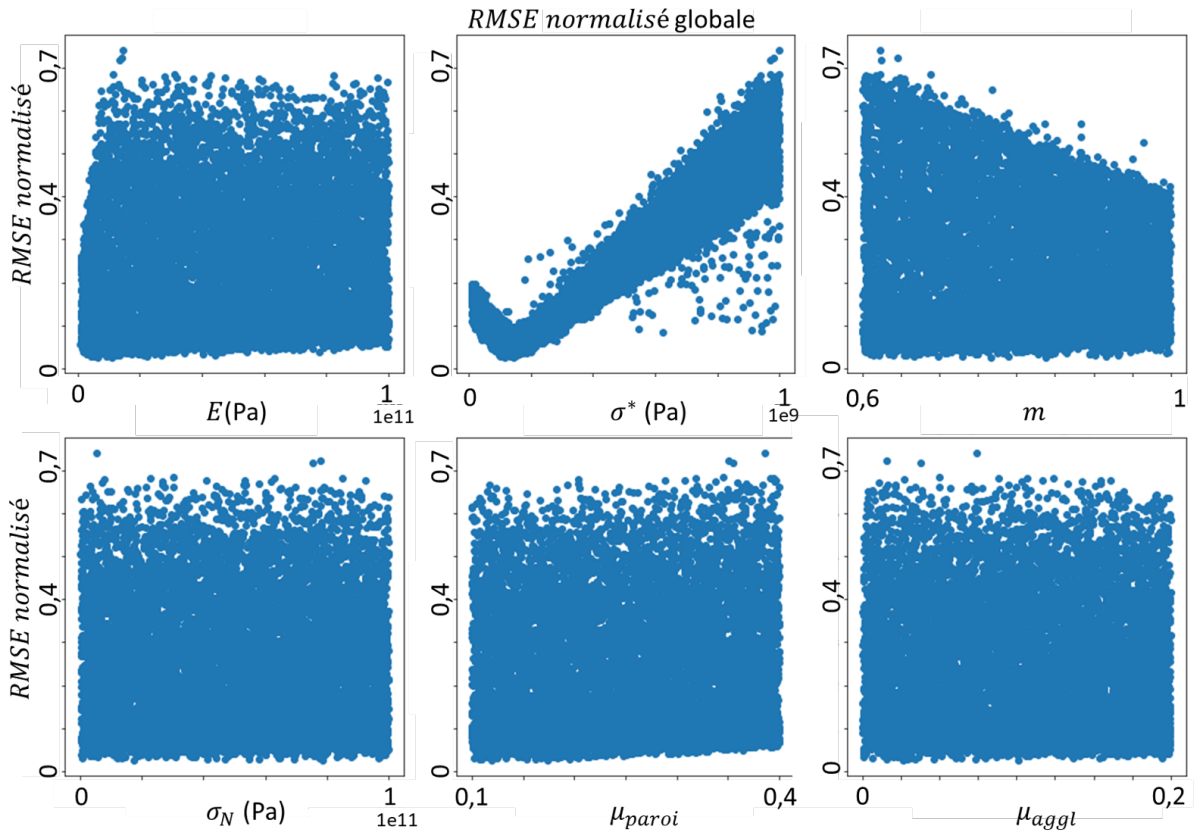

FIGURE 3.13 – Graphiques de dispersion illustrant le RMSE normalisé global en fonction des six paramètres matériau.

Pour le paramètre σ^* : Ce graphique est le plus complexe des six. On observe des zones vides en haut et en bas du graphique. À mesure que σ^* augmente, l'erreur diminue, atteignant un minimum autour de 150 MPa. Cependant, après ce point, non seulement l'erreur recommence à augmenter, mais la plage d'erreurs possibles s'élargit également. Cela pourrait indiquer que, dans une certaine plage de valeurs pour σ^* (entre environ 100 et 200 MPa), le modèle est plus précis, mais au-delà de cette plage, la précision diminue et la variabilité des erreurs augmente.

La figure 3.14 présente le RMSE normalisé du gradient de densité pour chaque paramètre matériau.

L'échelle d'erreur pour ces paramètres est nettement plus restreinte que celle observée pour le RMSE normalisé global. Cette observation peut être attribuée à la nature de la carte de densité : les variations induites par les changements de paramètres matériau sont plus prononcées à l'interface poudre-matrice qu'à l'intérieur de la carte.

Comme cette interface poudre-matrice ne représente qu'une petite portion de la carte de densité, le gradient de densité dans son ensemble tend à avoir une erreur plus petite.

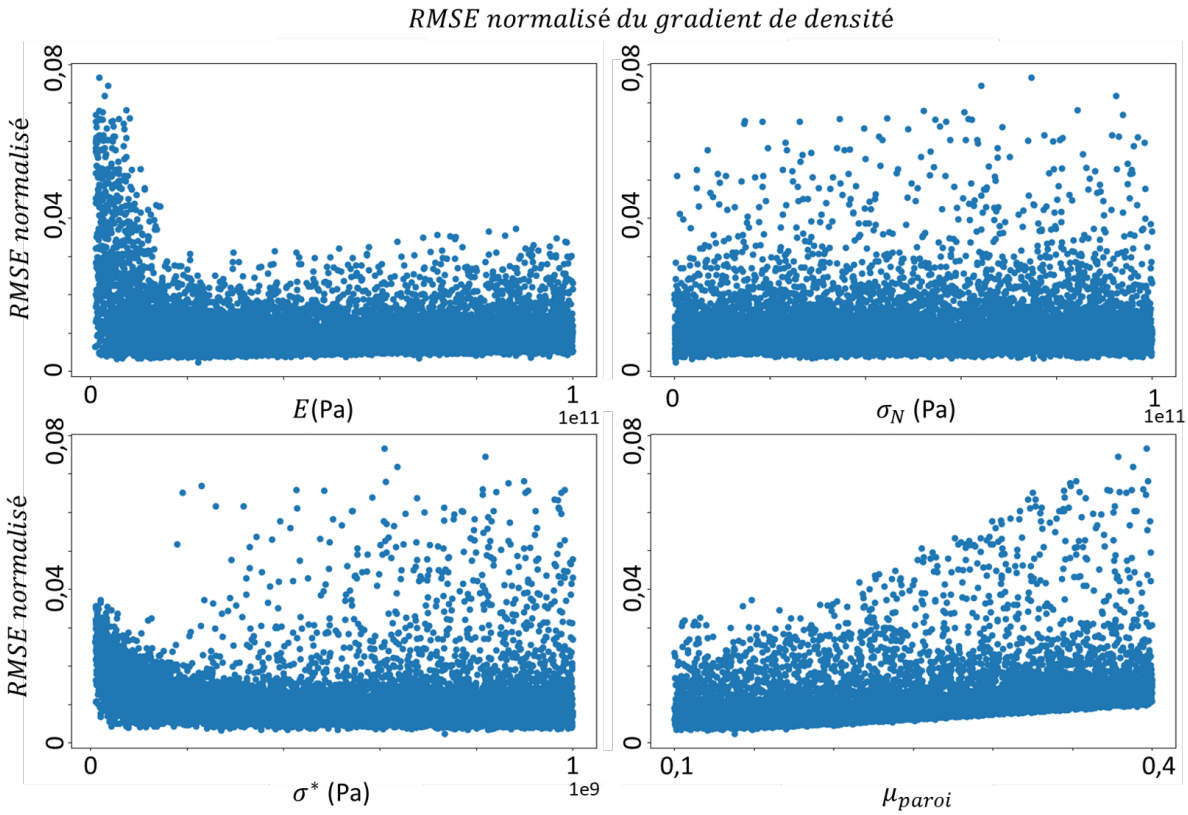

FIGURE 3.14 – Graphiques de dispersion illustrant le RMSE normalisé du gradient de densité en fonction des quatre paramètres matériau. Les paramètres μ_{aggl} et m ne sont pas représentés car ils affichent un comportement similaire à celui du paramètre σ^*.

Les paramètres σ_N, μ_{aggl} et m montrent une distribution relativement uniforme sur la plage simulée. L'interprétation de leur comportement peut être faite de la même manière que celle réalisée pour l'image précédente concernant les paramètres E, σ_N, μ_{paroi} et μ_{aggl}.

Pour le paramètre E, sur l'ensemble de la plage considérée, il est possible de trouver des solutions pour l'ajustement de la carte de densité avec une faible erreur. Toutefois, une dispersion accrue de l'erreur est observée pour les valeurs plus petites de E. Cette dispersion pourrait indiquer une sensibilité accrue du modèle à de faibles valeurs de E, ou que le modèle est capable de s'adapter à une gamme plus large de comportements lorsque E est faible.

Le paramètre σ^* présente un comportement similaire à E, mais avec quelques points nettement dispersés pour les valeurs élevées de σ^*. Cela pourrait indiquer une insuffisance de données pour ces valeurs ou une tendance générale à des erreurs réduites à mesure que σ^* augmente, malgré quelques exceptions.

Quant au paramètre μ_{paroi}, il montre une tendance à des erreurs réduites pour les valeurs inférieures, mais une plus grande variabilité d'erreur pour les valeurs supérieures.

Préparation des données pour les algorithmes d'apprentissage machine

La préparation des données garantit que les données sont formatées, nettoyées et structurées de manière optimale pour l'entraînement des modèles. Dans notre cas, plusieurs des étapes typiques de préparation des données ont été omises en raison de la nature de notre source de données.

Absence de transformation des données : Contrairement à de nombreux ensembles de données qui nécessitent des transformations pour corriger les biais, les incohérences ou les valeurs aberrantes, les données étaient déjà d'une grande propreté. Cela est principalement dû au fait que des simulations ont été utilisées pour acquérir les données. Les simulations, par leur nature, permettent un contrôle précis des paramètres et des conditions, garantissant ainsi des données cohérentes et sans bruit. Le "bruit" est généralement absent dans les données simulées car elles sont générées dans un environnement contrôlé, sans les perturbations aléatoires souvent présentes dans les mesures expérimentales.

Mise à l'échelle des paramètres matériau (Feature Scaling) : Bien que nos données soient propres, nous avons tout de même procédé à une mise à l'échelle des paramètres matériau. Cette étape consiste à ajuster les valeurs des paramètres matériau pour qu'elles se situent dans une plage similaire, généralement entre 0 et 1 [106, 122]. Cette étape est bénéfique car elle peut améliorer la performance de nombreux algorithmes d'apprentissage machine [123]. Une fois le modèle obtenu, il est possible d'inverser cette mise à l'échelle pour obtenir des prédictions dans l'échelle d'origine.

Transformation de la variable cible R-carré : À la fois le R-carré et le RMSE ont été utilisés comme variables cibles pour la fonction objectif. Lors de l'utilisation du R-carré, une stratégie spécifique a été adoptée pour améliorer les performances : toutes les valeurs de R-carré inférieures à zéro ont été remplacées par zéro. Cette transformation a permis de nous concentrer sur la plage la plus pertinente de R-carré, à savoir entre 0 et 1, et d'éliminer les valeurs négatives qui pourraient biaiser l'interprétation.

Exploration et sélection des meilleurs modèles

Cette phase correspond à l'étape 2-a de la figure 3.10, où le RMSE est utilisé comme variable cible. L'objectif principal de cette étape est de déterminer quels modèles sont les plus adaptés à nos données. Ainsi, il n'était pas nécessaire d'explorer simultanément les différentes approches, notamment l'étape 2-b de la figure 3.10, ni de considérer les deux variables cibles (donc soit le R-carré, soit RMSE).

Il est souvent judicieux de commencer par des modèles simples, car ils peuvent révéler des tendances dans les données qui sont moins complexes [106]. Nous avons donc d'abord exploré plusieurs modèles : Modèle de régression linéaire, "Random Forest Regressor", "Support Vector Regressor" (SVR), et "K-Nearest Neighbors Regressor" [106].

Chacun de ces modèles a été testé pour évaluer sa capacité à s'adapter à nos données et à produire des prédictions précises. Cependant, la majorité de ces modèles ont affiché des performances relativement faibles. Par "performances faibles", nous entendons que les modèles n'arrivent pas au niveau de prédiction attendu, produisant des valeurs de RMSE inexactes pour un ensemble de 6 paramètres, lorsqu'on le compare avec le test set (un ensemble de données que le modèle n'avait jamais vu auparavant et qui est utilisé pour tester son efficacité). Le seul modèle qui s'est distingué du lot est le "Random Forest Regressor".

Toutefois, bien que le "Random Forest Regressor", basé sur des arbres de décision, offre une certaine interprétabilité, cette dernière peut devenir plus complexe lorsque le modèle est composé de nombreux arbres [124, 125]. C'est pourquoi l'utilisation d'un

réseau de neurones, reconnu pour sa capacité à capturer des relations plus complexes dans les données, a également été explorée.

Un réseau de neurones est un modèle inspiré du fonctionnement des neurones dans le cerveau humain, composé de couches de "neurones" qui traitent et transmettent l'information. Plus de détails sur ce sujet peuvent être trouvés dans [126].

Ce modèle a non seulement montré des performances supérieures dans notre contexte, mais il a également l'avantage d'être plus flexible que le "Random Forest Regressor". Grâce à sa capacité d'apprentissage profond, il peut capturer des relations complexes dans les données [106]. Nous avons donc décidé de privilégier le réseau de neurones pour ce travail.

Affiner le modèle pour obtenir une solution optimale et présenter la solution

Cette étape a permis d'explorer en profondeur les différentes approches décrites dans la figure 3.10. Deux méthodologies principales ont été comparées : la première, où une unique fonction objectif globale prédit soit un RMSE soit un R-carré moyen, et la seconde, qui utilise plusieurs fonctions objectifs intermédiaires pour prédire soit un RMSE soit un R-carré, avant de les moyenner pour obtenir la fonction objectif globale.

Initialement, l'utilisation du R-carré semblait avantageuse car il conserve une échelle constante (entre 0 et 1). Toutefois, nos modèles ont démontré une meilleure performance avec le RMSE. Cette différence s'explique par le fait que le R-carré exclut les points inférieurs à 0, alors que le RMSE les prend en compte. Ces points, bien qu'éloignés de l'intervalle [0,1], fournissent des informations importantes sur les tendances du modèle. Néanmoins, en incluant les valeurs négatives du R-carré, la performance du modèle se dégrade en raison de la grande variabilité de ces valeurs. Par conséquent, nous avons opté pour le RMSE, en veillant à le normaliser pour l'approche 2-b de la figure 3.10.

Concernant les approches 2-a et 2-b de la figure 3.10, l'approche 2-b s'est avérée plus efficace. Elle offre une spécialisation pour chaque variable cible (σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité, évalués par le RMSE), contrairement à l'approche 2-a qui se base

sur une moyenne. De plus, l'approche 2-b permet d'ajuster individuellement les hyperparamètres pour chaque modèle. Les hyperparamètres, tels que le nombre de couches, le nombre de neurones, la fonction d'activation, jouent un rôle crucial dans la performance du modèle [127]. L'approche 2-b offre donc une flexibilité accrue en permettant des configurations d'hyperparamètres distinctes pour chaque modèle, contrairement à l'approche 2-a qui utilise un ensemble unique d'hyperparamètres pour un modèle global.

Il est à noter que l'entraînement des modèles a été réalisé en utilisant la parallélisation GPU, permettant ainsi une exécution plus rapide.

Présenter la solution

Nous avons opté pour une architecture de réseau de neurones composée de cinq couches, chacune contenant 100 neurones.

Pour les fonctions d'activation, 'relu' a été utilisé pour les sorties σ_{app}, σ_{trans} et σ_r. Tandis que pour la prédiction du RMSE du gradient de densité, nous avons opté pour 'sigmoid' et 'linear' pour la dernière couche. La différence entre ces fonctions d'activation est expliquée en détail dans [126].

Pour l'optimisation, l'optimiseur 'adam', qui est une méthode d'optimisation basée sur la descente de gradient adaptative [128], a été utilisé. Elle ajuste le taux d'apprentissage de chaque paramètre en fonction de l'estimation du moment de premier et second ordre des gradients. Cela permet d'obtenir de meilleures performances et une convergence plus rapide [128].

L'entraînement du modèle a été réalisé sur un total de 1000 époques. Une époque correspond à une passe complète à travers l'ensemble des données d'entraînement [106]. Cela signifie que le modèle a eu l'opportunité de mettre à jour ses poids 1000 fois pour réduire l'erreur entre ses prédictions et les valeurs réelles. Afin d'éviter un surapprentissage et d'optimiser le temps d'entraînement, une technique d'arrêt précoce avec une patience de 20 époques a été mise en place. Cela signifie que si la performance du modèle ne s'améliore pas pendant 20 époques consécutives, l'entraînement s'arrête [106].

Tous les modèles ont montré une haute efficacité, avec un coefficient de détermination supérieur à 0,98 (1 étant la valeur idéale). Il est à noter qu'une multitude d'hyperparamètres ont été évalués (à l'aide de l'automatisation par Python), et que ceux présentés ici ont affiché les meilleures performances.

Concernant les visualisations, plusieurs types de graphiques ont été utilisés pour évaluer et interpréter les performances des modèles :

— **Courbes d'Apprentissage** : Ces courbes montrent l'évolution de l'erreur d'entraînement et de validation au fil des époques. Elles permettent d'identifier si le modèle est en surapprentissage ou en sous-apprentissage [129].
— **Valeurs Réelles vs Valeurs Prédites** : Ce graphique compare les valeurs réelles, qui sont les valeurs observées dans le jeu de données de test, aux valeurs prédites par le modèle. Une ligne diagonale parfaite indiquerait des prédictions parfaites [106].
— **Distribution des Valeurs Prédites et Réelles** : Ce graphique montre la distribution des valeurs prédites par rapport aux valeurs réelles, permettant de voir si le modèle a des tendances systématiques [106].
— **Importance des paramètres matériau par permutation** : L'importance des paramètres matériau par permutation évalue l'impact de chaque paramètre sur la performance du modèle [130].

Nous présentons ici les résultats pour la fonction objectif de σ_{app} (figure 3.15) et du gradient de densité (figure 3.16), car les autres modèles affichent des résultats similaires à ceux de σ_{app}.

Concernant les résultats pour σ_{app} (et les autres modèles non affichés ici mais ayant des résultats similaires) sur la figure 3.15, les courbes d'apprentissage montrent que l'erreur de validation est similaire à l'erreur d'entraînement, indiquant que le modèle généralise bien sur les données inconnues.

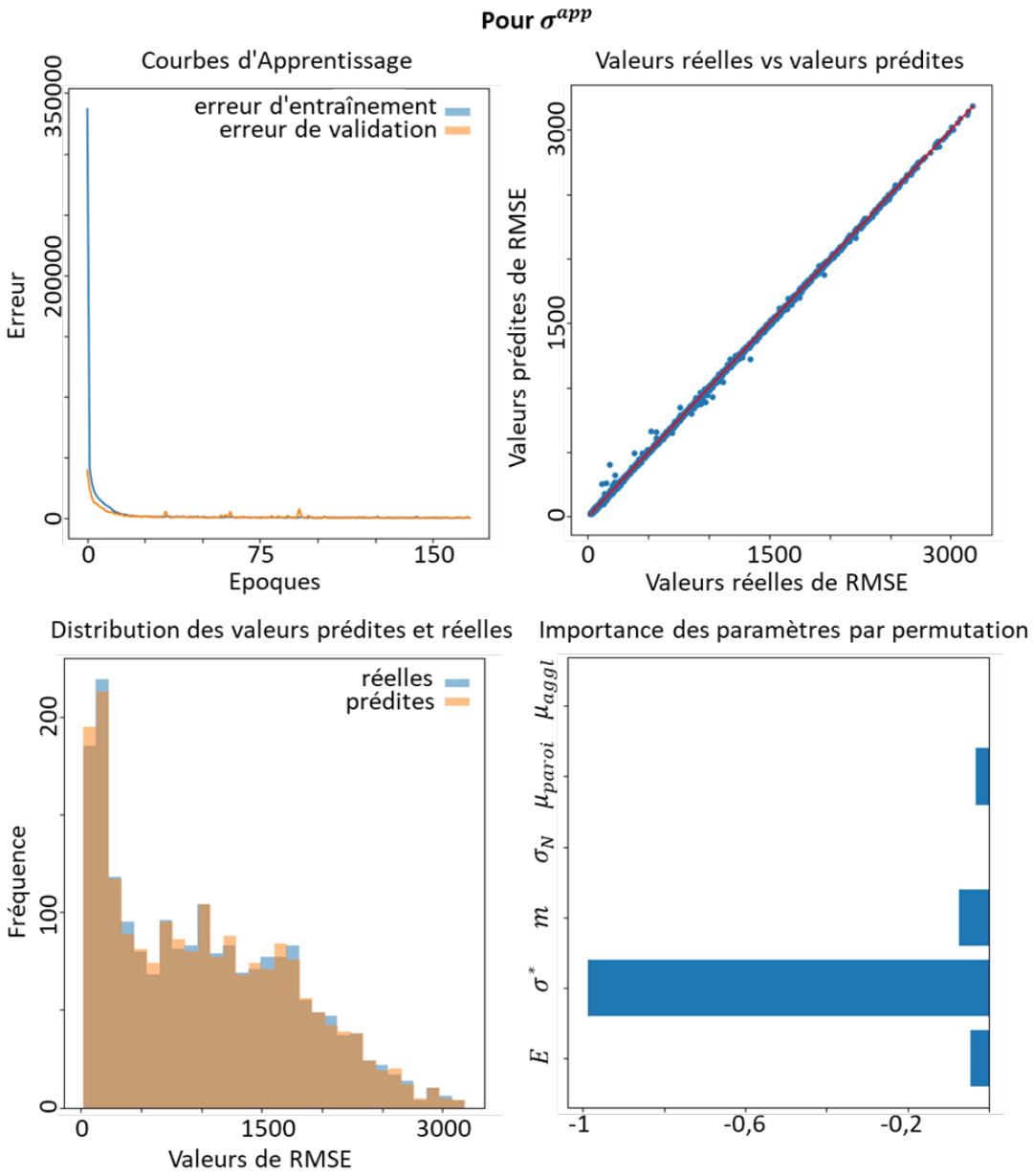

FIGURE 3.15 – Visualisations des résultats du modèle pour la fonction objectif de σ_{app}.

Le deuxième graphique montre une excellente concordance entre les valeurs prédites et réelles, avec la majorité des points se situant près de la diagonale. Cette observation est renforcée par le graphique de distribution des valeurs prédites et réelles, qui montre également une forte concordance.

Quant au graphique d'importance des paramètres matériau par permutation, le paramètre σ^* se distingue par sa valeur négative élevée. Une valeur négative signifie que permuter ce paramètre a dégradé la performance du modèle, indiquant son importance. Inversement, une valeur positive suggère que la permutation de ce para-

mètre a amélioré la performance. L'importance de σ^* est cohérente avec l'analyse des données effectuée à partir des graphiques de dispersion de la figure 3.13. En effet, une plage idéale pour σ^* avait été identifiée, contrairement aux autres paramètres, ce qui justifie cette valeur négative prononcée.

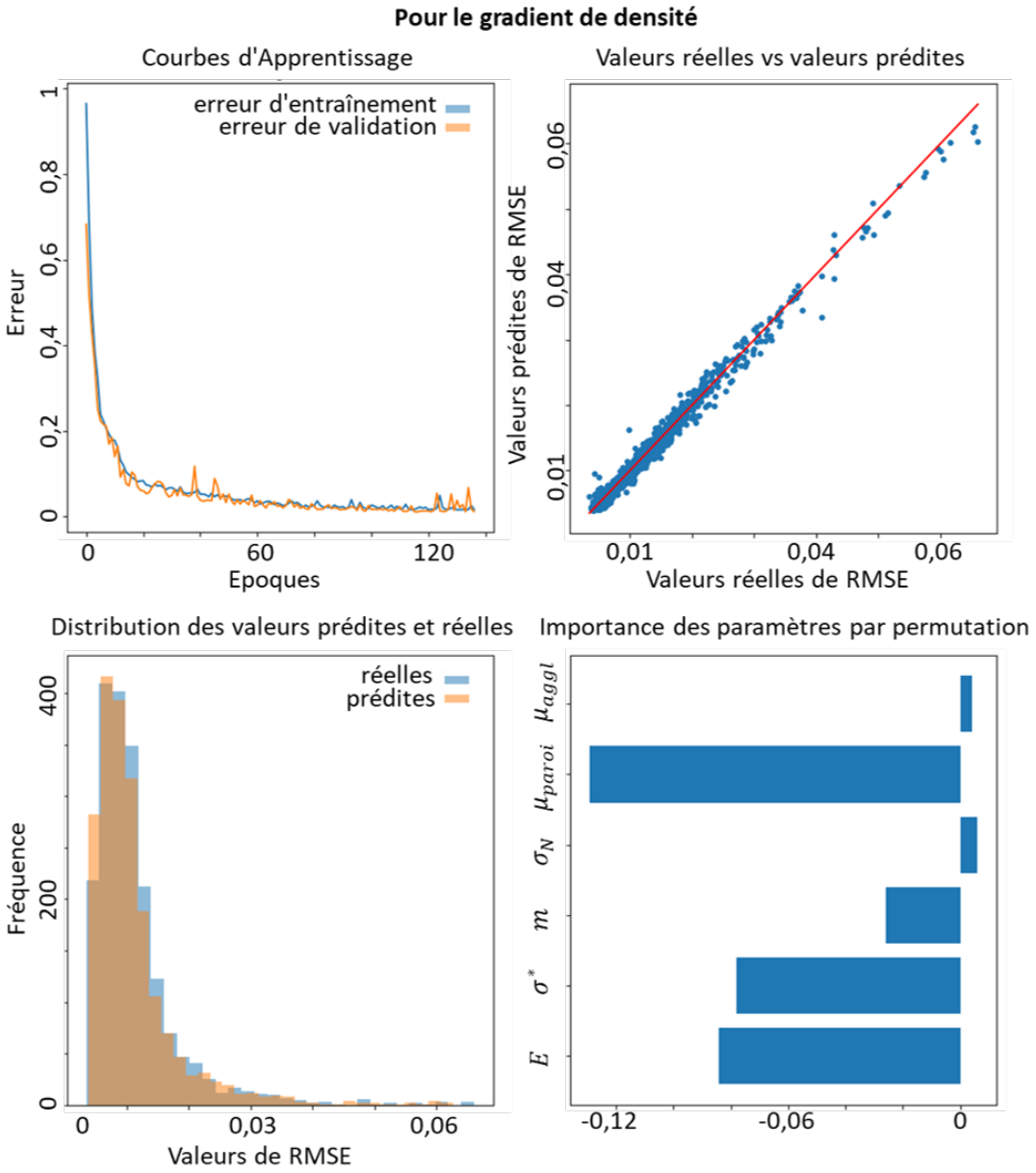

FIGURE 3.16 – Visualisations des résultats du modèle pour la fonction objectif du gradient de densité.

Pour le **gradient de densité**, les courbes d'apprentissage montrent aussi que l'erreur de validation est similaire à l'erreur d'entraînement. L'erreur de validation présente plus de bruit, ce qui pourrait être lié à la fonction d'activation sigmoid [131].

La concordance entre les valeurs prédites et réelles est également bonne, bien qu'un peu moins précise que pour σ_{app}. Cette observation est également valable pour le graphique de la distribution des valeurs prédites et réelles.

Le graphique d'importance des paramètres matériau par permutation montre que les poids sont plus équilibrés entre μ_{paroi}, σ^* et E. Cependant, μ_{paroi} est le paramètre le plus influent, ce qui est logique car le frottement entre la paroi et la poudre détermine en grande partie la forme de la carte de densité.

Lancer le modèle

Le terme "lancer" fait référence à l'utilisation du modèle dans un contexte pratique. Dans notre étude, cela signifie utiliser le modèle pour ajuster les paramètres matériau, couvrant ainsi les étapes 3 à 6 de la figure 3.10. Plutôt que de détailler chaque étape, nous nous concentrerons sur la présentation de la simulation dp3D obtenue après l'ajustement des paramètres matériau et la comparaison avec les quatre courbes expérimentales : σ_{app}, σ_{trans}, σ_r et le gradient de densité.

Valeurs des paramètres matériau ajustés Après avoir effectué l'ajustement par apprentissage machine, des valeurs pour les paramètres matériau des agglomérats d'UO_2 ont été obtenues. Le tableau 3.1 présente ces valeurs ajustées.

E (GPa)	σ^* (MPa)	m	σ_N (GPa)	μ_{paroi}	μ_{aggl}
14,630	132,533	0,720	46,206	0,136	0,024

Table 3.1 – Valeurs des paramètres matériau ajustés pour les agglomérats d'UO_2.

Concernant notre valeur du module de Young E, notre résultat de 14,630 GPa se rapproche de celui obtenu par P. Pizette (environ 15 GPa). Le module de Young mesuré par P. Pizette a été déterminé avec une densité finale d'environ 0,6. La mesure du module de Young peut varier en fonction de la densité relative, mais ici cette densité correspond à la nôtre en fin de compaction.

Concernant le coefficient de frottement μ_{paroi}, notre valeur d'environ 0,14 est également en accord avec les travaux de P. Pizette qui a obtenu une valeur d'environ 0,175.

Bien que légèrement inférieure, notre estimation reste proche de la sienne.

σ^* et m sont des paramètres plus compliqués à évaluer car ils sont liés à la description numérique de notre modèle élasto-plastique. Toutefois, ces paramètres caractérisent le comportement plastique d'un matériau, tel que décrit par l'équation (2.23). Dans cette équation, la relation entre la contrainte σ et la déformation ε est donnée par : $\sigma = \sigma^* \varepsilon^{1/m}$. Ainsi, le comportement plastique de l'agglomérat d'UO_2 en compression uniaxiale peut être visualisé dans la figure ci-après :

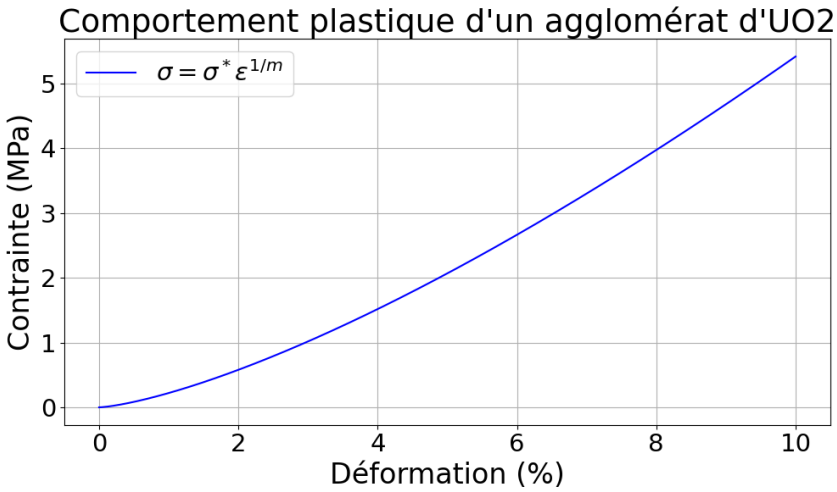

FIGURE 3.17 – Comportement plastique d'un agglomérat d'UO_2 en compression uniaxiale jusqu'à une déformation de 10%.

À une déformation de 10%, la contrainte atteint environ 5 MPa. Cette faible valeur est cohérente compte tenu de la nature de l'agglomérat, qui présente une porosité d'environ 40%. Un écrouissage très prononcé est observé, avec une courbe contrainte-déformation convexe en bon accord avec la densification des agglomérats lors de la déformation plastique.

La valeur obtenue pour μ_{aggl} suggère que les interactions de frottement entre les agglomérats sont minimales. Cela pourrait être interprété comme si les agglomérats glissaient facilement les uns sur les autres sans résistance significative. Cependant, bien que nous anticipions une valeur inférieure à μ_{paroi}, la faible valeur obtenue est contre-intuitive, surtout lorsqu'on considère la nature poreuse de nos agglomérats céramiques. Cette valeur pourrait s'expliquer par le fait que, dans nos simulations, le coefficient de frottement intègre la présence du lubrifiant, ce qui a pour conséquence

de le réduire.

En ce qui concerne σ_N, la valeur obtenue de 46 GPa semble très élevée. Lorsque l'on envisage deux agglomérats d'UO_2 en contact, qui sont mous, on s'attendrait à une valeur de σ_N de l'ordre du MPa. Cependant, les mécanismes physiques qui conduisent à l'apparition d'une contrainte de traction nécessaire pour séparer deux agglomérats céramiques poreux qui ont été déformés plastiquement ne sont pas clairs. On peut avancer que des phénomènes d'imbrication géométrique sont mis en jeu. A l'échelle des cristallites qui forment les agglomérats, l'adhésion liée à l'énergie de surface du matériau doit aussi jouer un rôle. Parce que les agglomérats sont très poreux (donc plus de surface de contact), on peut supposer qu'on a des forces de van der Waals très élevées à l'échelle des cristallites. En réalisant une simulation avec σ_N de l'ordre du MPa, on constate que les contacts se cassent très facilement en traction, tandis qu'avec la valeur de 46 GPa, les contacts se tiennent un peu plus en traction avant de se casser, ce qu'on attend d'un contact qui a été très indenté pendant la déformation plastique. La valeur de σ_N a été donc conservée.

Comparaison avec les courbes expérimentales Commençons par la phase de charge. La figure 3.18 illustre σ_{moyen}, σ_{app}, σ_{trans} et σ_r en fonction de la densité.

Durant l'ajustement, un poids a été attribué aux valeurs proches de la valeur finale, c'est-à-dire celles approchant une densité en fin de compaction d'environ 0,6. En conséquence, l'ajustement est particulièrement satisfaisant pour les hautes densités. Cependant, pour les densités intermédiaires, l'ajustement n'est pas optimal. Cette limitation découle de la tentative d'ajuster simultanément plusieurs résultats : les contraintes pendant la charge, la décharge, et le gradient de densité. Il est nécessaire de trouver un équilibre entre ces ajustements. Bien qu'il soit possible d'attribuer des poids spécifiques, comme cela a été fait pour les hautes densités, il est essentiel de comprendre que l'ajustement d'un résultat peut compromettre celui d'un autre. Il est tout à fait possible d'obtenir un ajustement parfait pour cette figure (par exemple, en augmentant la valeur de m et de σ^*), mais cela entraîne un mauvais ajustement pour la décharge et le gradient de densité.

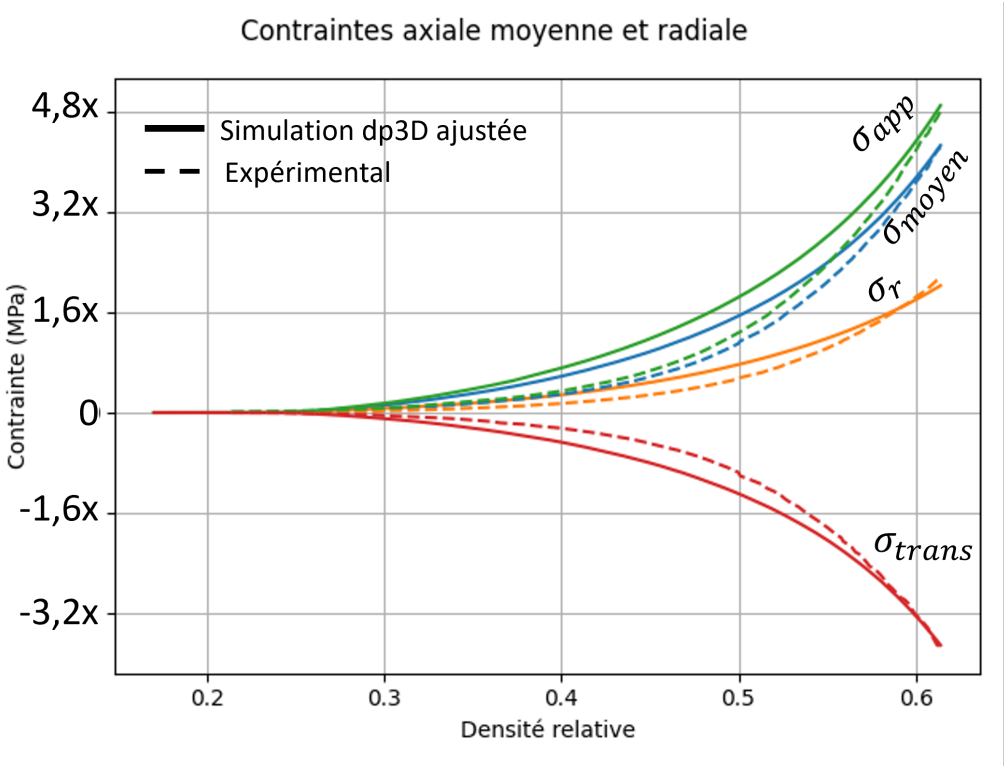

FIGURE 3.18 – Comparaison entre la simulation DEM et les données expérimentales de P. Pizette [22] pendant la phase de charge, montrant les contraintes en fonction de la densité.

La figure 3.19 illustre le gradient de densité à la fin de la charge.

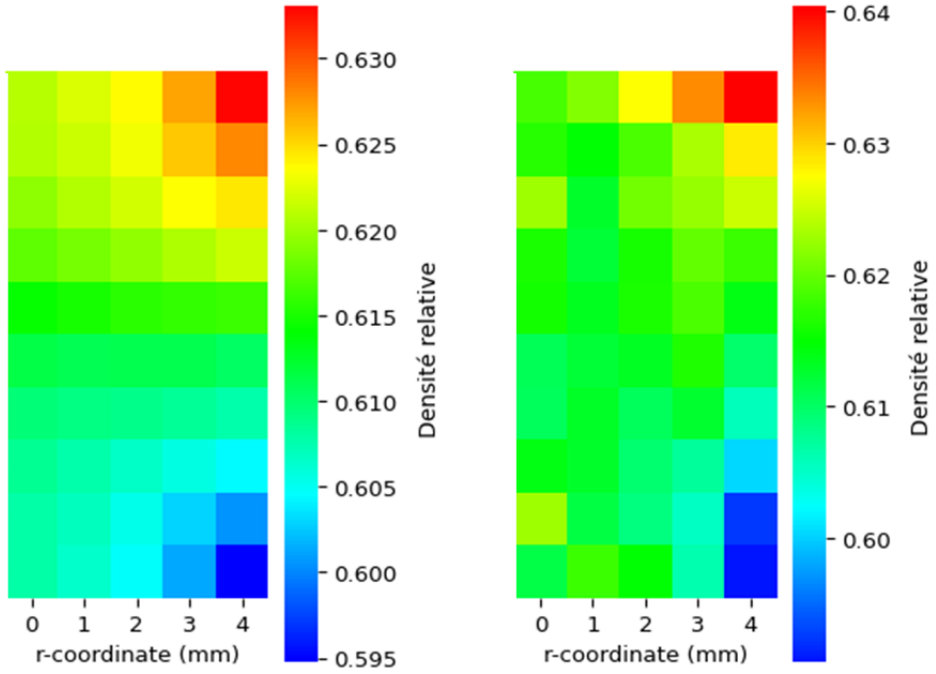

FIGURE 3.19 – Comparaison du gradient de densité obtenu en fin de compaction : à gauche, simulation FEM de P. Pizette [22] et à droite, la simulation DEM.

L'ajustement pour cet objectif a été réalisé avec un poids moindre par rapport aux autres ajustements. La raison pour cela est que les données comparées proviennent d'une simulation FEM, et sont donc considérées comme moins fiables que les autres données qui sont expérimentales. En effet, cette simulation n'a pas été validée par des expériences.

L'analyse de notre ajustement montre une concordance avec la FEM, en particulier pour les densités élevées situées en haut et à droite, ainsi que pour les densités faibles en bas et à droite de la carte de densité. Cette distribution est le résultat direct de l'effet du simplet sur la densité du comprimé en fin de compaction. Bien que cet ajustement puisse être encore plus proche de la FEM en augmentant son poids, cela entraînerait des ajustements moins précis pour d'autres paramètres.

En ce qui concerne la décharge, la figure 3.20 illustre σ_{moyen}, σ_{app}, σ_{trans} et σ_r en fonction de la densité relative.

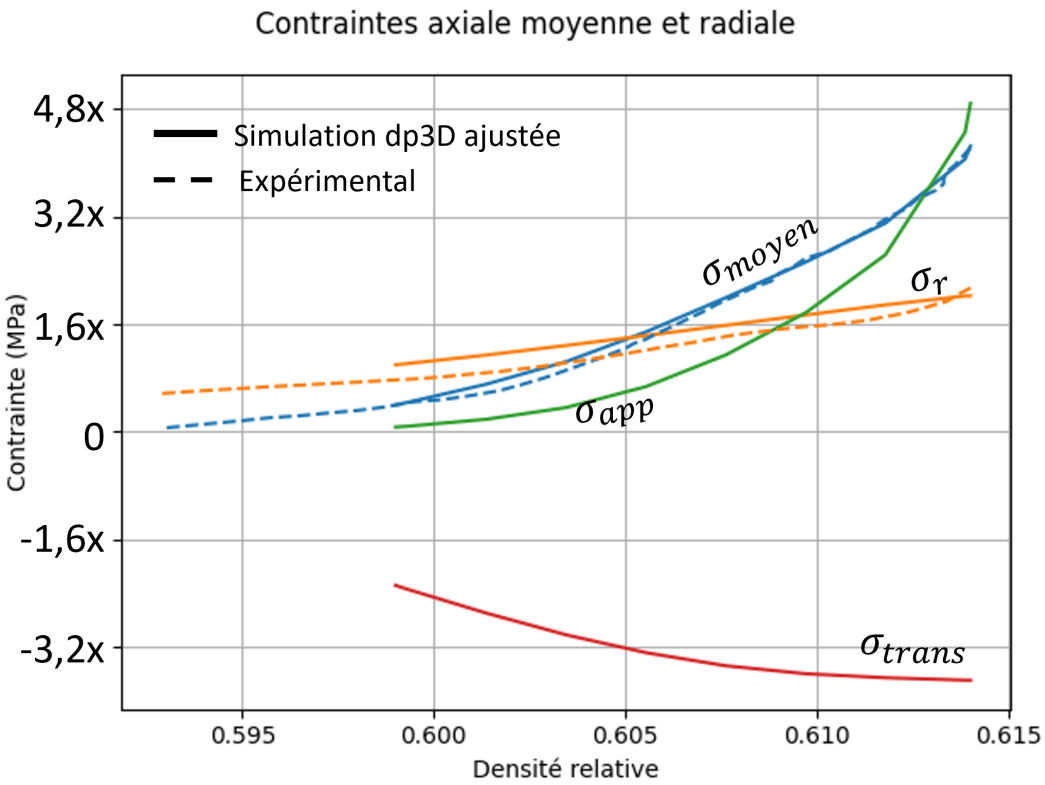

FIGURE 3.20 – Comparaison entre la simulation DEM et les données expérimentales de P. Pizette [22] pendant la décharge, montrant les contraintes en fonction de la densité.

Il est important de rappeler que les courbes expérimentales pour σ_{app} et σ_{trans} ne

sont pas disponibles lors de cette phase. Bien que nous soyons confiants pour la précision du point à haute densité pour σ_{app} et σ_{trans} (car bien ajusté pendant la phase de charge), son évolution lors de la décharge reste inconnue.

Malgré cela, la figure montre une très bonne concordance entre la simulation et les données expérimentales pour σ_{moyen} et σ_r. Notamment, la simulation a pu reproduire fidèlement l'inversion du gradient de contrainte axiale observée par P. Pizette. En effet, lors du relâchement de la charge appliquée, la contrainte axiale appliquée devient progressivement inférieure à la contrainte transmise. Cette transition est attribuée à la combinaison du phénomène de rebond du compact et des forces de frottement sur la matrice, qui limitent la décompression du comprimé.

De plus, notre simulation a correctement modélisé les contraintes finales, où σ_r dépasse σ_{moyen} (à partir d'une densité relative 0.605). A notre connaissance, c'est la première fois qu'une simulation DEM parvient à reproduire avec précision ces phénomènes durant la décharge.

3.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons exploré en profondeur la mise en œuvre et l'évaluation de modèles basés sur les réseaux de neurones (ainsi que d'autres méthodes) pour obtenir le modèle numérique des agglomérats d'UO_2 pendant l'étape de compaction. Nous avons détaillé les étapes de préparation des données, l'analyse des données, la conception du modèle, son entraînement, et son évaluation à travers diverses visualisations et métriques pour enfin réaliser l'ajustement des agglomérats.

L'analyse des données suggère que, pour de futures acquisitions de données, il pourrait être judicieux de se concentrer sur des plages plus étroites pour les paramètres montrant une variabilité d'erreur (comme σ^* de la figure 3.13 et μ_{paroi} de la figure 3.14) et d'élargir les plages pour ceux montrant une distribution d'erreur plus uniforme (donc pour E, σ_N, μ_{aggl} et m). Cette stratégie pourrait permettre de découvrir des solutions plus performantes dans des plages non explorées.

Suite à l'ajustement des paramètres par apprentissage machine, nous avons analysé les valeurs des paramètres matériau obtenus. Un point particulier d'intérêt était la faible valeur de μ_{aggl}. En effet, une valeur élevée de μ_{aggl} serait plus intuitive, suggérant un frottement plus important entre les agglomérats. La figure 3.13 montre que d'autres solutions viables avec des valeurs plus élevées de μ_{aggl} existent. De plus, la figure 3.15 révèle que l'influence de μ_{aggl} sur la performance du modèle est minimale, offrant une marge de manœuvre pour ajuster cette valeur dans des travaux futurs.

Quant à la valeur de σ_N, elle a été jugée comme étant très élevée. Cette valeur élevée pourrait être attribuée à notre choix initial de la plage de variation pour ce paramètre. En définissant une plage très large (entre 0.1, 100 GPa) l'algorithme d'apprentissage a sélectionné la valeur qui optimisait les performances du modèle. Il serait judicieux, dans les travaux futurs, de reconsidérer cette plage pour obtenir des estimations plus physiquement réalistes.

Nos résultats montrent une correspondance significative entre notre simulation DEM, ajustée par l'apprentissage machine, et les données expérimentales. En parti-

culier, la capacité du modèle à reproduire des phénomènes complexes observés expérimentalement, tels que l'inversion du gradient de contrainte axiale, est particulièrement encourageante.

En perspective, l'adaptation de nos modèles élasto-plastique pour une correspondance encore plus étroite avec les données expérimentales pourrait être envisagée, principalement pour les courbes de contrainte-densité à des valeurs de densité intermédiaires. Toutefois, cela pourrait conduire à un modèle hautement spécialisé, moins généraliste et plus adapté à notre cas spécifique.

Ayant terminé l'ajustement des agglomérats d'UO_2, nous nous tournerons vers le chapitre 4 qui se consacrera à l'ajustement des agglomérats des mélanges primaires. Ce chapitre abordera également la compaction de l'ensemble du mélange MOX, en mettant en œuvre une compaction à double effet pour se rapprocher du processus industriel. Cette compaction tiendra compte de la géométrie spécifique d'Orano et de sa cinématique. L'ajustement des paramètres matériau sera réalisé de manière simplifiée, en raison du manque de données sur le MOX.

Chapitre 4

Compaction des agglomérats de mélange primaire

Dans le chapitre précédent, nous nous sommes concentrés sur l'ajustement des paramètres matériau des agglomérats d'UO_2 en utilisant des techniques d'apprentissage machine. Nous avons exploré la mise en œuvre et l'évaluation de différents modèles pour obtenir le modèle numérique de ces agglomérats pendant l'étape de compaction.

Dans ce quatrième chapitre, nous élargissons cette étude aux agglomérats de mélange primaire (MP, voir la section 2.5). L'objectif principal est d'ajuster les paramètres matériau de ces agglomérats pour ensuite simuler la compaction d'un mélange de poudre MOX, composé d'agglomérats d'UO_2 et de MP.

L'ajustement des paramètres matériau est réalisé sur des agglomérats avec différents taux de chamotte. Il sera opéré de manière plus classique (par rapport à celui sur l'UO_2). En raison du manque de données disponibles sur les poudres MOX et MP, nous devrons recourir à des hypothèses simplificatrices.

Dans le chapitre précédent, la géométrie du comprimé était un simple cylindre. Afin de se rapprocher des conditions industrielles du processus, nous enrichissons les géométries possibles pour les poinçons. Ainsi, la géométrie industrielle des poinçons, avec le "dishing" et les chanfreins (voir Fig. 1.7), ainsi que celle de la matrice utilisée, est reproduite. Par ailleurs, la compaction double-effet et la cinématique industrielle

sont également reproduites.

4.1 Les poudres TUCHAMXX du CDA

Situé sur le site de MELOX, le Centre de Développement Appliqué (CDA) est doté d'équipements spécialisés pour la fabrication et la caractérisation des poudres et des pastilles à base d'UO_2. Il répond principalement aux besoins internes de MELOX.

Dans le contexte de cette thèse, une collaboration entre le CDA et le SIMaP a permis la mise en œuvre d'un programme d'essai. Ce programme visait la fabrication et la caractérisation de pastilles crues, élaborées sous différentes pressions de compaction (de 2,4×MPa à 4,8×MPa) [1] et incorporant différents taux de chamotte à base d'UO_2 (de 30 à 70%). Ces pastilles sont exemptes de PuO_2, en raison des contraintes liées à sa manipulation.

De ce fait, pour l'ajustement des paramètres matériau des agglomérats de MP, nous faisons l'hypothèse que le comportement de la poudre PuO_2 est similaire à celui de l'UO_2. Cette hypothèse s'appuie sur les données de la littérature. Le tableau 4.1 présente les propriétés mécaniques des pastilles frittées de PuO_2 et UO_2 issues de [132].

Matériau	E(GPa)[a]	ν[b]	$\tilde{\rho}$(%)[c]
UO_2	219,3	0,32	94,61
$(Pu_{0,97}Am_{0,03})O_2$	249,3	0,32	93,83

[a] E : Module d'Young

[b] ν : Coefficient de Poisson

[c] $\tilde{\rho}$: Densité relative

TABLE 4.1 – Valeurs mesurées des propriétés mécaniques des pastilles frittées de PuO_2 et UO_2 [132].

Le tableau 4.1 montre que le PuO_2 est légèrement plus rigide que l'UO_2 (module d'Young 14% plus élevé). Les coefficients de Poisson sont identiques. Les densités relatives pour lesquelles les propriétés élastiques ont été mesurées sont similaires.

1. La variable × est utilisée pour préserver la confidentialité des propriétés de la poudre.

Ces propriétés ont été mesurées sur des pastilles frittées quasi denses, ce qui peut ne pas refléter directement le comportement des poudres. Néanmoins, en l'absence de données directes sur les propriétés des poudres, l'hypothèse que dans les agglomérats de MP, le remplacement du PuO_2 par de l'UO_2 ne modifie pas substantiellement les propriétés mécaniques des agglomérats contenant de la chamotte semble raisonnable.

L'avantage de cette hypothèse est qu'elle permet de simplifier la modélisation du mélange primaire industriel : au lieu de considérer trois composants distincts (chamotte, UO_2 et PuO_2) lors de la fabrication, nous n'en considérons que deux (chamotte et UO_2).

4.1.1 Nomenclature TUCHAMXX

La nomenclature "TUCHAMXX" utilisée par le CDA se comprend de la manière suivante : "TU" fait référence à la poudre initiale d'UO_2 utilisée, "CHAM" désigne l'introduction de la chamotte et le "XX" est un indicateur numérique du pourcentage massique de chamotte.

Les poudres TUCHAM30, TUCHAM50 et TUCHAM70 ont été caractérisées au CDA en octobre 2022, alors que la TUCHAM0 [2] avait été étudiée antérieurement.

4.1.2 Préparation de la chamotte UO_2

Pour préparer la chamotte UO_2, la poudre d'UO_2 a été mélangée avec $0,30\%$ massique de StZn, puis compressée jusqu'à atteindre une pression de compaction de $5,12\times$MPa. Une fois formées, les pastilles ont été placées dans des nacelles avant d'être frittées sous atmosphère contrôlée et humidifiée (Ar/H_2). Ce frittage a été réalisé selon les conditions habituelles du procédé MELOX. À l'issue du cycle de frittage, une densité relative d'environ 95% a été atteinte. Ces pastilles frittées ont ensuite été concassées et broyées pendant 4 heures, en broyeur à boulets et sous atmosphère inerte.

La Figure 4.1 montre les pastilles après frittage et la chamotte produite après

2. dans ce chapitre, la mention "UO_2 VH1" désigne la poudre d'UO_2 étudiée par P. Pizette, tandis que "TUCHAM0" fait référence à la poudre d'UO_2 caractérisée au CDA.

broyage.

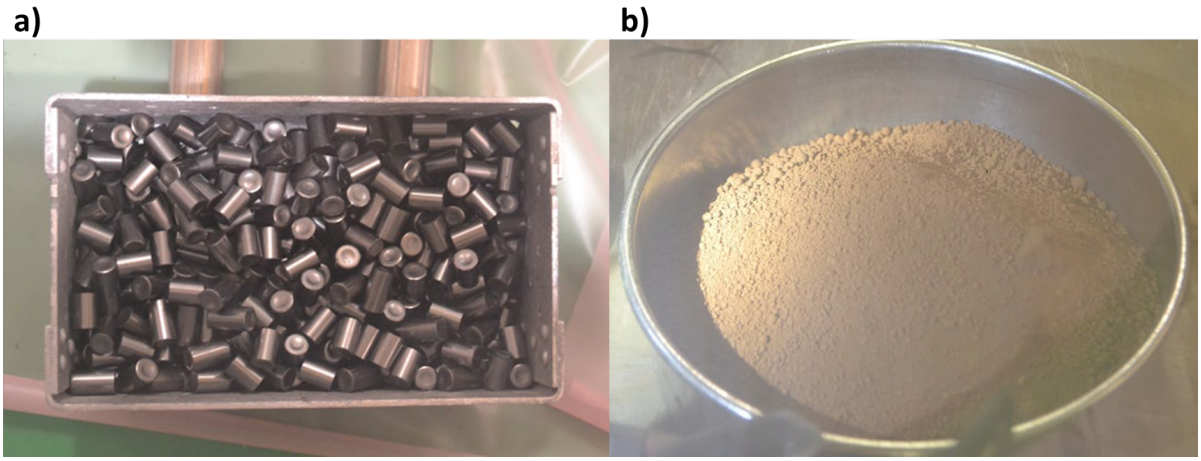

FIGURE 4.1 – a) Pastilles à la sortie du four de frittage b) Chamotte obtenue après broyage.

4.1.3 Préparation du mélange

L'UO_2 et la chamotte sont mélangés à différentes proportions (30, 50 et 70%). À ce mélange est ajouté le lubrifiant StZn. Il est important de noter que cette étape diffère du procédé industriel car, dans ce cas, le mélange n'est pas broyé. La Figure 4.2 présente l'aspect des poudres avant le processus de pressage, en fonction des différents taux de chamotte.

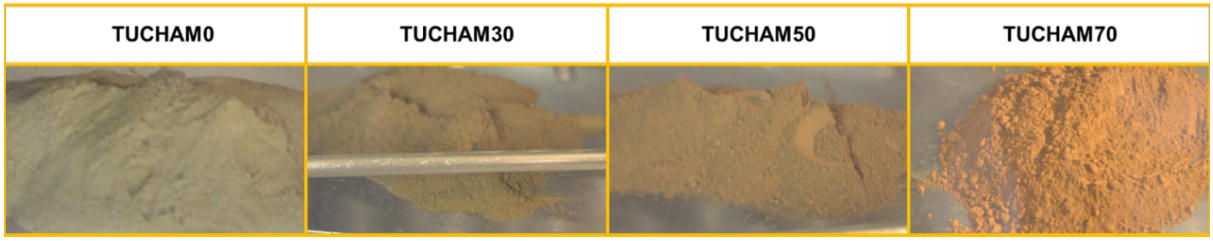

FIGURE 4.2 – Poudres TUCHAMXX avant pressage à différents taux de chamotte.

L'examen visuel de ces poudres révèle que plus le taux de chamotte est élevé, plus des agglomérats sont visibles. De plus, la poudre a tendance à devenir orange, la couleur caractéristique de la chamotte pure.

Les densités apparentes des poudres ont été déterminées et les résultats, en fonction du taux de chamotte, sont présentés dans la figure 4.3.

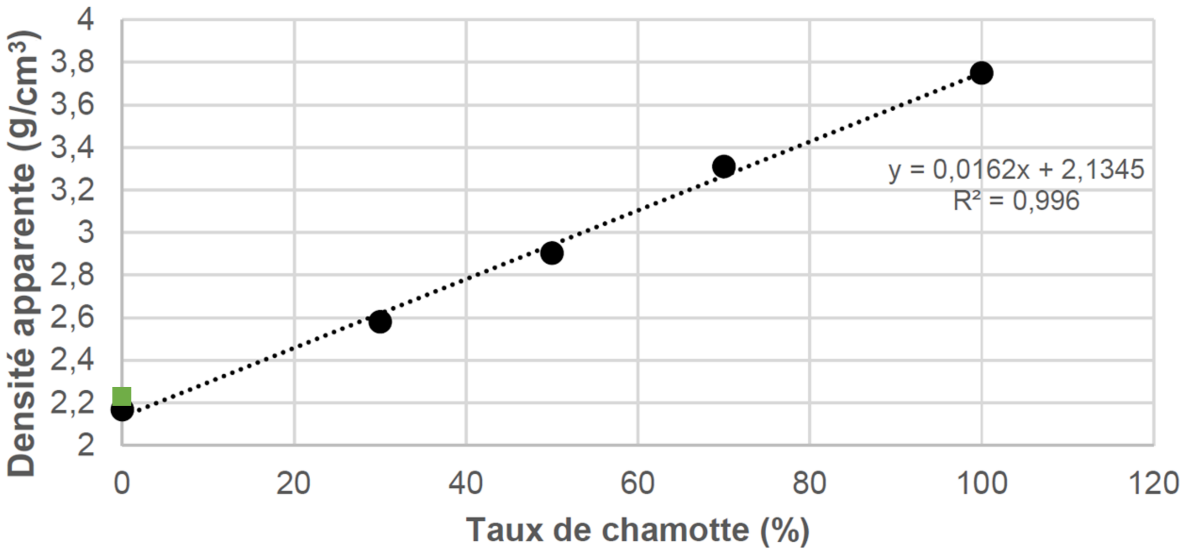

FIGURE 4.3 – Variation de la densité apparente en fonction du taux massique de chamotte. Le carré vert représente la densité apparente de la poudre d'UO_2 VH1 étudié par P. Pizette (cf. tableau 1.1).

La densité apparente de la poudre varie de façon linéaire avec l'introduction progressive de la chamotte. La valeur de densité apparente de la poudre d'UO_2 VH1 est en bon accord avec celle de la TUCHAM0.

4.1.4 Compaction

La compaction est réalisée à l'aide d'une presse à double effet, intégrant une géométrie industrielle (présence d'un "dishing" et des chanfreins, Fig. 1.7).

Compte tenu des variations de la densité apparente des poudres à différentes teneurs en chamotte, il est nécessaire d'ajuster la hauteur de la chambre de compaction. L'objectif de ce réglage est d'assurer un rapport hauteur/diamètre (H/D) d'environ 1,5 à une pression de 2,4×MPa. Les pastilles ont été produites à différentes pressions (2,4×MPa, 3,2×MPa, 4×MPa et 4,8×MPa). Les conditions de pastillage à une pression de compaction de 4,8×MPa sont détaillées dans le tableau 4.2 pour chaque type de poudre.

On remarque que la TUCHAM0 a été pressée avec une pression d'accompagnement substantiellement supérieure aux autres poudres. On rappelle que les données sur la poudre TUCHAM0 sont issues d'un autre programme d'essai réalisé au CDA.

	TUCHAM0	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
P_{max}(MPa)[a]	4,83×	4,8×	4,8×	4,8×
P_{acc}(MPa)[b]	55y	15,5y	14,5y	13y
$h_{chambre}$(mm)[c]	42,2	39,0	37,5	36,5
$D_{matrice}$(mm)[d]	9,83	9,83	9,83	9,83

[a] Pression de compaction.

[b] Pression d'accompagnement. La variable y est utilisée pour préserver la confidentialité des propriétés de la poudre.

[c] Hauteur de la chambre.

[c] Diamètre de la matrice.

Table 4.2 – Conditions de pressage des pastilles élaborées au CDA. La poudre TUCHAM0 a été caractérisée dans le cadre d'un autre programme d'essai au CDA.

Pour les poudres TUCHAM30-50-70, cette pression P_{acc} diminue légèrement avec l'augmentation du taux de chamotte. Comme discuté dans le paragraphe 1.1.5 du chapitre 1, l'ajustement de cette pression est important pour améliorer la solidité de la pastille et minimiser les défauts, lors de l'éjection des pastilles.

Les pastilles ont été caractérisées après l'étape d'éjection. Le tableau 4.3 résume ces résultats pour une pression maximale $P_{max} = 4,8$×MPa.

	TUCHAM0	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
P_{max}(MPa)	4,83×	4,8×	4,8×	4,8×
Diamètre bas(mm)	9,93±0,01	9,931±0,01	9,928±0,01	9,921±0,01
Diamètre milieu(mm)	9,93±0,01	9,946±0,01	9,944±0,01	9,937±0,01
Diamètre haut(mm)	9,92±0,01	9,938±0,01	9,935±0,01	9,924±0,01
Hauteur(mm)	13,27±0,06	13,424±0,18	13,603±0,05	14,029±0,07
masse(g)	6,44±0,12	6,92±0,12	7,40±0,08	7,99±0,09
ρ(g/cm^3)	6,3±0,05	6,74±0,08	7,11±0,08	7,46±0,06

Table 4.3 – Valeurs moyennes de masse, densité après éjection ρ et géométrie des pastilles compactées (métrologie laser) pour une compaction à $P_{max} = 4,8$×MPa. Ces valeurs sont obtenues à partir de 12 pastilles pressées pour chaque type de poudre.

Les mesures des diamètres à différentes hauteurs indiquent que les pastilles ont un diamètre plus large au milieu comparé aux extrémités. Nous proposons de désigner cette caractéristique particulière comme "effet tonneau" (l'opposé de l'effet diabolo décrit à la section 1.1.3). La corrélation entre la densité après éjection et la pression maximale de compaction pour des poudres à différents taux de chamotte est tracée sur la figure 4.4.

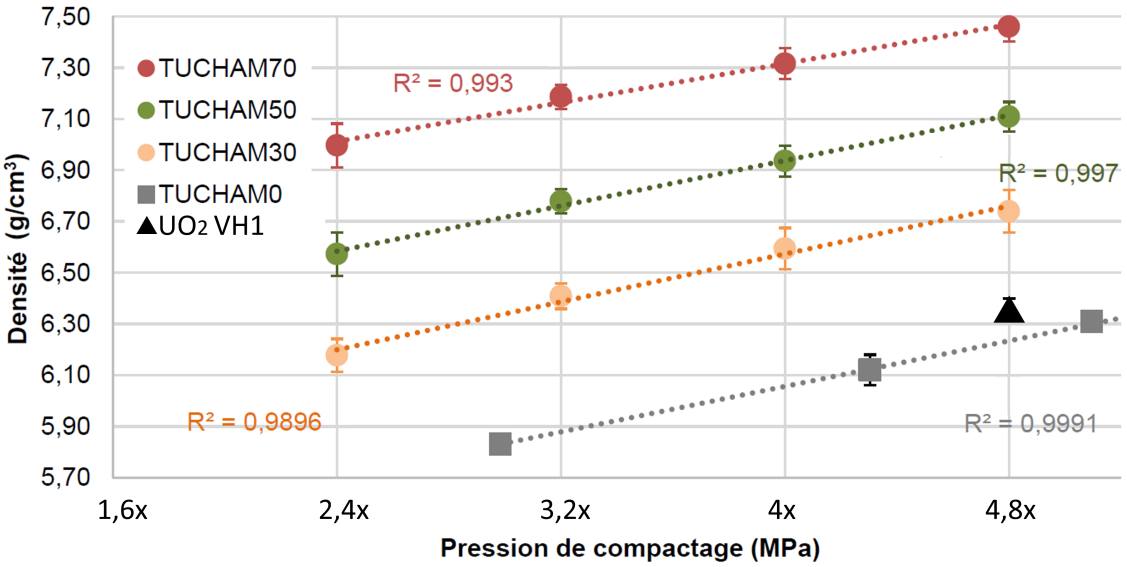

FIGURE 4.4 – Corrélation entre la densité après éjection et la pression maximale de compaction pour différentes compositions de poudres. La densité après éjection a été calculée en mesurant la masse, les diamètres et la hauteur des pastilles éjectées. La densité après éjection de la pastille d'UO_2 étudiée par P. Pizette est aussi affichée

Les poudres TUCHAMXX présentent une relation approximativement linéaire entre densité et pression de compaction. Pour une pression de compaction donnée, plus la teneur en chamotte est élevée, plus la densité crue de la pastille est importante. Cela s'explique par le fait que la poudre de chamotte a une densité apparente plus élevée que celle de UO_2 (Fig. 4.3).

La figure montre également la densité après éjection de la pastille d'UO_2 VH1 étudiée par P. Pizette (triangle noir). Bien que cette valeur provienne d'une mesure effectuée avec une presse à simple effet (pour laquelle on s'attend à une valeur de densité légèrement inférieure à celle d'un pressage à double effet), elle offre un point de comparaison pour évaluer la similarité entre TUCHAM0 et l'UO_2 VH1 étudié par P.

Pizette. La densité caractérisant l'UO_2 VH1 est en accord raisonnable avec les données obtenues pour TUCHAM0.

La résistance mécanique des pastilles crues a également été évaluée. Cependant, nous ne présenterons pas ces résultats ici, car ils ne sont pas vraiment pertinents pour la modélisation des agglomérats de MP. La conclusion de cette étude de résistance mécanique est que l'augmentation du taux de chamotte diminue la résistance mécanique des pastilles, tandis que l'augmentation de la pression de compaction améliore la résistance mécanique.

4.2 Modèle numérique des agglomérats de MP

À partir des données expérimentales collectées, nous pouvons maintenant élaborer un modèle numérique des agglomérats de MP pour la compaction. Toutefois, bien que ces données soient précieuses, elles ne couvrent pas toutes les mesures nécessaires. Actuellement, nous ne disposons que des mesures de densité avant la compaction et après l'éjection. La figure 4.5 illustre schématiquement les données expérimentales à notre disposition (points noirs représentant les points avant la compaction et après l'éjection) et celles qui nous manquent (lignes pointillées) pendant les phases de charge et de décharge.

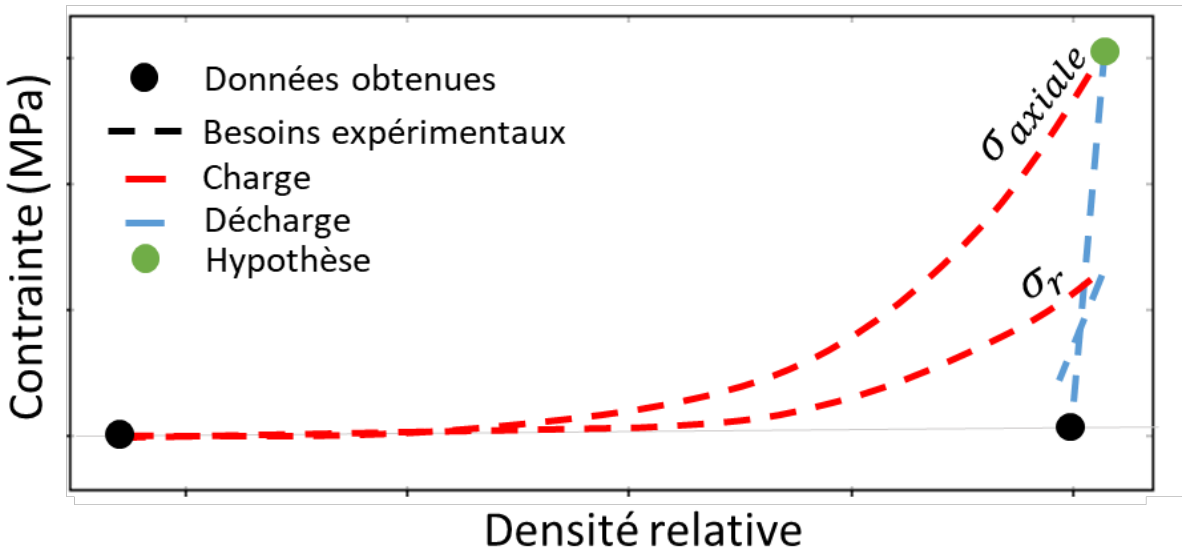

FIGURE 4.5 – Représentation schématique des courbes de compaction. Les points noirs correspondent aux données expérimentales obtenues avant la compaction et après l'éjection, tandis que les lignes pointillées représentent les données encore manquantes. Grâce à des hypothèses simplificatrices, un troisième point (en vert) peut être extrapolé.

Pour compléter ces courbes, il serait nécessaire d'intégrer à la presse un capteur radial (pour mesurer la contrainte radiale) et un capteur de hauteur (pour mesurer la densité relative tout au long de la compaction). En ce qui concerne la carte de densité, comme pour l'UO_2, les mesures correspondantes n'existent pas et nécessiteraient des techniques avancées telles que la nanotomographie ou la spectroscopie de rayons X à

dispersion d'énergie (EDX) [40] (Fig. 1.22).

En l'absence de ces données expérimentales certaines hypothèses doivent être formulées. La première concerne la contrainte axiale maximale avant décharge (point vert sur la figure 4.5). Nous supposons que le rapport entre le rebond radial R_{radial} et le rebond axial R_{axial} ne dépend pas, en première approximation, de la composition de la poudre. A partir des données expérimentales de P. Pizette, on peut donc, connaissant le rebond radial et le rapport des rebonds radial et axial : $R_{radial}/R_{axial} = 0,27$, obtenir pour toute composition le rebond axial R_{axial} et ainsi calculer la hauteur en fin de charge à partir des équations :

$$R_{axial} = \frac{H_{min} - H_{éjection}}{H_{min}}, \qquad R_{radial} = \frac{D_{matrice} - D_{éjection}}{D_{matrice}} \tag{4.1}$$

où H représente la hauteur et D le diamètre. Le rebond radial est obtenu simplement à partir du diamètre de la matrice $D_{matrice}$ et du diamètre après éjection $D_{éjection}$. La densité relative en fin de compaction (avant décharge, point vert sur la figure 4.5) peut donc être évaluée.

Toutefois, l'intégralité de la courbe de compression reste à définir. Notre deuxième hypothèse simplificatrice vise à pallier cette lacune en supposant que les propriétés des agglomérats d'UO_2 et celles des agglomérats de MP sont suffisamment similaires pour justifier le maintien de tous les paramètres matériau ajustés dans le chapitre 3 (à l'exception de σ^*). Le paramètre σ^* n'est pas conservé car il permettra d'ajuster le dernier point en fin de compaction, correspondant au point vert de la contrainte axiale. Cette approche permet de conserver la forme des courbes et la carte de densité.

Nous réalisons donc un ajustement simple en faisant varier uniquement le paramètre σ^*. Cette hypothèse simplificatrice a plusieurs conséquences importantes. L'indice de fluidité reste identique à celui de l'UO_2. Pizette note cependant que l'introduction de la chamotte semble réduire la fluidité de la poudre [101]. Nous conservons les mêmes coefficients de frottement afin de maintenir une carte de densité cohérente. De plus, bien que l'addition de la chamotte influence le rebond [101], nous supposons que la décharge présente le même comportement (nous conservons le même module

d'Young E) que celui observé pour la poudre UO_2.

Cette approche très simple, par rapport à celle proposée au chapitre précédent (qui s'appuyait sur l'apprentissage machine et autorisait l'ajustement de 6 paramètres matériau), permet de dérouler la démarche complète.

4.2.1 L'échantillon numérique

La préparation de l'échantillon numérique de MP pour cette étude est similaire à celle présentée dans le chapitre 3. La géométrie imposée ici est cependant plus complexe que celle du simple cylindre du chapitre 3. Elle intègre le "dishing" et les chanfreins, en adéquation avec la géométrie industrielle (Fig. 1.7).

Les particules extérieures à cette géométrie spécifique sont supprimées de l'échantillon mère (Fig. 3.7) et un échantillon prêt à être compacté est obtenu.

La géométrie de l'ensemble poinçon-matrice pourrait provenir d'un maillage type CAO. Cependant, la géométrie avec "dishing" et chanfreins reste très simple. Elle peut être représentée par un ensemble limité d'objets (cylindre, sphère, plan, et cône) qui présentent l'avantage de garder un temps de calcul très faible pour obtenir les paramètres nécessaires à la définition du contact (indentation et vecteur normal au contact). Ils sont par ailleurs simples à implémenter et sont reconnus par le package Voro++ (cf. section 2.2.3) qui calcule les cellules de Voronoï autour des particules (Fig. 2.11) en tenant compte de la présence de ces objets.

Pour reproduire le poinçon avec dishing et chanfrein, nous avons combiné trois objets : un plan, une sphère et un cône. La sphère reproduit le dishing, le plan représente la partie plane du poinçon, et le cône (qui a été implémenté dans dp3D pour ce travail) complète le poinçon avec ses chanfreins.

La figure 4.6 illustre le poinçon industriel supérieur modélisé à l'aide de ces objets. En utilisant cette géométrie, nous avons produit trois échantillons numériques correspondant aux trois pourcentages de chamotte. Chacun d'eux contient environ 40 000 agglomérats. Le nombre de particules diminue légèrement pour les échantillons ayant un pourcentage de chamotte plus élevé, une variation due à la différence de hauteur

de chambre (cf. tableau 4.2).

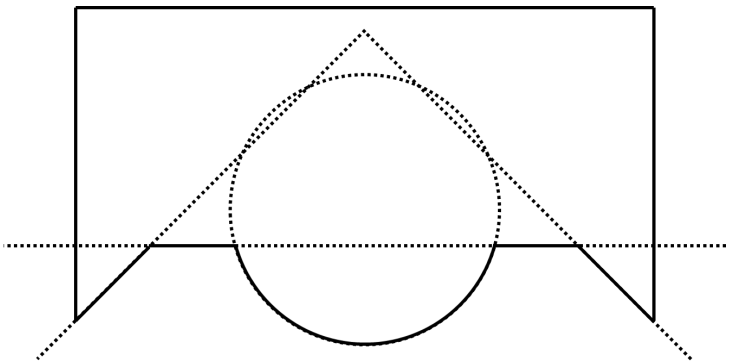

FIGURE 4.6 – Représentation du poinçon à l'aide d'objets dans le code dp3D. Une sphère, un cône et un plan sont suffisants pour représenter le poinçon avec dishing et chanfrein.

Pour estimer la densité initiale $\tilde{\rho}_{init}$ des échantillons numériques, nous nous sommes basés sur les dimensions initiales de la matrice et la masse moyenne des pastilles associées à chaque pourcentage de chamotte, conduisant au tableau suivant :

	UO_2	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
ρ(g/cm^3)	2,077±0,10	2,355±0,08	2,597±0,08	2,867±0,06
$\tilde{\rho}_{init}$	0,190±0,01	0,215±0,01	0,237±0,01	0,262±0,01
$\tilde{\rho}_{init,DEM}$	0,45	0,45	0,45	0,45
$\tilde{\rho}_{aggl}$	0,421	0,477	0,527	0,581

TABLE 4.4 – Propriétés des échantillons numériques pour différents taux de chamotte : densité relative initiale $\tilde{\rho}_{init}$, densité relative initiale des éléments discrets $\tilde{\rho}_{init,DEM}$ et densité relative des agglomérats $\tilde{\rho}_{aggl}$. Les trois densités relatives sont liées par la relation : $\tilde{\rho}_{init} = \tilde{\rho}_{init,DEM} \times \tilde{\rho}_{aggl}$. Ces valeurs sont obtenues à partir de 12 pastilles pressées pour chaque type de poudre.

Dans ce tableau, la valeur de $\tilde{\rho}_{init,DEM}$ est constante, car l'échantillon mère a la même densité initiale dans l'empilement aléatoire de sphères. Ceci suppose que l'introduction de particules de MP ne modifie pas l'arrangement granulaire et donc ne modifie pas la porosité intergranulaire. La conséquence est que la densité des agglomérats $\tilde{\rho}_{aggl}$ n'a pas la valeur de 0,41 mentionnée précédemment (cf. section 3.2.1), étant donné qu'elle est définie comme le rapport $\frac{\tilde{\rho}_{init}}{\tilde{\rho}_{init,DEM}}$.

Une corrélation linéaire est observée entre $\tilde{\rho}_{init}$ et le taux massique de chamotte, comme le montre la figure 4.7. Nous utiliserons cette relation pour déterminer la valeur de $\tilde{\rho}_{aggl}$ pour les agglomérats de MP à différents taux de chamotte.

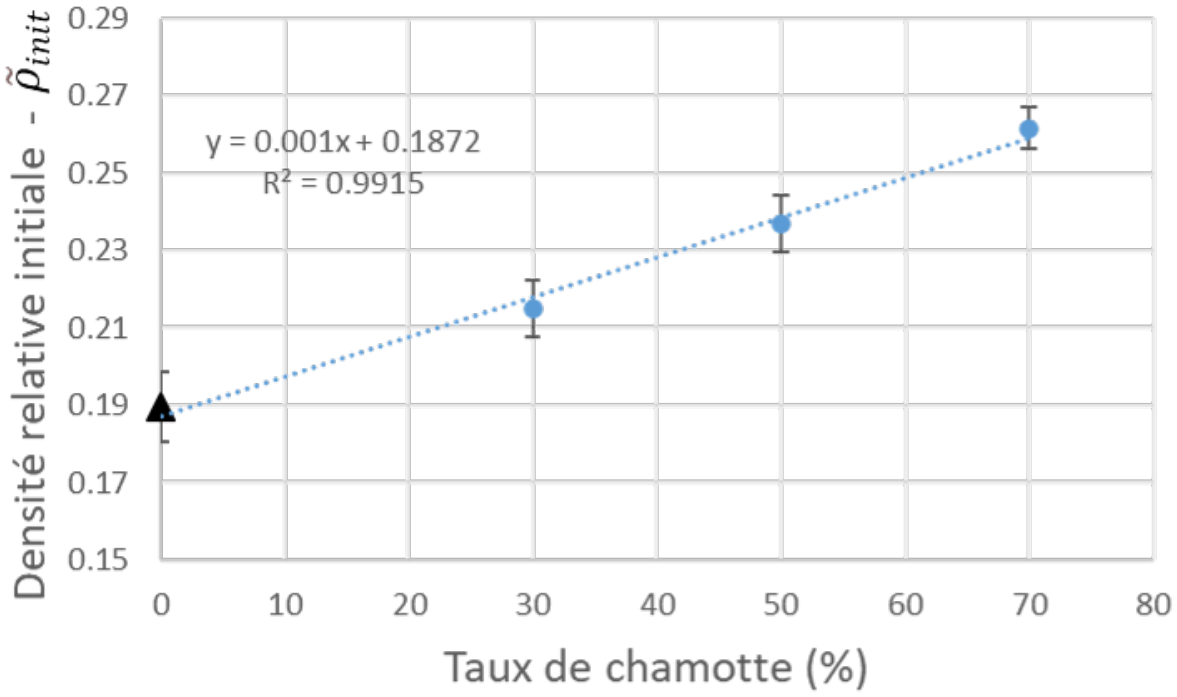

FIGURE 4.7 – Corrélation linéaire entre la densité relative avant compaction $\tilde{\rho}_{init}$ et le taux de chamotte. Les points proviennent de 48 mesures pour chaque taux de chamotte. Le triangle noir représente la densité relative initiale de la poudre UO_2 VH1 étudiée par P. Pizette.

4.2.2 Simulation des étapes de charge, décharge et éjection

Bien que l'ajustement pour le mélange avec chamotte nécessite uniquement la simulation de l'étape de charge (afin d'ajuster le point en fin de compaction, figure 4.5), la validation de cet ajustement exige la simulation de toutes les étapes : charge, décharge, et éjection.

Durant la phase de charge, la compression est réalisée à double-effet, ce qui signifie que les deux poinçons travaillent simultanément pour comprimer la poudre. Cette cinématique est importante pour obtenir un gradient de densité plus symétrique et diminuer son amplitude. En revanche, la décharge est effectuée à simple-effet, c'est-à-dire que seul le poinçon supérieur est en mouvement pour diminuer l'effort de com-

pression.

Le tableau 4.2 a été utilisé pour définir les conditions de terminaison des simulations : l'étape de charge s'effectue jusqu'à atteindre P_{max}, tandis que la décharge se poursuit jusqu'à P_{acc}.

L'étape d'éjection se décompose en trois phases qui représentent trois simulations distinctes :

1. Le glissement intégral de la matrice tout en maintenant la pression d'accompagnement P_{acc} sur le poinçon supérieur, le poinçon inférieur restant immobile.
2. La décompression totale via le poinçon supérieur, le poinçon inférieur restant toujours immobile.
3. Enfin, le poinçon inférieur est retiré.

La cinématique associée à ces étapes est illustrée à la figure 4.8.

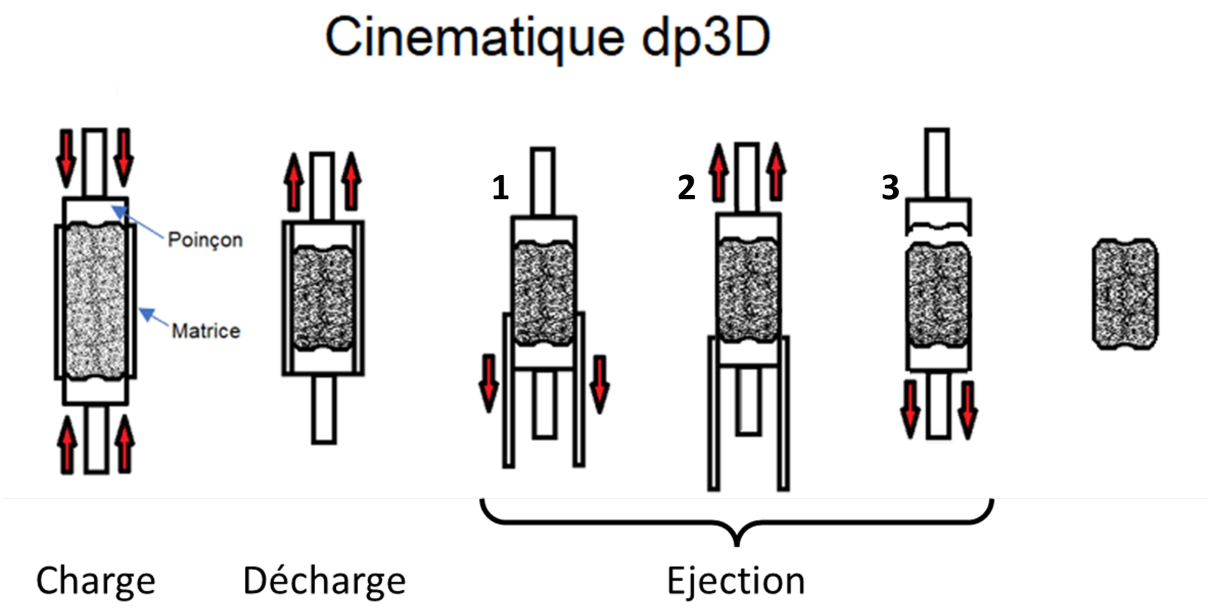

FIGURE 4.8 – Représentation des étapes de charge, décharge et éjection. L'étape d'éjection se décompose en trois phases.

4.2.3 Simulation de la charge

Afin d'ajuster le paramètre matériau σ^* en utilisant l'étape de charge, il est nécessaire dans un premier temps de déterminer le point correspondant à la contrainte

axiale maximale lors de la charge (point vert sur la figure 4.5) pour chaque taux de chamotte. Ce point est uniquement calculé pour P_{max} =4,8×MPa. En effet, comme abordé dans le chapitre 3, l'ajustement obtenu diverge davantage de la courbe expérimentale à des pressions intermédiaires. Cette divergence provient du compromis entre la recherche d'un ajustement correct pour plusieurs mesures, plutôt que d'une concordance parfaite pour une unique mesure (au détriment des autres). De plus, étant donné les nombreuses hypothèses nécessaires pour établir ce point, l'introduction de points supplémentaires pourrait augmenter les erreurs.

Le tableau 4.5 présente les résultats expérimentaux obtenus pour P_{max} =4,8×MPa en supposant un rapport de rebond constant.

	TUCHAM0	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
$R_{radial}(\%)^{a}$	1,02	1,10	1,07	0,99
$R_{axial}(\%)^{b}$	3,77	4,09	3,98	3,67
$H_{min}(\mathrm{mm})^{c}$	12,79	12,90	13,08	13,53
$\tilde{\rho}_{max}{}^{d}$	0,628	0,656	0,685	0,712

[a,c] Calculé par l'équation 4.1.

[b] Calculé par la relation $R_{radial}/R_{axial} = 0,27$.

[d] Avec H_{min}, il est possible de calculer le volume en fin de la charge et ensuite la densité relative en fin de charge $\tilde{\rho}_{max}$.

TABLE 4.5 – Calcul des rebonds élastiques, hauteurs minimales, et densités relatives (en fin de la charge), pour différents taux de chamotte et à une pression maximale P_{max} =4,8×MPa.

La poudre TUCHAM70 affiche la densité la plus élevée, et le rebond élastique le plus faible. Malgré cette différence de densité, les valeurs de rebond et de hauteur restent relativement proches entre les différents types de poudres.

Paramètres matériau

En utilisant les résultats du tableau 4.5, les paramètres matériau pour les agglomérats du MP peuvent être ajustés. Conformément à l'hypothèse présentée au début de

la section 4.2, seul le paramètre σ^* est modifié, tandis que tous les autres paramètres matériau restent constants (cf. tableau 3.1).

La poudre TUCHAM0 est également ajustée ici pour permettre sa comparaison avec les autres poudres TUCHAM ainsi qu'avec la poudre d'UO_2 VH1, qui a été ajustée dans le chapitre 3.

Pour visualiser cet ajustement, la figure 4.9 illustre les courbes contrainte-densité, avec en particulier le point qui correspond à la contrainte axiale maximale qui a servi à l'ajustement de σ^*.

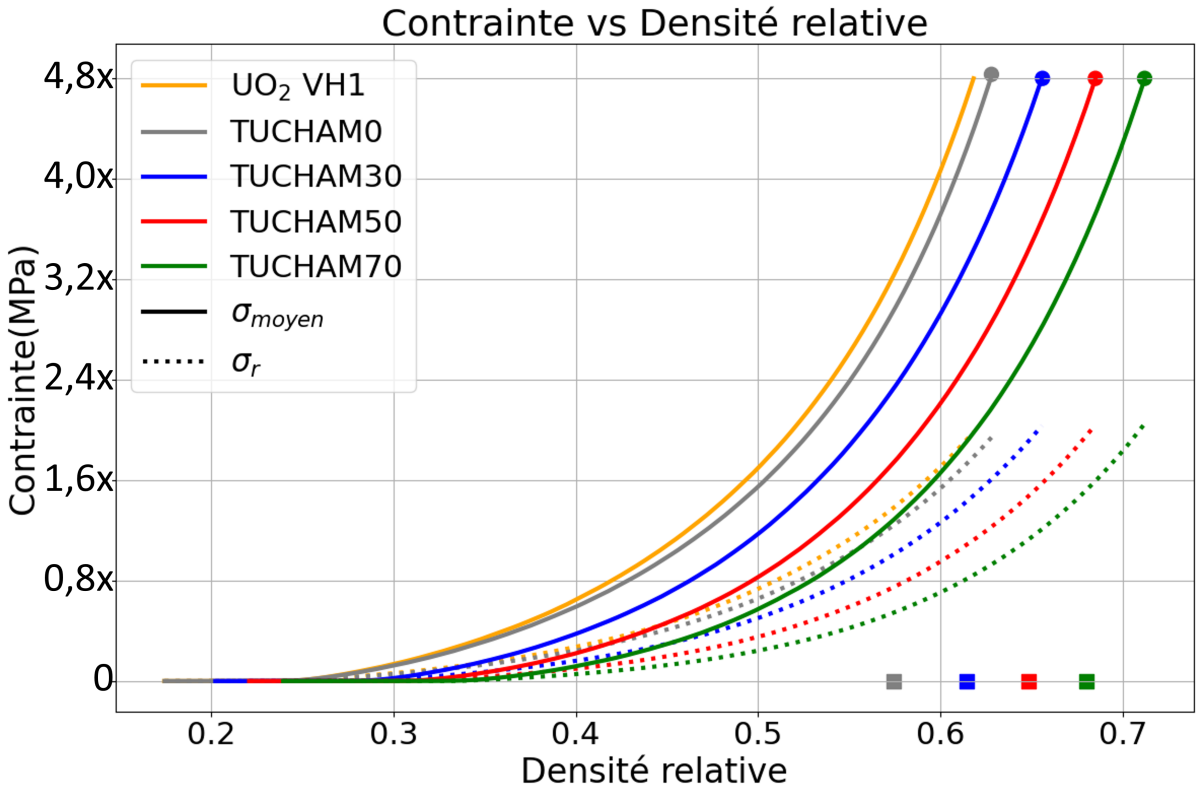

FIGURE 4.9 – Évolution des contraintes axiale et radiale pour différents taux de chamotte. Les points en fin de charge correspondent à la contrainte axiale maximale qui a servi à l'ajustement de σ^*. Les points à contrainte zéro correspondent à la densité relative mesurée expérimentalement après éjection.

La figure 4.9 montre aussi les points après éjection, directement issus des mesures expérimentales. On remarque que la même hiérarchie est observée : à contrainte donnée, $\tilde{\rho}^{TUCHAM0} < \tilde{\rho}^{TUCHAM30} < \tilde{\rho}^{TUCHAM50} < \tilde{\rho}^{TUCHAM70}$. Ceci est lié directement à l'hypothèse que les rapports de rebonds axial et radial sont identiques quel que soit le taux de chamotte.

On observe également que la poudre TUCHAM0 présente un comportement similaire à celui de la poudre d'UO_2 VH1, ajustée dans le chapitre précédent. Cette fois-ci, la simulation de la poudre d'UO_2 VH1 est réalisée par une compaction à double-effet, avec la même densité initiale que celle de la poudre TUCHAM0.

Les valeurs ajustées de σ^* sont récapitulées dans le tableau 4.6 :

	UO_2 VH1	TUCHAM0	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
σ^*(MPa)	132,53	119,40	136,70	128,70	120,80

TABLE 4.6 – Valeurs ajustées de σ^* pour différents taux de chamotte. La valeur de σ^* de la poudre d'UO_2 VH1 est présentée à titre de comparaison.

Ici, il pourrait être tentant de comparer directement les valeurs en anticipant une relation monotone simple entre σ^* et le taux de chamotte. La figure 4.10 montre au contraire que les valeurs de σ^* pour la TUCHAM0 et UO_2 ne s'alignent sur la tendance linéaire qu'indiquent les valeurs pour les 3 TUCHAM30-50-70.

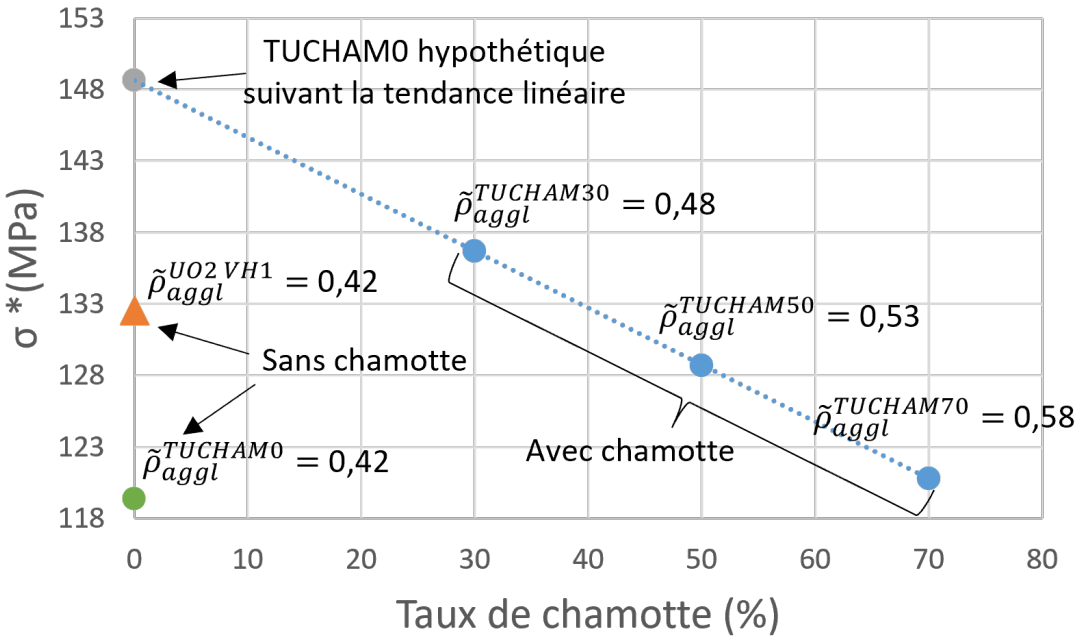

FIGURE 4.10 – Corrélation entre la valeur ajustée de σ^* et le taux de chamotte. La valeur de σ^* pour les agglomérats d'UO_2 VH1 (triangle noir) ainsi que les valeurs associées de $\tilde{\rho}_{aggl}$ ont été portées sur la figure pour comparaison.

Afin de décorréler l'effet du taux de chamotte et celui de $\tilde{\rho}_{aggl}$, il est plus simple de

considérer les courbes de compaction sous la forme contrainte=$f\,(\tilde{\rho}-\tilde{\rho}_{init})$ (Fig. 4.11). Rappelons que $\tilde{\rho}_{init}$ est la valeur initiale de la densité relative avant compaction. Cette translation, communément utilisée par les modèles de compaction, permet de mieux comprendre la compressibilité plastique des poudres [88].

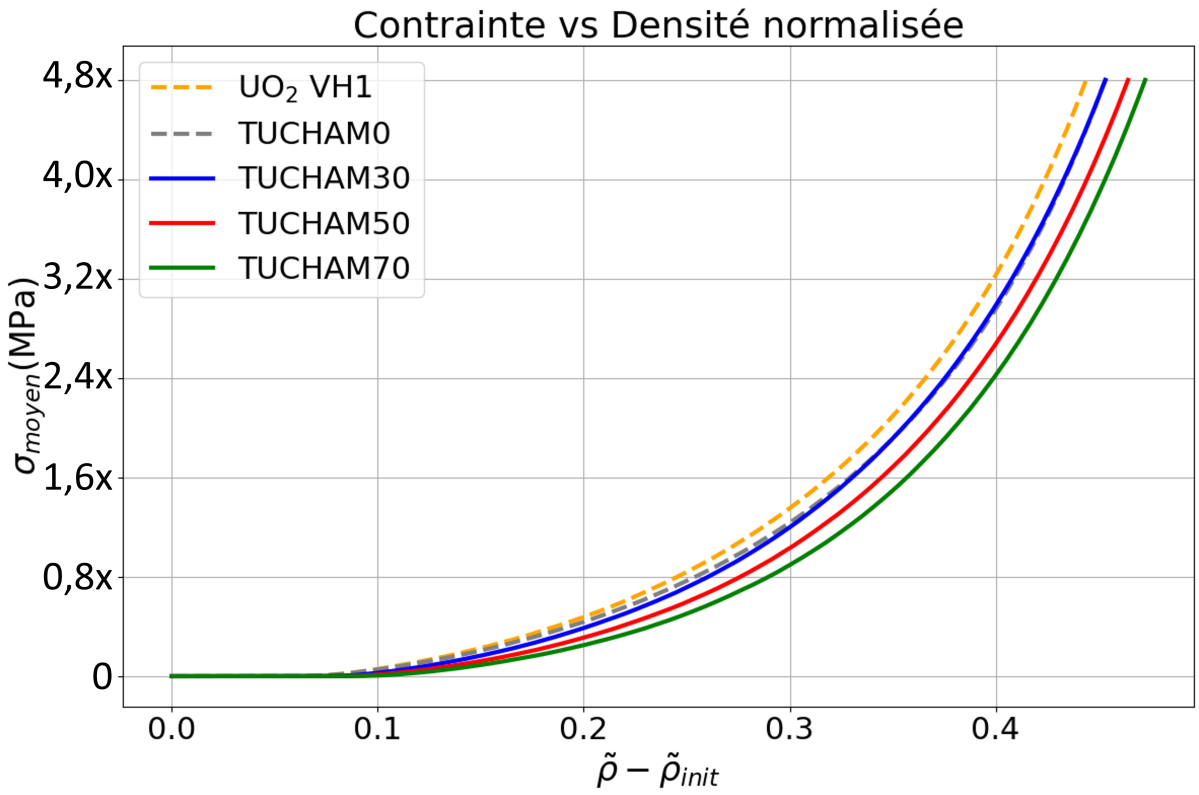

FIGURE 4.11 – Évolution de la contrainte axiale en fonction de $\tilde{\rho}-\tilde{\rho}_{init}$ pour différents taux de chamotte.

Les deux poudres TUCHAM0 et UO_2 VH1 sont proches mais la poudre TUCHAM0 est plus compressible que la UO_2 VH1. Bien que ces deux poudres soient les mêmes, elles proviennent de lots de fabrication différents. Des variations entre ces lots entraînent de légères différences dans certaines propriétés de la poudre, comme la coulabilité, la densité tassée, et la résistance mécanique après compaction. Ces légères variations pourraient être à l'origine de la différence observée dans la valeur de σ^*. Malgré ces différences, les courbes de compaction des deux poudres demeurent toutefois similaires.

La compressibilité plastique de la poudre TUCHAM30 coïncide avec celle de la TUCHAM0. Le processus de fabrication pour ces poudres est identique, la seule dis-

tinction réside dans une étape de mélange au Turbula pour la TUCHAM30 (voir section 4.1.3). Cette étape, en théorie, ne devrait pas engendrer de variations notables dans le comportement de la poudre ; par conséquent nous pouvons comparer ces deux poudres. La figure 4.11 montre qu'en deçà d'un taux de chamotte de 30%, il semble que la chamotte a un impact minimal sur la compressibilité de la poudre. Au-delà de cette valeur, la figure 4.11 montre que la poudre devient d'autant plus compressible que le taux de chamotte augmente (voir les courbes TUCHAM30-50-70).

Ces observations expliquent la tendance non monotone de σ^* visible sur la figure 4.10. Dans l'intervalle de taux de chamotte de 0 à 30%, la compressibilité en fonction de $\tilde{\rho} - \tilde{\rho}_{init}$ reste constante. Cependant, comme $\tilde{\rho}_{aggl}$ augmente avec le taux de chamotte, pour conserver une compressibilité similaire entre 0% et 30%, σ^* doit augmenter. Passé ce seuil de 30%, σ^* commence à diminuer, ce qui traduit l'influence croissante de la chamotte sur la compressibilité. La caractérisation d'une éventuelle poudre intermédiaire entre TUCHAM0 et TUCHAM30 permettrait de valider cette interprétation.

4.2.4 Rebonds élastiques après éjection des poudres de MP

La figure 4.12 illustre le champ de déplacement radial en 2D à chaque phase d'éjection pour un taux de chamotte de 30%.

A l'issue du glissement de la matrice (1), un rebond radial important est obtenu. Ceci est logique puisqu'à la fin de la phase de glissement de la matrice, la contrainte radiale sur le comprimé est totalement relâchée (effet Poisson). C'est donc pendant cette phase que l'essentiel du rebond élastique radial est obtenu (0,5% environ). Les deux autres phases (2-3), mettent en jeu des rebonds radiaux beaucoup plus faibles et qui sont négatifs à mi-hauteur de la surface de la pastille. Ces rebonds ne modifient quasiment pas le rebond radial final.

La figure 4.13 illustre la géométrie en 2D après éjection pour différents taux de chamotte.

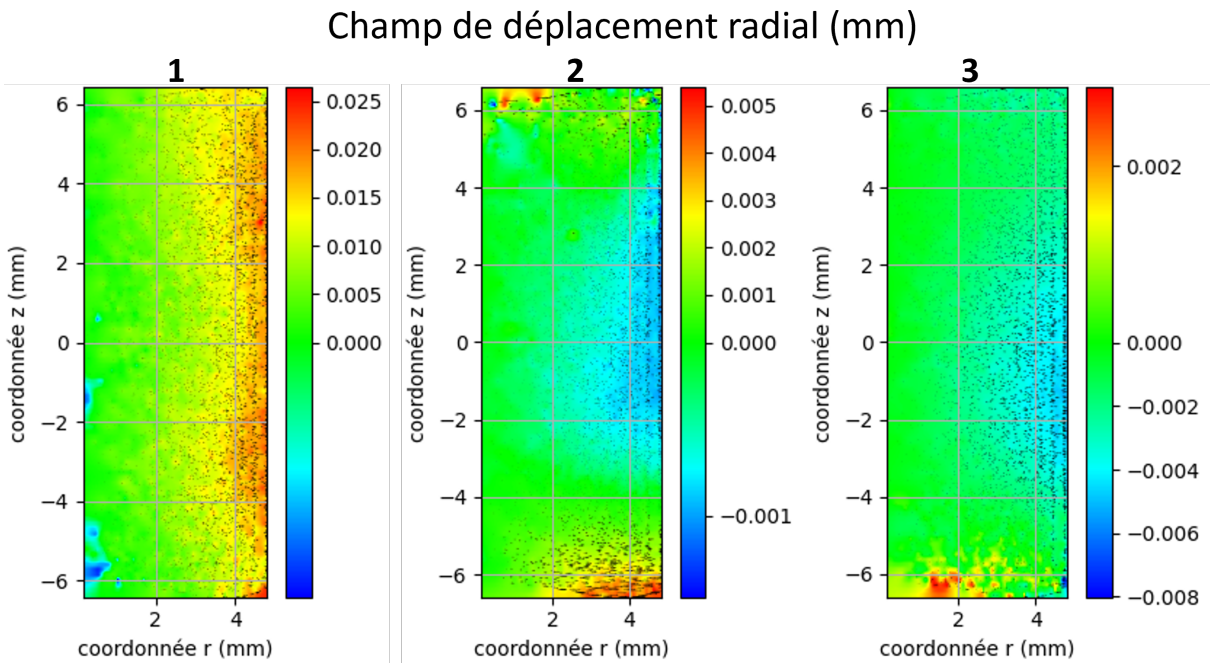

FIGURE 4.12 – Champ de déplacement en radial pour un taux de chamotte de 30% durant les trois étapes d'éjection : glissement de la matrice (1.), décharge totale du poinçon supérieur (2.) et décharge totale du poinçon inférieur (3.). L'image montre la moitié d'une pastille, l'autre moitié étant symétrique.

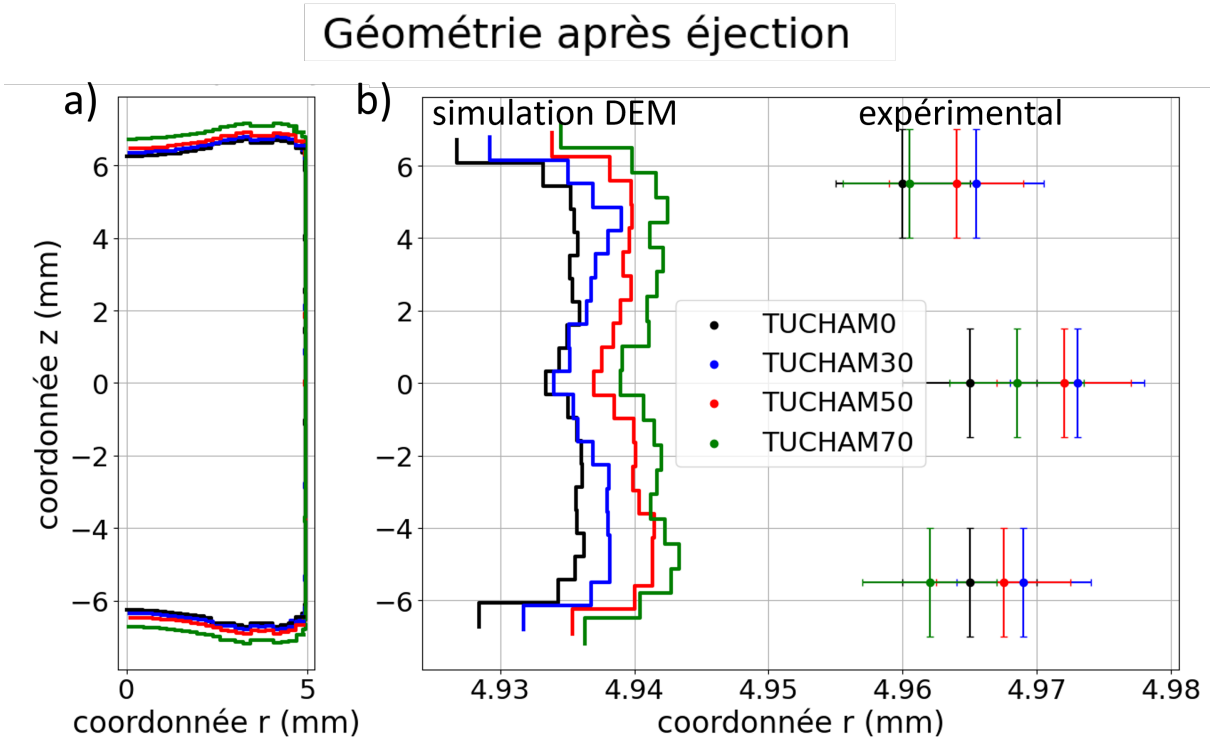

FIGURE 4.13 – Géométrie de la pastille après éjection pour différents taux de chamotte. Pour chaque taux, deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent la mesure expérimentale en trois points : en haut, au milieu et en bas.

La vue globale des échantillons (Fig. 4.13-a) montre le dishing et les chanfreins mais ne donne pas d'informations fines sur la surface extérieure radiale de la pastille.

La figure 4.13-b zoome sur la surface extérieure. Les trois compositions (30, 50, 70) présentent une géométrie radiale similaire et quasi symétrique entre le haut et le bas de la pastille. On remarque que le diamètre le plus faible de la pastille se trouve près du chanfrein, mais que la portion de la pastille qui exhibe ce diamètre minimal est très petite. Elle est difficile à distinguer dans la pratique de la zone de chanfrein. La pastille s'épaissit ensuite puis son rayon diminue de nouveau (très légèrement) vers le centre.

Les mesures expérimentales, illustrées par les points de la figure 4.13-b, sont accompagnées de leurs écarts types. Pour les poudres TUCHAM, les simulations indiquent un diamètre plus réduit que les mesures expérimentales. Alors que les simulations indiquent une augmentation du diamètre avec un taux de chamotte croissant, les observations expérimentales montrent le phénomène inverse pour les TUCHAM30, 50 et 70. Cette divergence provient de notre choix de ne pas ajuster le module d'Young des agglomérats de MP par rapport à celui de l'UO_2 VH1. Bien que l'identification d'un module d'Young E pour chaque TUCHAM puisse permettre de se rapprocher des résultats expérimentaux, cela remettrait en question l'intégralité des résultats de simulation obtenus dans le chapitre 3 (carte de densité, fluidité, indice de friction...). En effet, E exerce une influence non seulement sur le rebond élastique, mais aussi sur l'ensemble de la simulation. Modifier E pourrait altérer considérablement la carte de densité, passant inaperçu lors de la compaction, mais manifeste après frittage (par l'effet diabolo). C'est pourquoi, bien que la chamotte soit reconnue pour impacter les propriétés élastiques à la décharge [101], sa contribution n'est intégrée dans les simulations que via le paramètre σ^*.

Quant à la forme des pastilles, les mesures expérimentales démontrent un effet tonneau, le diamètre central étant plus grand que les extrémités. Les simulations concordent grossièrement avec cette observation, en particulier si l'on tient compte des écarts types. D'ailleurs les écarts type axiaux élevés découlent du fait que le proto-

cole suivi ne permet pas de définir l'emplacement précis des mesures expérimentales. Ces mesures visaient principalement à déterminer les diamètres aux trois positions distinctes, sans spécifier la hauteur exacte.

Pour la pastille TUCHAM0, cet effet tonneau est moins prononcé. En effet, le diamètre inférieur coïncide avec le diamètre central. Cette particularité pourrait s'expliquer par les conditions spécifiques de pressage de la TUCHAM0, en particulier la valeur de P_{acc}, comme le souligne le tableau 4.2.

Selon les simulations, les plus grands diamètres ne se situent pas à mi-hauteur, mais approximativement aux 2/3, en partant du centre. Pour valider ou invalider cette observation, des mesures expérimentales supplémentaires, effectuées à différentes hauteurs et avec une précision accrue, s'avèrent nécessaires.

Une dissymétrie légère est observée pour les TUCHAM30, 50 et 70, avec un diamètre légèrement supérieur en bas. Toutefois, les mesures expérimentales ne permettent pas de déduire une tendance claire concernant cette variation de diamètre. Cette légère dissymétrie, mise en évidence par les simulations, peut s'expliquer par l'utilisation d'un échantillon mère doté d'une microstructure invariable (voir section 3.2.1). En d'autres mots, la variation de la microstructure initiale de l'échantillon mère pourrait changer cette légère dissymétrie ou même inverser le sens, vu que la variation des diamètres est de l'ordre du micron.

Le tableau 4.7 résume les données expérimentales et les résultats des simulations.

La hauteur finale simulée est en adéquation correcte avec les données expérimentales. Le R_{axial} est calculé en mesurant la hauteur maximale de la pastille sur la figure 4.13, tandis que le R_{radial} est obtenu en mesurant son diamètre maximal. Ces mesures, effectuées sur un échantillon numérique, correspondent à ce que l'on obtiendrait en utilisant un pied à coulisse sur un échantillon réel. Comme observé expérimentalement, le rapport des rebonds radiaux et axiaux ne dépend pas, pour les simulations, de la poudre compactée.

	TUCHAM0	TUCHAM30	TUCHAM50	TUCHAM70
hauteur simulation(mm)	13,23	13,412	13,650	14,170
hauteur expérimentale(mm)	13,27	13,424	13,603	14,029
R_{axial} simulation(%)	3,34	3,99	4,36	4,75
R_{axial} expérimental(%)	3,77	4,08	3,98	3,67
R_{radial} simulation(%)	0,43	0,49	0,54	0,58
R_{radial} expérimental(%)	1,02	1,10	1,07	0,99
$\frac{R_{radial}}{R_{axial}}$ simulation	0,129	0,122	0,124	0,121
$\frac{R_{radial}}{R_{axial}}$ expérimental	0,27	0,27	0,27	0,27

TABLE 4.7 – Rebonds et hauteur des pastilles après éjection pour différents taux de chamotte.

La figure 4.14 compare les résultats des simulations aux données expérimentales pour les rebonds.

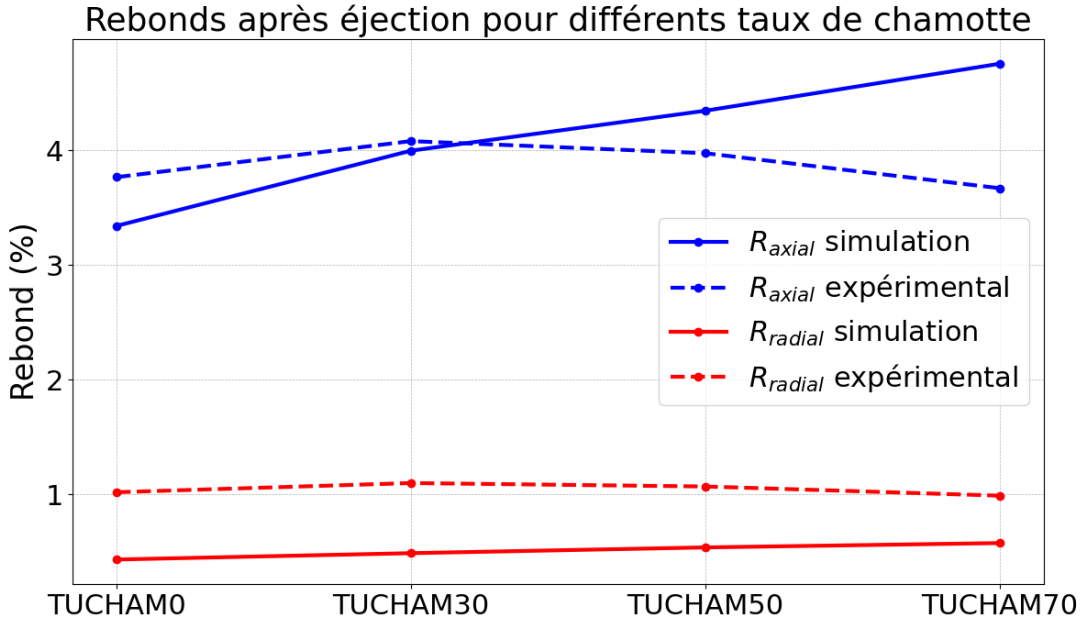

FIGURE 4.14 – Comparaison des rebonds axiaux et radiaux après éjection pour différents taux de chamotte.

Concernant les rebonds axiaux, les résultats de simulation sont en bon accord avec les données expérimentales, sauf pour la poudre TUCHAM70 où l'écart est d'environ 1% entre le R_{axial} simulé et le R_{axial} expérimental. Les simulations indiquent que ce

rebond augmente avec la teneur en chamotte, tandis que les données expérimentales indiquent la tendance inverse à partir de la poudre TUCHAM30.

Concernant le rebond radial, les valeurs expérimentales et les valeurs simulées indiquent que le rebond radial est beaucoup plus faible que le rebond axial (0,5 à 1% en radial contre 4% en axial). On remarque que les valeurs de rebond radial simulé sont environ deux fois plus petites que celles observées expérimentalement.

Ce désaccord entre données expérimentales et simulation peut avoir plusieurs origines. Comme indiqué précédemment, nous n'avons pas tenté de modifier le module d'Young des particules de MP. Le rebond élastique axial est globalement en bon accord avec la valeur expérimentale ($\approx 4\%$). Une modification du module d'Young agirait sur les deux rebonds et ne permettrait pas de conserver la valeur du rebond axial.

Expérimentalement, une déformation visco-élastique après éjection a été observée : après une certaine période, les pastilles se dilatent, entraînant une augmentation de leur diamètre. Bien que l'ampleur de cette variation nécessite une étude plus approfondie (en particulier sur son influence à la fois sur le rebond axial et sur le rebond radial), elle pourrait expliquer en partie le désaccord entre simulations et données expérimentales sur le rebond radial. Aucun effet visco-élastique n'est introduit, pour le moment, dans la modélisation DEM.

4.3 Compaction de la poudre MOX

Les paramètres matériau des agglomérats d'UO_2 (chapitre 3) et de MP (section précédente) ont été déterminés. La compaction de la poudre MOX, un composite de ces deux agglomérats, peut donc être simulée. Dans cette section, la compaction du MOX (avec une composition typique de 30% de MP et 70% d'UO_2) est comparée à celle de l'UO_2 pur et du MP pur. Le MP a la même composition que celui utilisé pour le MOX simulé, soit 50% de chamotte et 50% de UO_2. Les conditions de pressage sont identiques pour ces trois poudres. Ces conditions correspondent à celles indiquées dans le tableau 4.2 pour la poudre TUCHAM50 à P_{max} =4,8×MPa.

La pastille MOX simulée en 3D est représentée sur la figure 4.15 avec les agglomérats de MP et ceux d'UO_2. On distingue le dishing et les chanfreins.

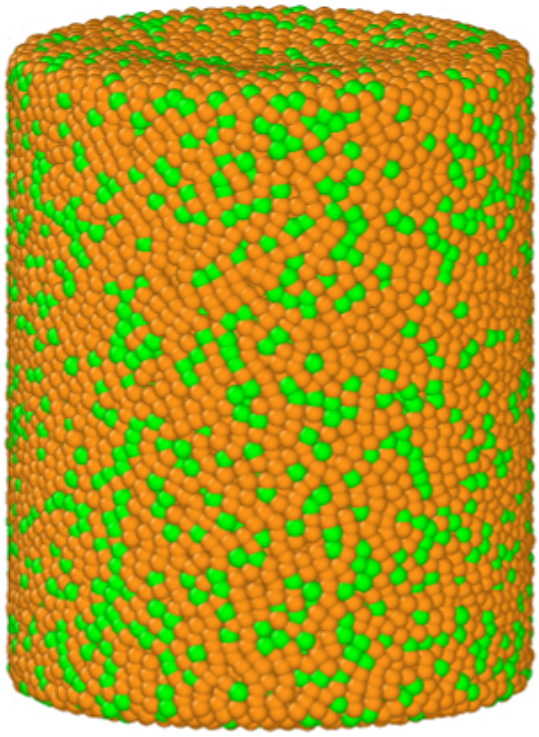

FIGURE 4.15 – Visualisation 3D de la pastille MOX après éjection. Les sphères vertes représentent les agglomérats de MP tandis que les sphères orange représentent les agglomérats d'UO_2.

Les courbes contrainte-densité pendant la charge pour ces trois poudres sont présentées à la figure 4.16.

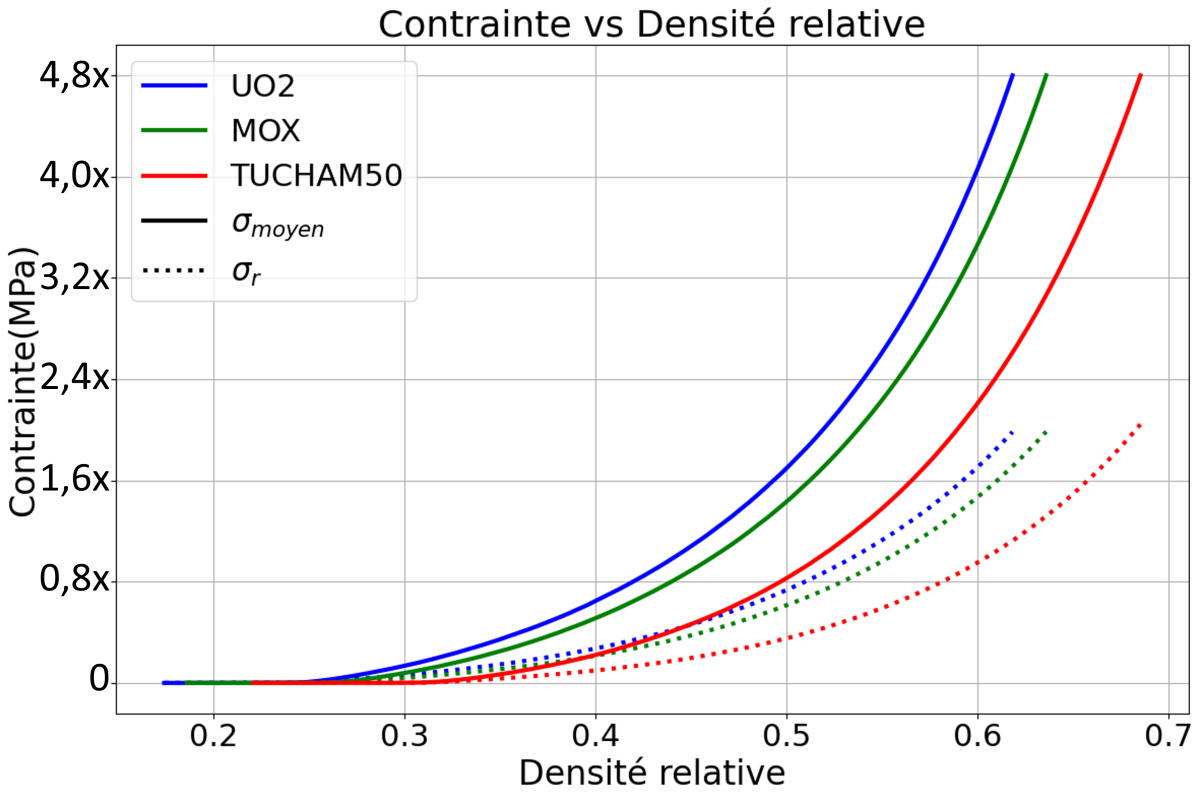

FIGURE 4.16 – Comparaison des courbes contrainte-densité lors de la charge pour les poudres d'UO_2, MP (TUCHAM50) et MOX (composé à 70% d'UO_2).

Comme attendu, le comportement de la poudre MOX, qui est un mélange de poudres TUCHAM50 et UO_2, est intermédiaire entre les comportements des poudres TUCHAM50 et UO_2. Les comportements des poudres TUCHAM50 et UO_2 peuvent être considérés comme des bornes du comportement du MOX (lorsqu'il contient du MP de type TUCHAM50). L'indice de fluidité, calculé comme le rapport entre σ_r et σ_{moyen}, est le même pour les trois poudres, environ 0,44.

La carte de densité après charge est illustrée à la figure 4.17 pour les trois poudres (UO_2, MOX et TUCHAM50). Les coefficients de frottement (en particulier le frottement poudre/matrice) ont les mêmes valeurs pour les trois poudres. La carte de densité dépend essentiellement de ces frottements. Il est donc logique que les cartes de densité soient similaires. On note cependant des différences. Les gradients de densité pour la poudre TUCHAM50 sont plus prononcés, ce qui est attribuable à sa plus grande densification, comme le montre la figure 4.16. Pour une contrainte de compaction donnée, la poudre TUCHAM50 a subi une déformation axiale plus grande.

Les particules qui sont proches de la matrice et des poinçons et qui subissent un frottement avec ces objets ont stocké une énergie élastique supérieure aux deux autres poudres (l'énergie élastique par unité de volume est proportionnelle à la déformation élastique subie). Cette densification supplémentaire entraîne donc un gradient de densité plus marqué. Les densités plus faibles observées au niveau du "dishing" sont en bon accord avec les résultats des simulations éléments finis [43].

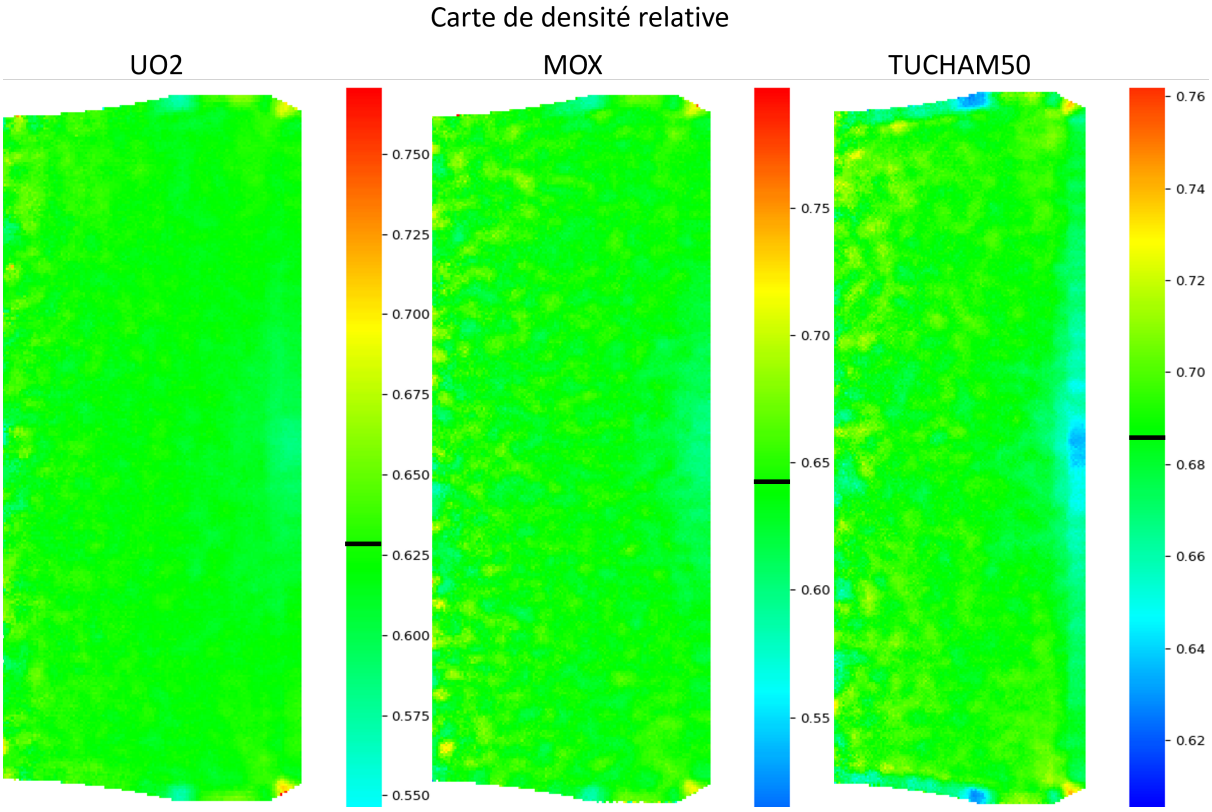

FIGURE 4.17 – Carte de densité après charge des poudres d'UO_2, MOX (à 70% d'UO_2) et MP (TUCHAM50). Le trait noir sur la barre de couleur correspond à la valeur moyenne de la densité de la pastille.

Il n'y a pas de différence notable entre les trois poudres lors de la décharge. Ceci est essentiellement lié au fait que le même module d'Young a été utilisé. En analysant la carte de densité après décharge (figure 4.18), on constate une asymétrie entre le bas et le haut de la pastille. Dans la partie supérieure (en particulier près du dishing), la densité a encore diminué par rapport à celle observée à la figure 4.17. C'est la conséquence de la décharge du poinçon supérieur. Dans la partie inférieure (dont le poinçon est fixe), la densité à l'issue de la décharge est très proche de celle obtenue en fin de

charge (Fig. 4.17). Cette asymétrie résulte du frottement entre la poudre et la paroi de la matrice. Une diminution du coefficient de frottement poudre-matrice conduirait à une densité plus homogène.

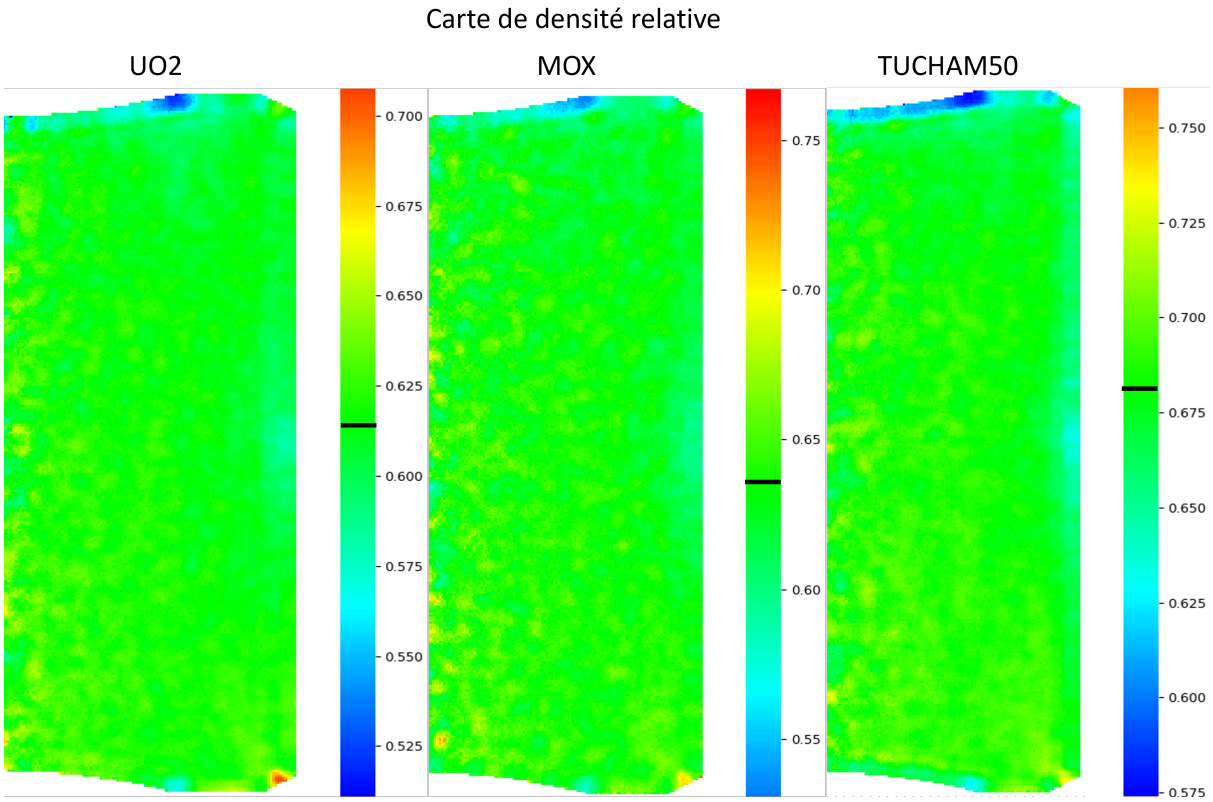

FIGURE 4.18 – Carte de densité à l'issue de la décharge des poudres. Le trait noir sur la barre de couleur correspond à la valeur moyenne de la densité de la pastille.

En ce qui concerne l'étape d'éjection, les trois poudres affichent des comportements similaires en raison d'un module d'Young identique. L'outil développé pour générer la carte de densité ne permet pas de produire une telle carte pendant la phase d'éjection. Cet outil, basé sur les cellules de Voronoï pour déterminer la densité locale (cf. Fig. 2.11), devient imprécis lorsque la matrice est retirée pendant l'éjection, faussant ainsi les valeurs de densité locale. Ceci est lié à l'utilisation par le package Voro++ des objets (sphères, plans, cônes) pour évaluer correctement les densités locales des particules en surface de la pastille. Une fois les objets retirés, la densité Voronoï à l'intérieur de la pastille reste correcte, mais la densité Voronoï en surface (celle qui nous intéresse le plus) ne l'est pas. Les déformations les plus significatives sont pendant les phases de charge et décharge. On peut donc se baser sur la figure 4.18 pour évaluer la

carte de densité de la pastille éjectée.

La figure 4.19 montre la géométrie des pastilles après éjection.

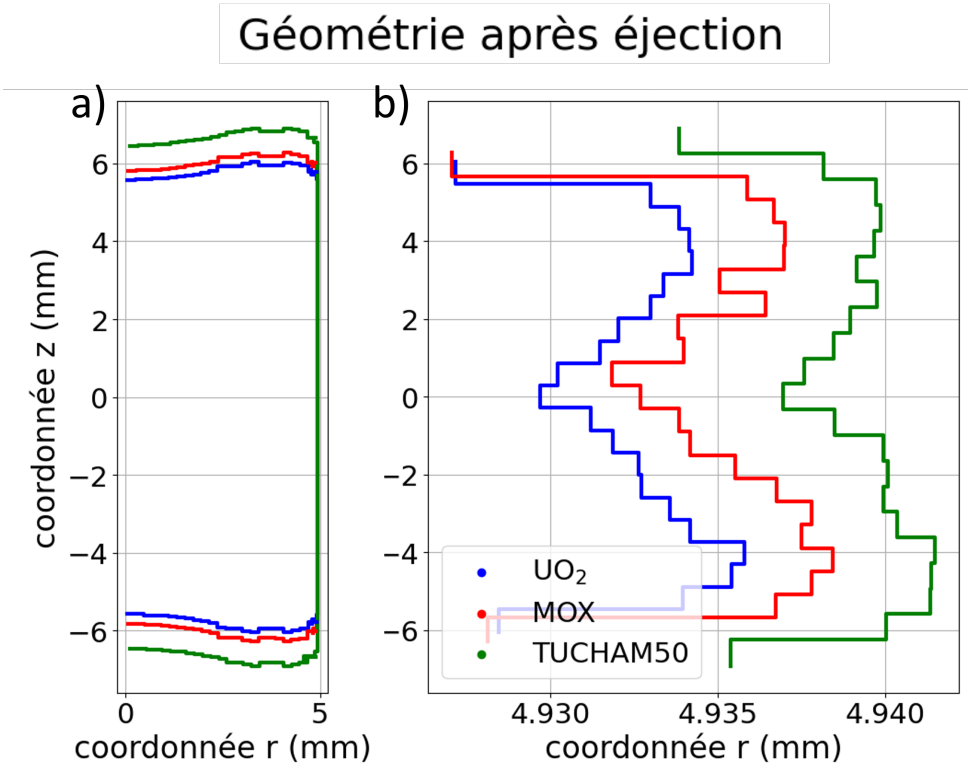

FIGURE 4.19 – Géométrie des pastilles d'UO_2, MOX et TUCHAM50 après éjection. Pour chaque poudre, deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b).

Celle-ci est très similaire à celles déjà montrées à la figure 4.13 pour les poudres TUCHAM. On y retrouve en particulier, le plus faible rayon de la pastille aux deux extrémités (haute et basse). On observe aussi la légère dissymétrie de la géométrie entre le haut et le bas de la pastille. On remarque aussi que la présence de l'UO_2 diminue le diamètre de la pastille, ce qui est cohérent compte tenu de la moindre énergie élastique emmagasinée (densification moindre, Fig. 4.16). Comme attendu, la géométrie radiale des pastilles de MOX est intermédiaire entre celle de l'UO_2 et de la TUCHAM50. Ceci est lié à la courbe de compaction de la poudre MOX (Fig. 4.16 qui est intermédiaire entre l'UO_2 et la TUCHAM50.

4.4 Conclusion

Avec l'obtention du modèle numérique des agglomérats de MP à différents taux de chamotte, il est désormais possible de simuler la compaction de la poudre MOX avec la DEM. Contrairement aux simulations par éléments finis, notre simulation DEM permet de modifier la composition de la poudre MOX sans nécessiter de nouvelles caractérisations. Cette versatilité découle de l'approche discrète de la DEM, qui permet d'introduire naturellement des particules de propriétés différentes.

Les développements sur le code dp3D ont permis par ailleurs de reproduire la géométrie des poinçons et les conditions de pastillage. De même, il sera possible de modifier la géométrie et la cinématique pour étudier les effets sur la qualité finale de la pastille.

Il convient toutefois de revenir sur les hypothèses simplificatrices adoptées par manque de données. Nous avons supposé un rapport de rebonds élastiques constant entre les différentes poudres. Cette hypothèse est raisonnable et facilite la détermination de la hauteur minimale en fin de charge. Mais elle reste à confirmer, en particulier pour les agglomérats de MP.

Nous avons, par ailleurs, supposé que le comportement de la poudre de PuO_2 est le même que celui d'UO_2 dans le mélange primaire. Cette hypothèse facilite l'ajustement des paramètres matériau des poudres, mais elle introduit très certainement une erreur sur le modèle numérique. En particulier, les propriétés élastiques du PuO_2 dense sont différentes (le module d'Young du PuO_2 est approximativement 14% supérieur à celui de l'UO_2 [132] (tableau 4.1)). Avec cette hypothèse, nous avons donc sous-évalué les différences élastiques entre les poudres TUCHAM.

L'hypothèse la plus forte, et qui a des conséquences importantes sur l'ensemble du calcul, est que à l'exception de σ^*, tous les paramètres matériau restent inchangés entre la poudre d'UO_2 et les poudres TUCHAMXX. Cette hypothèse permet de simplifier grandement la phase de calibration pour les mélanges. Mais elle contraint la réponse des poudres lors de la compaction : l'allure de la courbe contrainte-densité, l'indice de

fluidité, la carte de densité, et le comportement lors de la décharge et l'éjection restent très proches quelle que soit la poudre (qu'il s'agisse d'UO_2 ou de TUCHAMXX).

Pour les perspectives futures, l'acquisition de données expérimentales supplémentaires sur la compaction serait très utile. Intégrer des capteurs radiaux et de hauteur à la presse s'avère être une étape nécessaire. Ces instruments permettraient de mesurer respectivement la contrainte radiale et la densité relative en cours de compaction. En se rapprochant davantage des conditions expérimentales, nous pourrons réduire le nombre d'hypothèses, affiner la simulation du processus industriel et obtenir une caractérisation plus précise d'une poudre UO_2 d'origine industrielle, plutôt que de se baser sur l'étude de P. Pizette.

Concernant la poudre de PuO_2, malgré les défis associés à sa manipulation, il serait judicieux de confirmer notre hypothèse sur son comportement similaire à celui d'UO_2.

Enfin, les simulations actuelles ouvrent la porte à des études sur l'influence de la géométrie industrielle sur la carte de densité, offrant un potentiel outil pour les industriels.

Chapitre 5

Frittage des pastilles nucléaires

Dans les chapitres précédents, l'attention a été principalement portée sur la simulation des pastilles nucléaires sous l'angle de la compaction en matrice. Dans un premier temps, un modèle numérique des agglomérats d'UO_2 a été élaboré en utilisant l'apprentissage machine (chapitre 3). Par la suite, un modèle numérique des agglomérats de MP a été créé (chapitre 4). La cinématique industrielle et la géométrie spécifique des poinçons, avec les chanfreins et le "dishing", ont été utilisées pour ce modèle numérique. Cela nous a permis de procéder à la compaction numérique du composite MOX, constitué d'agglomérats d'UO_2 et de MP (section 4.3 du chapitre 4).

Ce dernier chapitre se focalise sur la simulation du frittage des pastilles, le deuxième volet de cette thèse. Il servira de preuve de concept, et aura pour objectif d'étudier l'impact du gradient de densité (généré lors de la compaction) sur la géométrie finale de la pastille.

5.1 Lois de frittage

Ce chapitre explore deux approches distinctes pour aborder le frittage des pastilles éjectées. La première est une approche empirique, où une loi de densification est établie uniquement à partir de la carte de densité des pastilles après éjection. La seconde est une approche plus proche de la physique du frittage et faisant appel à une loi de contact spécifique pour la DEM.

5.1.1 Modèle affine

Dans la section 1.2.1 du chapitre 1, nous avons présenté le modèle empirique proposé par Fourcade [23], qui exprime, pour une hauteur donnée, le diamètre d'une pastille frittée en fonction de sa densité et de son diamètre avant frittage (équation (1.4)). En essence, cette équation linéaire (1.4) montre que pendant le frittage, les parties moins denses de la pastille ont tendance à se densifier davantage que les parties plus denses.

Dans le cadre de ce chapitre, un modèle empirique alternatif plus adapté à la DEM est proposé. Il doit être capable de déterminer non seulement le diamètre mais aussi la hauteur de la pastille durant et après le frittage. Cette approche s'appuie sur la notion de déplacement affine, traitée dans la section 2.1.5 du chapitre 2, où, à chaque pas de temps, chaque particule subit un déplacement qui conduit à un champ de déplacement homogène. L'équation proposée induit une densification locale, désignée "frittage affine", similaire à celle du déplacement affine (équation (2.1)). La déformation imposée à la particule i, ε_i, est considérée hydrostatique. Elle est fonction de la densité locale avant frittage $\tilde{\rho}_{init,i}$ pour la particule i, calculée à partir des cellules de Voronoï, et de la densité finale à atteindre $\tilde{\rho}_{finale}$:

$$\varepsilon_i = -\frac{(\tilde{\rho}_{finale} - \tilde{\rho}_{init,i})^{\alpha}}{3} \tag{5.1}$$

La densité $\tilde{\rho}_{finale}$ est la densité macroscopique de la pastille tandis que $\tilde{\rho}_{init,i}$ est la densité locale qui varie d'un point à un autre de la pastille. L'équation (5.1) montre que c'est l'écart à la densité finale qui régit la densification locale de la pastille.

Comme expliqué précédemment dans la section 4.3 du chapitre 4, la densité relative après éjection (notée $\tilde{\rho}_{init,i}$) est sous-évaluée en surface. Ce problème est lié à l'absence des objets servant au calcul de la densité Voronoï qui ne sont plus en contact avec la surface de la pastille, et au fait que cette surface n'est plus cylindrique après le retrait de la matrice et des poinçons (voir Fig. 4.19 du chapitre 4 pour illustration). Néanmoins, c'est l'hétérogénéité de densité relative sur la hauteur de la surface qui

va générer avec ce modèle une déformation hétérogène (le diabolo). La densité des particules à mi-hauteur sera légèrement sous-évaluée par rapport à celle sous le chanfrein. Grâce au paramètre empirique α, il est possible de compenser cette inexactitude et d'ajuster la densification en fonction de l'écart entre la densité locale et la densité finale.

Cette approche présente l'avantage de pouvoir simuler le frittage d'une pastille crue très rapidement. Elle permet aussi de prendre en compte de manière très simple la principale force motrice pour la densification locale : la diminution de la porosité locale. Toutefois, le paramètre α nécessite d'être ajusté. En particulier, la composition de la poudre utilisée (taux de chamotte par exemple) et les conditions de pastillage peuvent avoir une influence sur le retrait local au frittage. Ces aspects ne sont pas pris en compte par cette approche.

5.1.2 Modèle discret

Pour l'approche discrète qui prend mieux en compte les phénomènes physiques de diffusion à l'échelle des particules, quatre modèles sont disponibles dans le code dp3D :

- **Le modèle de Jagota** [133] : un modèle de type frittage visqueux, il s'applique particulièrement aux matériaux de type verre [134]. Ce modèle a été utilisé précédemment pour étudier les viscosités et les taux de frittage effectifs d'un composite, composé de sphères dures et molles [135].
- **Les modèles de Parhami et de Bouvard** [136, 137] : ces deux modèles, similaires dans leur conception, sont appliqués au frittage de poudres métalliques et céramiques. Ils prennent en compte la diffusion aux joints de grains et en surface.
- **Le modèle de Paredes-Goyes** [61] : un modèle dérivé du modèle de Bouvard et qui intègre cette fois-ci le mécanisme de grossissement des grains.

Pour cette étude, le modèle de Bouvard a été choisi car il répond suffisamment bien à notre objectif principal : simuler l'effet diabolo à l'issue du frittage. Le mo-

dèle de Paredes-Goyes, bien qu'étant une version améliorée du modèle de Bouvard, introduit une augmentation significative du temps de calcul lors des simulations. Le grossissement de grain n'est sans doute pas le facteur le plus important à prendre en compte pour décrire la déformation de la pastille lors du frittage. Comme pour les autres étapes de la simulation, le module de frittage résout de manière explicite la seconde loi de Newton pour chacune des particules. Les particules sont déplacées dans le premier 1/2 pas de temps en utilisant la solution affine (déformation homogène).

Le modèle de Bouvard introduit deux types de forces : une force normale, notée N_s ; et une force de cisaillement au contact, notée T_s. La figure 5.1 illustre ces forces sur un contact entre les particules i et j.

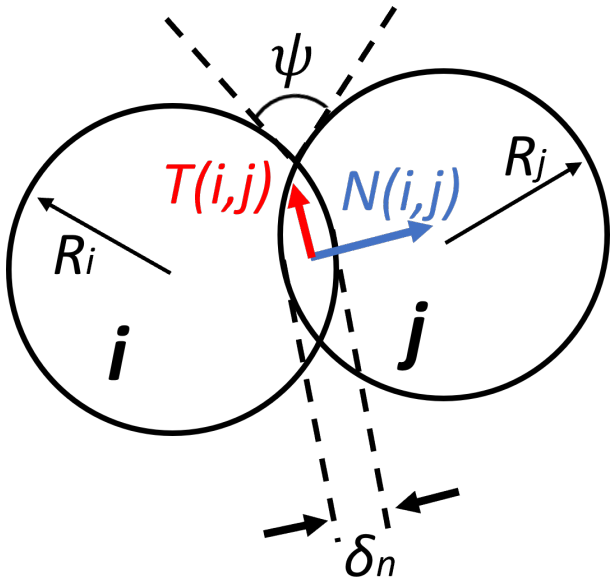

FIGURE 5.1 – Schéma représentant deux particules i et j en contact. $N_{(ij)}$ est la force normale, $T_{(ij)}$ la force tangentielle, δ_n l'indentation normale du contact, et ψ l'angle dièdre au contact.

La force normale N_s qui agit sur un contact entre deux particules peut être exprimée comme suit :

$$N_s = \frac{\pi a_s^4}{2\beta\Delta_b}\frac{\mathrm{d}\delta_n}{\mathrm{d}t} - \frac{2\alpha}{\beta}\pi R^* \gamma_s \tag{5.2}$$

où a_s est le rayon de contact (calculée en utilisant le modèle géométrique de Coble [138]), Δ_b est un paramètre de diffusion (qui prend en compte la diffusion aux joints de grains), δ_n est l'indentation normale du contact et γ_s est l'énergie de surface.

Les paramètres α et β dépendent du rapport entre la diffusion aux joints de grains et la diffusion en surface [137, 139]. Selon Bouvard et al., les simulations numériques sur des paires de particules montrent une adéquation avec des valeurs de $\alpha = \frac{9}{2}$ et $\beta = 4$ [137]. Le rayon équivalent R^* permet de généraliser l'interaction pour des contacts entre particules de tailles différentes, comme déjà utilisé pour l'élasticité (Eq. (2.17)) et la plasticité (Eq. (2.24)). Ceci est en bon accord quantitatif avec les simulations numériques effectuées par Pan et al [139].

Le premier terme de l'équation (5.2) représente la réponse visqueuse du contact, tandis que le second terme, toujours en tension, est responsable du retrait durant le frittage. Il est lié à l'énergie de surface du matériau, ce qui traduit que la force motrice pour la densification (sans grossissement de grain) est la diminution de l'énergie d'interface du système.

Le paramètre de diffusion Δ_b est défini par :

$$\Delta_b = \frac{\Omega}{kT} \delta_b D_b \tag{5.3}$$

où Ω est le volume atomique, k est la constante de Boltzmann, T la température, δ_b l'épaisseur du joint de grains, et D_b le coefficient de diffusion, défini comme suit :

$$D_b = D_{0b} \exp\left(-\frac{Q_b}{RT}\right) \tag{5.4}$$

Ici, D_{0b} est le facteur pré-exponentiel, Q_b est l'énergie d'activation, et R est la constante des gaz parfaits.

La taille d'équilibre du contact de frittage, notée a_{eq}, est déterminé à l'aide de l'angle dièdre (figure 5.1), tel que :

$$a_{eq} = R^* \sin\left(\frac{\psi_{eq}}{2}\right) \tag{5.5}$$

Lorsque a_s atteint a_{eq}, le second terme de l'équation (5.2) devient nul et toute augmentation supplémentaire de la taille de contact nécessite une force compressive.

La seconde force considérée par le modèle de Bouvard, la force de cisaillement au contact, notée T_s, s'oppose à la composante tangentielle de la vitesse relative au contact, $\mathrm{d}\delta_t/\mathrm{d}t$:

$$T_s = -\mu \frac{\pi a_s^2 (R^*)^2}{8\Delta_b} \frac{\mathrm{d}\delta_t}{\mathrm{d}t} \tag{5.6}$$

où μ est un paramètre visqueux sans dimension [59].

Ce modèle discret introduit de nombreux paramètres matériau liés au frittage des poudres. Il nécessite, comme pour la compaction en matrice, une discrétisation en temps, et une résolution explicite de la deuxième loi de Newton. Il est donc beaucoup plus lourd en temps CPU.

5.1.3 Densification des agglomérats

Les résultats du chapitre 4 révèlent que la densité relative après éjection $\tilde{\rho}$ est d'environ 0,6 (voir Fig. 4.9). Cette densité tient compte de la densité obtenue via les simulations DEM et de la densité des agglomérats ($\tilde{\rho} = \tilde{\rho}_{DEM} \times \tilde{\rho}_{aggl}$).

Dans le contexte des lois de frittage, c'est la densité géométrique relative $\tilde{\rho}_{DEM}$, obtenue par la DEM, qui est prise en compte (indirectement, par l'intermédiaire de la taille de contact a_s, Eq. (5.2)). Cette dernière est bien supérieure à $\tilde{\rho}$. Pour illustrer ce point, prenons l'exemple de la poudre d'UO_2 : $\tilde{\rho}_{DEM} = 0,57/0,41 = 1,39$. Bien que l'approche consistant à prendre en compte la densité des agglomérats, $\tilde{\rho}_{aggl}$, soit cohérente pour l'étape de compaction (comme discuté dans la section 2.2.3), cette méthode pose un problème pour la densification via les lois de frittage, car le compact obtenu est déjà à haute densité ($\tilde{\rho}_{DEM} > 1$, et $a_s > a_{eq}$, Eq. (5.5)).

Ainsi, la démarche adoptée dans ce chapitre consiste à densifier les agglomérats jusqu'à une densité $\tilde{\rho}_{aggl} = 1$. De ce fait, on a : $\tilde{\rho}_{DEM} = \tilde{\rho} \approx 0,6$ et a_s dans des plages réalistes pour le frittage. Cette approche peut être interprétée comme si le frittage s'opérait en deux phases : premièrement, la densification intrinsèque des agglomérats en diminuant leur taille, et ensuite, via une loi de frittage, la densification inter-agglomérats. Cette stratégie est schématisée dans la figure 5.2. Elle consiste donc à diminuer de manière homothétique la taille de toutes les particules pour obtenir une

pastille de densité $\approx 0,6$.

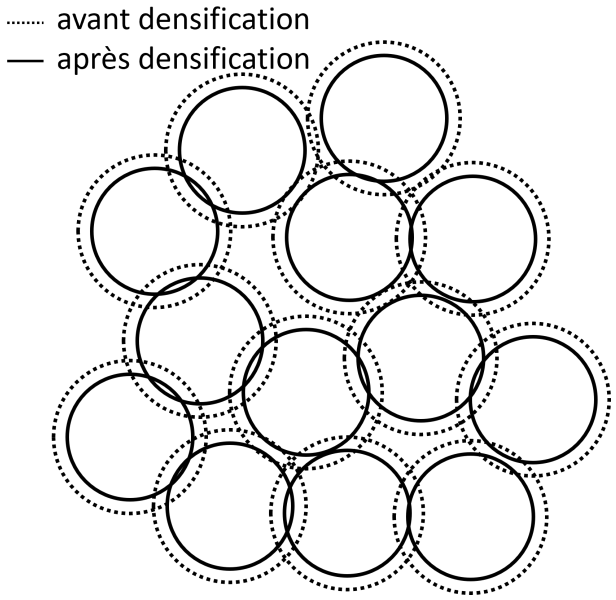

FIGURE 5.2 – Schéma d'une microstructure avant et après la densification des agglomérats.

Après cette étape de densification, le rayon moyen de contact a_s, normalisé par rapport au rayon de la particule, atteint environ 0,64, tandis que le nombre de coordination moyen s'élève à environ 2,9. Cette configuration indique un échantillon présentant un nombre de contacts relativement faible (inférieur à 3), ce qui peut influencer le processus de frittage. De plus, les contacts entre agglomérats dont la normale est proche de la direction axiale présentent des rayons plus grands que ceux dont la normale est proche de la direction radiale. Ceci est lié à l'historique de compaction uni-axiale, qui favorise la déformation suivant l'axe de compaction. Notre échantillon simulé présente donc une forte anisotropie à la sortie de la phase de compaction. Cette caractéristique se traduira par une densification plus grande dans la direction radiale que dans la direction axiale lors du frittage. Cette anisotropie est sans doute réaliste à l'échelle des agglomérats, mais le frittage entre deux cristallites, à une échelle beaucoup plus petite, devrait être quasi-isotrope.

5.1.4 Paramètres matériau

Pour le modèle discret, il est nécessaire de spécifier plusieurs paramètres matériau dans le code dp3D afin de simuler le frittage. Cette étape est moins critique dans notre contexte : étant donné que le frittage est modélisé à l'échelle des agglomérats, beaucoup plus grands que les grains réels de cristallites, une représentation exacte de la cinétique de frittage ne peut être atteinte.

Il est cependant important de préciser que, bien que la cinétique de frittage ne soit pas la bonne, en raison de la modélisation à l'échelle des agglomérats, la cinétique de densification est correctement représentée. Ainsi, les régions de grande densité relative frittent plus lentement que les régions de faible densité relative, assurant une représentation correcte de la géométrie finale du compact fritté.

Pour le frittage du composite MOX, nous faisons l'hypothèse simplificatrice que le comportement pendant le frittage des deux types d'agglomérats (UO_2 et MP) est identique. Cette supposition n'est pas irréaliste car si les agglomérats de UO_2 et de MP sont distribués de manière homogène dans le compact, la différence de retrait pendant le frittage entre les deux ne devrait pas affecter significativement le retrait global de la pastille, à condition que la densité finale cible soit la même. Bien que cette différence de retrait puisse modifier la cinématique du frittage et donc le temps nécessaire pour atteindre cette densité finale, elle ne devrait pas impacter significativement la cinématique de densification.

De même, nous négligeons l'effet du PuO_2 sur le processus de frittage. Des observations expérimentales ont révélé que le PuO_2 accélère la densification au début du frittage [140], mais qu'il peut également réduire la densité finale de la pastille après le traitement thermique [141].

Nous utiliserons les données de la poudre de $UO_{2.00}$ ('2.00' indique la stœchiométrie exacte) pour modéliser à la fois le frittage des agglomérats d'UO_2 et de MP. Les paramètres utilisés sont résumés dans le tableau 5.1 :

γ_s (J.m^{-2})	$\delta_b D_{0b}$ (m^3.s^{-1})	Q_b (kJ.mol^{-1})	μ	ψ_{eq} (°)	Ω (m^3)
0,61 [142]	2×10^{-15} [143]	293 [143]	0,01	155 [142]	$4,09\times10^{-29}$ [144]

TABLE 5.1 – Valeurs des paramètres matériau pour le frittage.

La valeur de μ pour la composante tangentielle de la force de contact a été prise identique à celle qui a été utilisée pour le frittage de l'alumine ($\mu = 0,01$) [81].

5.2 Simulation du Frittage de la Pastille TUCHAM0

Parmi les poudres étudiées, seule la poudre TUCHAM0 a été frittée après le pastillage. L'objectif de cette section est de simuler numériquement le frittage de la pastille TUCHAM0, dont les résultats de compactage ont été présentés au chapitre 4, et de comparer les résultats numériques aux données expérimentales.

Les conditions de pressage ainsi que les dimensions après éjection ont été précédemment détaillées respectivement dans les tableaux 4.2 et 4.3 du chapitre antérieur. Ces données sont synthétisées ci-dessous, complétées par les mesures de la pastille après frittage :

Conditions de pressage	
P_{max}(MPa)	4,83×
P_{acc}(MPa)	55y
$h_{chambre}$(mm)	42,2
$D_{matrice}$(mm)	9,83

Table 5.2 – Conditions de pressage de la poudre TUCHAM0.

	Avant frittage	Après frittage
Diamètre bas(mm)	9,93±0,01	8,27±0,02
Diamètre milieu(mm)	9,93±0,01	8,24±0,02
Diamètre haut(mm)	9,92±0,01	8,26±0,01
Hauteur(mm)	13,27±0,06	11,23±0,14
$\tilde{\rho}$	0,57±0,01	0,97±0,15

Table 5.3 – Densité relative $\tilde{\rho}$ et géométries avant et après frittage de la TUCHAM0. Mesures expérimentales.

En l'absence de la matrice et des poinçons, une sphère de référence est utilisée pour estimer la densité globale de l'échantillon (Fig. 5.3). Le volume de cette sphère étant connu, ainsi que celui des agglomérats qu'elle contient, il est possible de calculer la

densité relative pour cette sphère. Cette sphère de référence est aussi utilisée pour calculer la contrainte macroscopique pendant le frittage via l'équation de Love (équation Eq. (2.7)) avec, comme volume V, celui de la sphère de référence.

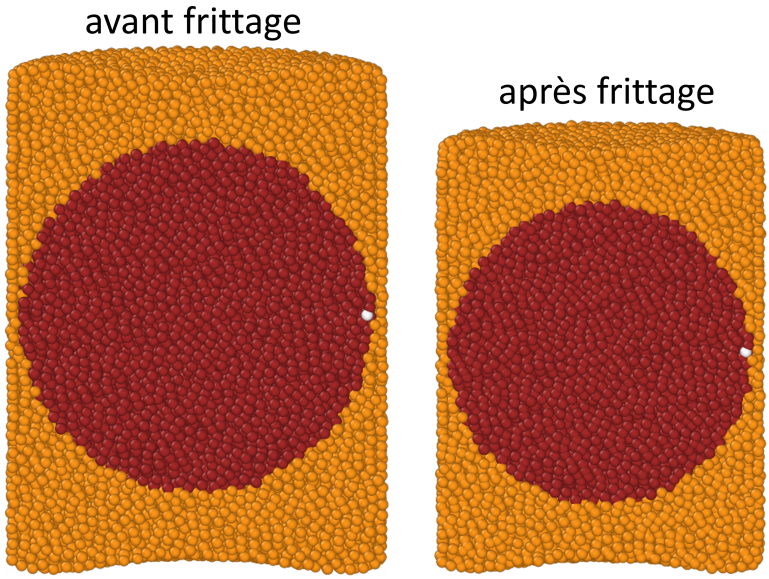

FIGURE 5.3 – Illustration de la sphère de référence (en marron) à l'intérieur de l'échantillon avant et après frittage affine. Le rayon de la sphère de référence est défini par la distance entre la particule en blanc et le centre de la sphère de référence. La sphère de référence contient environ 16 000 particules.

La simulation numérique de l'échantillon TUCHAM0 a été réalisée en appliquant les deux modèles de frittage décrits précédemment.

5.2.1 Simulation du frittage de la pastille TUCHAM0 par le modèle discret

Dans cette simulation, l'objectif n'étant pas de reproduire la cinétique de frittage exacte, la rampe de montée en température n'a pas été modélisée. Le processus de frittage numérique s'est donc déroulé à une température constante de 1700°C, et la simulation s'est poursuivie jusqu'à atteindre une densité finale de 0,97 pour le compact.

La figure 5.4 présente la géométrie en deux dimensions [1] de la pastille après frit-

1. L'outil utilisé pour déterminer la géométrie des pastilles après frittage est simplifié par rapport à celui utilisé pour l'éjection, en raison de la densification des agglomérats. L'historique de contact n'est donc plus nécessaire, et seul le rayon des particules en surface est pris en compte pour définir la géométrie de la pastille.

tage obtenue en utilisant le modèle discret. La simulation a généré également un temps physique. Bien que l'objectif ne soit pas de reproduire la même cinématique de frittage, ce temps peut être normalisé pour correspondre à la taille réelle des particules. Cette normalisation nous donne un temps physique d'environ 3 heures, ce qui est de même ordre de grandeur que le palier à 1700°C en expérimental, qui dure environ 4 heures.

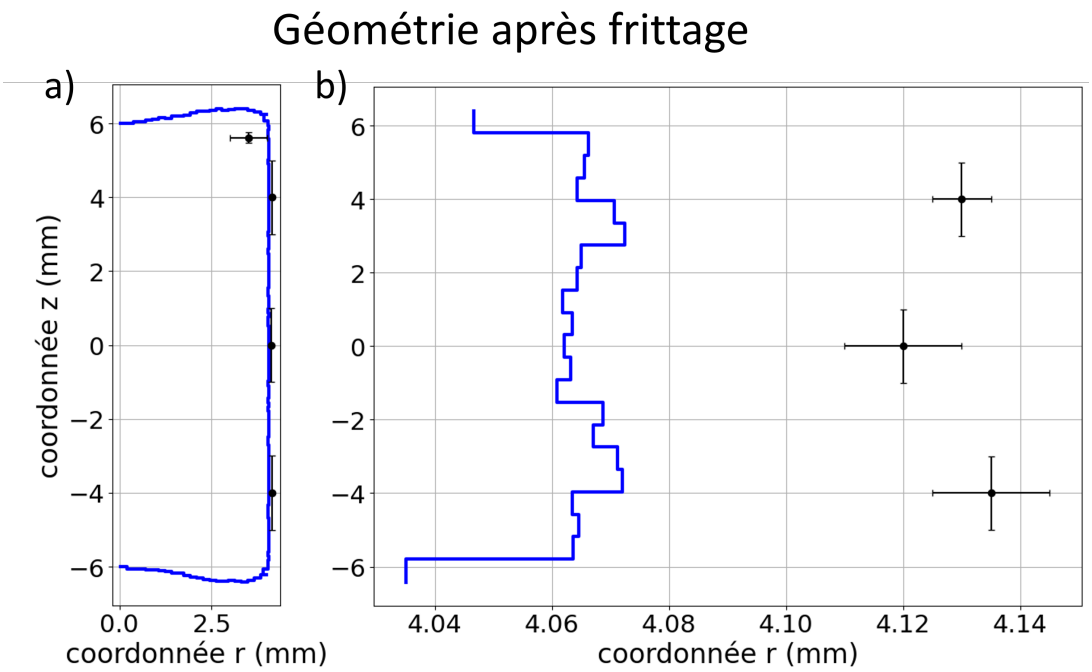

FIGURE 5.4 – Géométrie de la pastille après frittage selon le modèle discret. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales à trois hauteurs différentes : en haut, au milieu et en bas.

La géométrie résultante de la simulation révèle une forme irrégulière de la pastille. Cette irrégularité est attribuée au nombre de contacts entre les agglomérats en surface. Les agglomérats en surface, ayant moins de contacts, ne frittent pas de manière optimale, tandis que ceux en surface mais légèrement plus enfoncés dans le compact frittent mieux, même si leur densité locale est plus élevée. En d'autres termes, un contact unique dans une région peu dense frittera moins qu'une région dense avec plusieurs contacts, en raison de la somme cumulée des forces de frittage.

Une approche possible pour pallier ce problème consisterait à moduler la densité des agglomérats durant l'étape de densification (section 5.1.3), en les densifiant par-

tiellement, par exemple à $\tilde{\rho}_{aggl} = 0,9$, plutôt qu'à l'unité. Cela garantirait un nombre de contacts suffisant pour le frittage ultérieur. Cependant une porosité résiduelle serait préservée au sein des agglomérats, qui ne changerait pas lors de la simulation du frittage en raison de la constance de la taille des agglomérats.

Une autre stratégie consiste à éliminer, durant le post-traitement, les particules ayant le moins de contacts en surface. Ces particules, se densifiant moins en raison de leur nombre réduit de contacts, ont tendance à moins se déplacer que les autres particules. Par conséquent, le diamètre de la pastille est plus large au niveau de ces particules, ce qui pourrait contribuer à la forme irrégulière observée dans les pastilles après le frittage (cf. figure C.1, présentée en annexe C, qui illustre la mise en œuvre de cette stratégie).

La figure 5.4 montre que la géométrie simulée, tant en axe radial qu'axial, ne correspond pas à l'expérimental. Notamment, le modèle discret induit une densification plus prononcée en radial qu'en axial. Des simulations complémentaires ont mis en évidence que cette anisotropie de frittage est due à l'anisotropie de la compaction.

Le tableau 5.4 ci-dessous synthétise les dimensions expérimentales et simulées pour la figure 5.4. Les diamètres ont été mesurés en repérant les dimensions maximales dans les zones respectives.

	Simulation	Expérimental
Diamètre bas(mm)	8,22	8,27±0,02
Diamètre milieu(mm)	8,19	8,24±0,02
Diamètre haut(mm)	8,22	8,26±0,01
Hauteur(mm)	12,81	11,23±0,14

Table 5.4 – Comparaison des dimensions de la pastille TUCHAM0 après frittage obtenues expérimentalement et numériquement.

Bien que l'amplitude de l'effet diabolo observée en haut et en bas de la pastille correspond aux mesures expérimentales, les dimensions globales de la pastille obtenues par le modèle discret ne coïncident pas avec les données expérimentales. Cette divergence est particulièrement notable concernant la hauteur de la pastille, où l'écart

atteint plus de 1,5 mm.

5.2.2 Simulation du frittage de la pastille TUCHAM0 par le modèle affine

Afin d'évaluer l'influence du paramètre α sur la géométrie finale de la pastille frittée, deux simulations avec des valeurs de α égales à 0,1 et 0,2 ont été menées. Dans l'équation (5.1), $\tilde{\rho}_{finale}$ est fixé à 0,97, comme indiqué dans le tableau 5.3, et $\tilde{\rho}_{init,i}$ est calculé à l'aide du package Voro++ [94] pour chaque particule i.

La figure 5.5 présente la géométrie de la pastille après frittage pour ces deux valeurs de α.

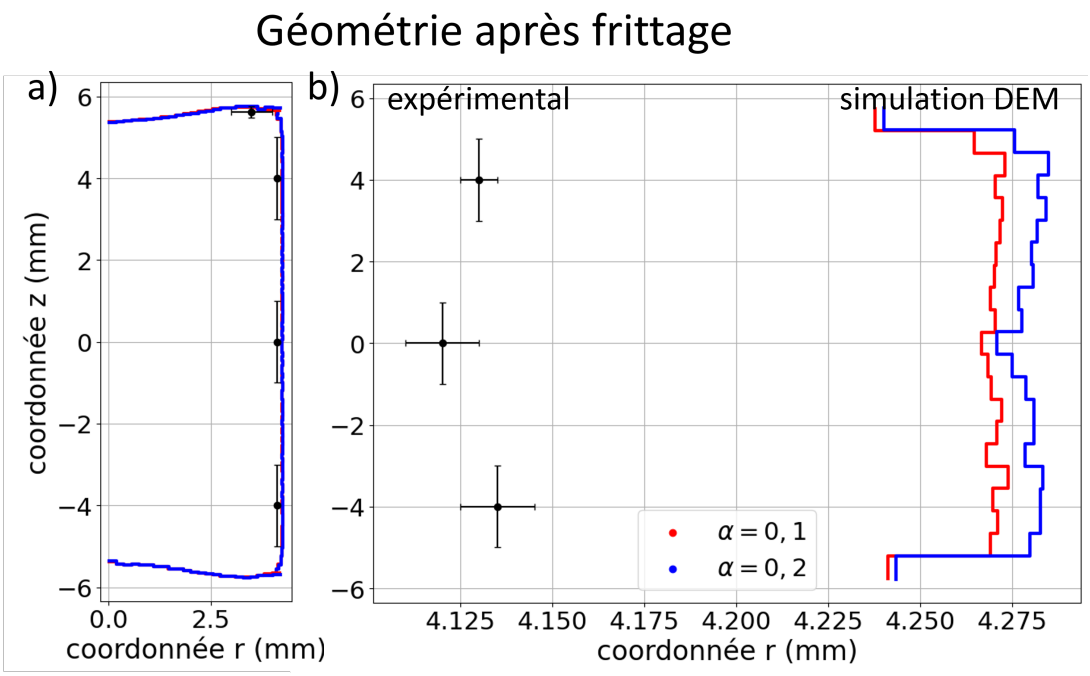

FIGURE 5.5 – Géométrie de la pastille après frittage affine pour $\alpha = 0,1$ et $\alpha = 0,2$. Deux vues sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b). Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales à trois hauteurs différentes : en haut, au milieu et en bas.

Les simulations montrent un effet diabolo, caractérisé par un diamètre de la pastille plus grand en haut et en bas par rapport au milieu. L'augmentation du paramètre α entraîne une amplification de cet effet diabolo, ce qui est cohérent avec l'équation (5.1) indiquant que la déformation augmente dans les zones de moindre densité

avec une valeur de α plus élevée.

Il est également constaté que les dimensions simulées surestiment celles observées expérimentalement, tant pour les diamètres que pour la hauteur. Théoriquement, le volume devrait rester constant entre les simulations et l'expérimental, puisque la densité finale du frittage est identique.

Cette divergence pourrait résulter de la méthode utilisée pour mesurer la densité dans les simulations (Fig. 5.3). Cette méthode de calcul de la densité relative ne tient pas compte des agglomérats situés en dehors de la sphère de référence (les particules colorées en orange sur la Fig. 5.3), en particulier ceux situés dans les coins et à la surface, dont les densités relatives varient le plus. Cela peut induire des inexactitudes dans le calcul de la densité globale. Pour pallier cette limitation, la valeur de $\tilde{\rho}_{finale}$ peut être ajustée de manière artificielle afin que les dimensions des pastilles simulées concordent avec les mesures expérimentales.

La figure 5.6 montre la géométrie en 2D de la pastille après frittage pour une valeur ajustée de $\tilde{\rho}_{finale} = 1,08$ avec $\alpha = 0,2$. Cette valeur de $\tilde{\rho}_{finale}$ correspond à la densité que la sphère de référence (cf. sphère en marron sur la Fig. 5.3) doit atteindre pour que la densité totale de la pastille soit égale à la valeur de 0,97.

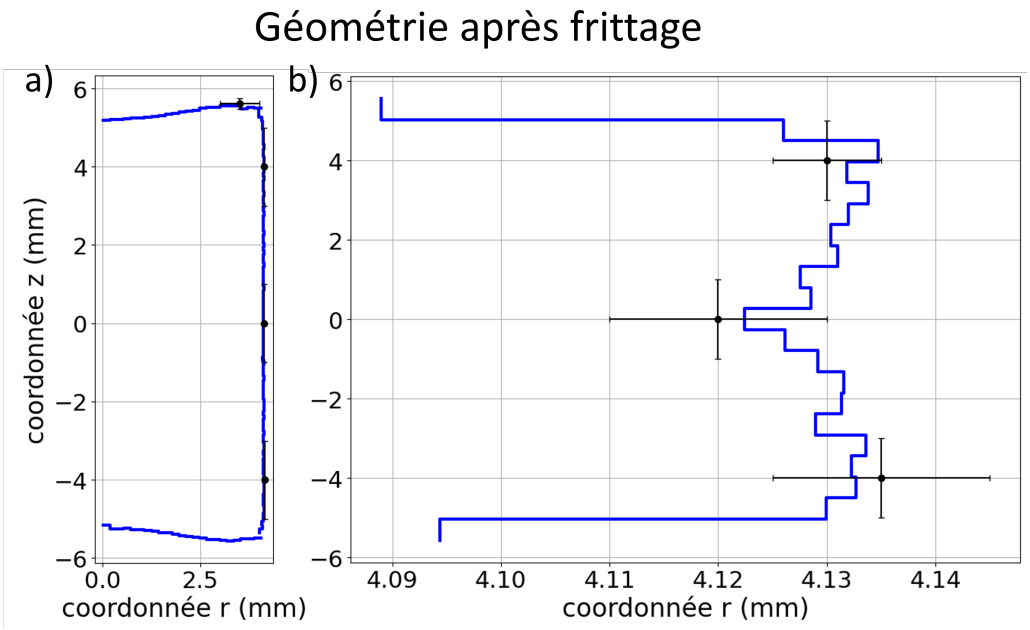

FIGURE 5.6 – Géométrie de la pastille après frittage affine pour $\alpha = 0,2$ et $\tilde{\rho}_{finale} = 1,08$. Deux vues sont représentées : une vue globale (a) et un zoom sur la partie radiale (b).

Il apparaît qu'en ajustant artificiellement la densité finale de frittage, les dimensions de la pastille obtenues par le frittage affine sont en adéquation correcte avec celles mesurées expérimentalement. Le tableau 5.5 synthétise les mesures expérimentales et les résultats de simulation.

	Simulation	Expérimental
Diamètre bas(mm)	8,27	8,27±0,02
Diamètre milieu(mm)	8,24	8,24±0,02
Diamètre haut(mm)	8,27	8,26±0,01
Hauteur(mm)	11,11	11,23±0,14

TABLE 5.5 – Dimensions de la pastille TUCHAM0 après frittage pour les cas expérimental et simulé.

Le tableau 5.5 montre que les dimensions après frittage sont en bon accord entre la simulation et l'expérimentation.

La visualisation tridimensionnelle de la pastille TUCHAM0 simulée est représentée sur la figure 5.7 avant et après le processus de frittage affine.

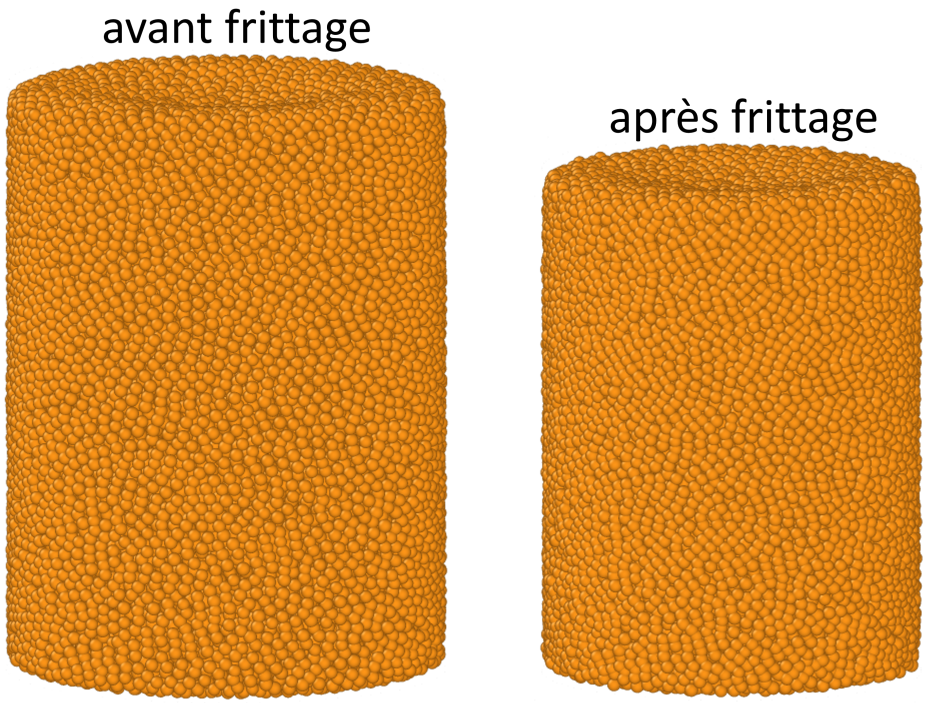

FIGURE 5.7 – Visualisation tridimensionnelle de la pastille TUCHAM0 avant et après le frittage affine. Les sphères orange représentent les agglomérats d'UO_2.

Bien que le modèle affine soit nettement plus simple que le modèle discret, il s'est avéré être plus efficace pour reproduire les dimensions de la pastille après frittage. En particulier, il permet d'obtenir correctement l'effet diabolo. L'efficacité du modèle affine est liée au fait que le seul ingrédient du modèle pour générer une déformation hétérogène de la pastille (l'effet diabolo) est le champ de densité. Cependant, en raison de son caractère empirique, il offre peu d'informations sur le rôle de la carte de densité dans l'apparition de l'effet diabolo.

5.3 Simulation du Frittage de la Pastille MOX

Les pastilles de UO_2, MOX et TUCHAM50, préalablement éjectées, ont ensuite été frittées numériquement. Comme il a été stipulé en début de ce chapitre, le comportement pendant le frittage est considéré identique pour les deux types d'agglomérats, à savoir UO_2 et MP. Ainsi, les variations observées dans les résultats de frittage sont attribuables exclusivement aux cartes de densité obtenues lors du pastillage.

Les paramètres de pastillages des trois types de pastilles sont identiques à ceux employés pour la TUCHAM50, et sont détaillés dans le tableau 4.2. La figure 5.8 illustre la géométrie en 2D des pastilles après frittage en utilisant le modèle discret.

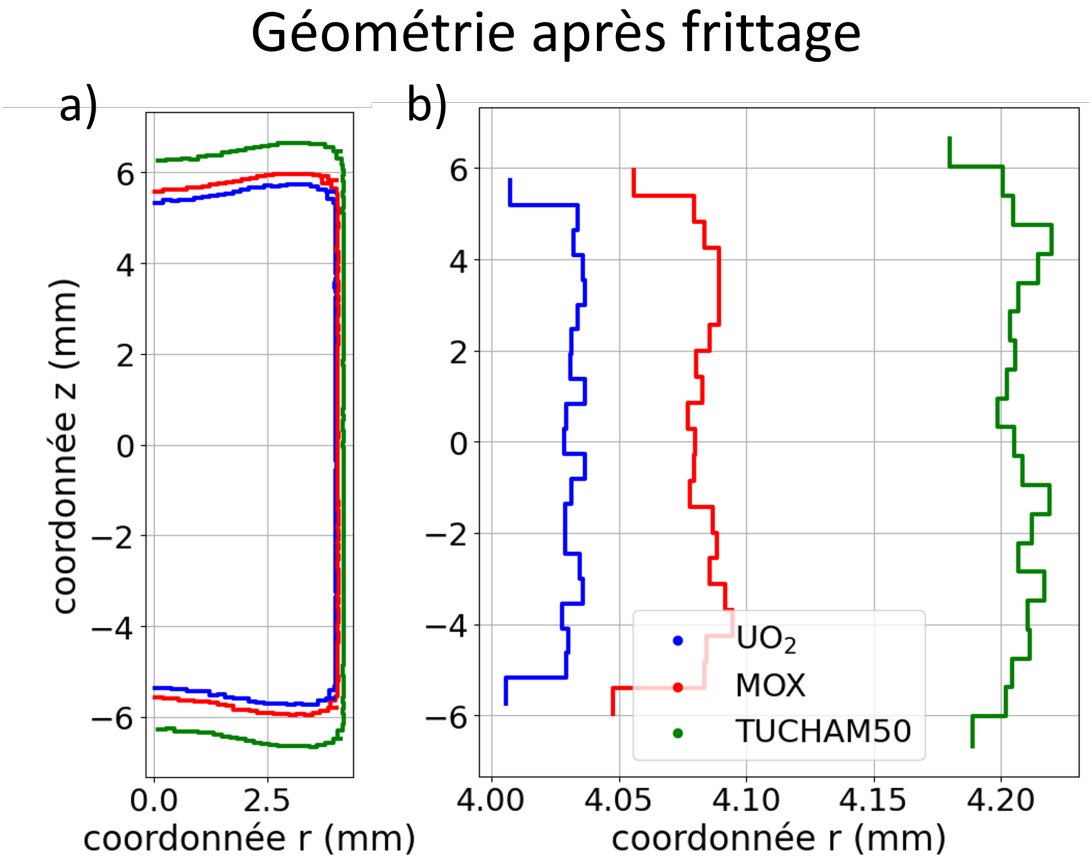

FIGURE 5.8 – Géométrie des pastilles de UO_2 VH1, MOX et TUCHAM50 après frittage selon le modèle discret. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b).

La présence de fluctuations dans les résultats de diamètres rend difficile la caractérisation précise de l'amplitude de l'effet diabolo. Pour la pastille UO_2, cet effet semble

même inexistant.

Cela pourrait être dû à une densification plus marquée des agglomérats (section 5.1.3) par rapport aux deux autres pastilles, car la densité relative des agglomérats $\tilde{\rho}_{aggl}$ pour la poudre UO_2 est la plus faible (voir tableau 4.4), ce qui induit un nombre réduit de contacts entre les agglomérats.

La pastille de UO_2 affiche les dimensions les plus réduites, suivie par celle de MOX et enfin par la TUCHAM50. Cela est cohérent avec les densités relatives observées après le compactage (voir figure 4.16) : la pastille de UO_2 ayant la densité relative la plus faible initialement, elle s'est le plus densifiée au cours du frittage pour atteindre la densité finale visée.

La pastille frittée de UO_2 est typiquement un cas où l'application de la stratégie de post-traitement (voir l'annexe C), consistant à enlever les particules avec peu de contacts, semble très bénéfique (figure 5.9) :

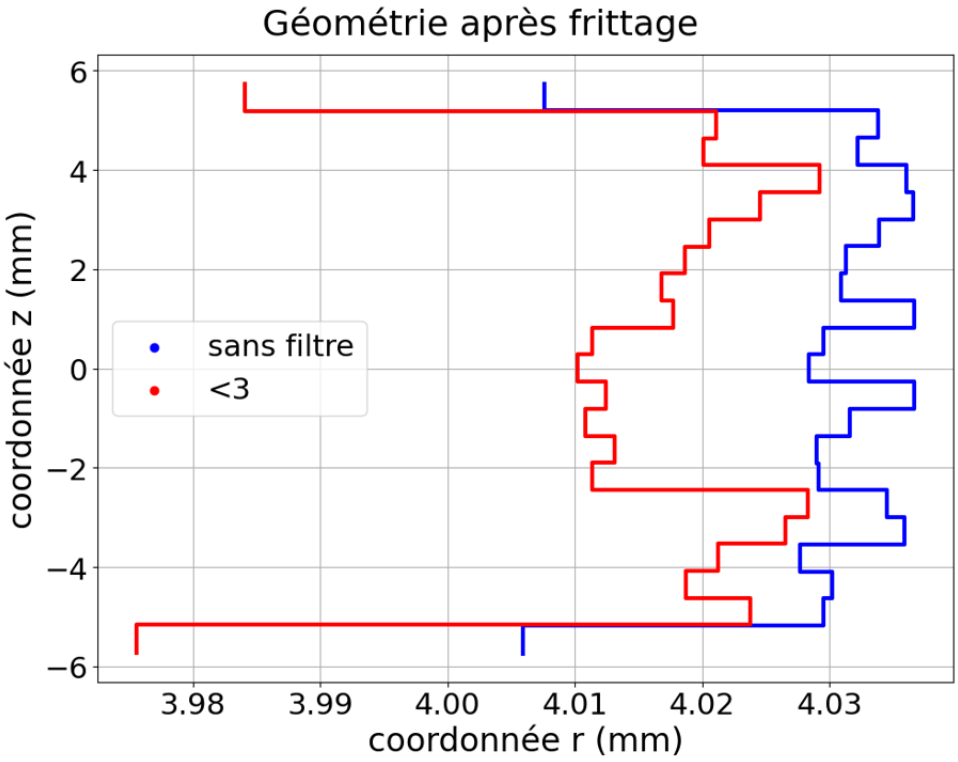

FIGURE 5.9 – Géométrie radiale de la pastille après frittage selon le modèle discret. Deux configurations sont comparées : la pastille sans suppression de particules, et la pastille avec suppression des particules ayant moins de 3 contacts.

Les trois pastilles ont également été frittées en utilisant le modèle affine, qui s'avère

être plus précis concernant la prédiction de la géométrie finale des pastilles frittées.

La figure 5.10 présente la géométrie en 2D des pastilles après frittage pour une valeur de $\tilde{\rho}_{finale} = 1,08$ avec $\alpha = 0,2$. Ces valeurs n'ont pas été ajustées spécifiquement pour ces trois pastilles, en raison du manque de données expérimentales, et sont issues de l'ajustement réalisé pour la TUCHAM0.

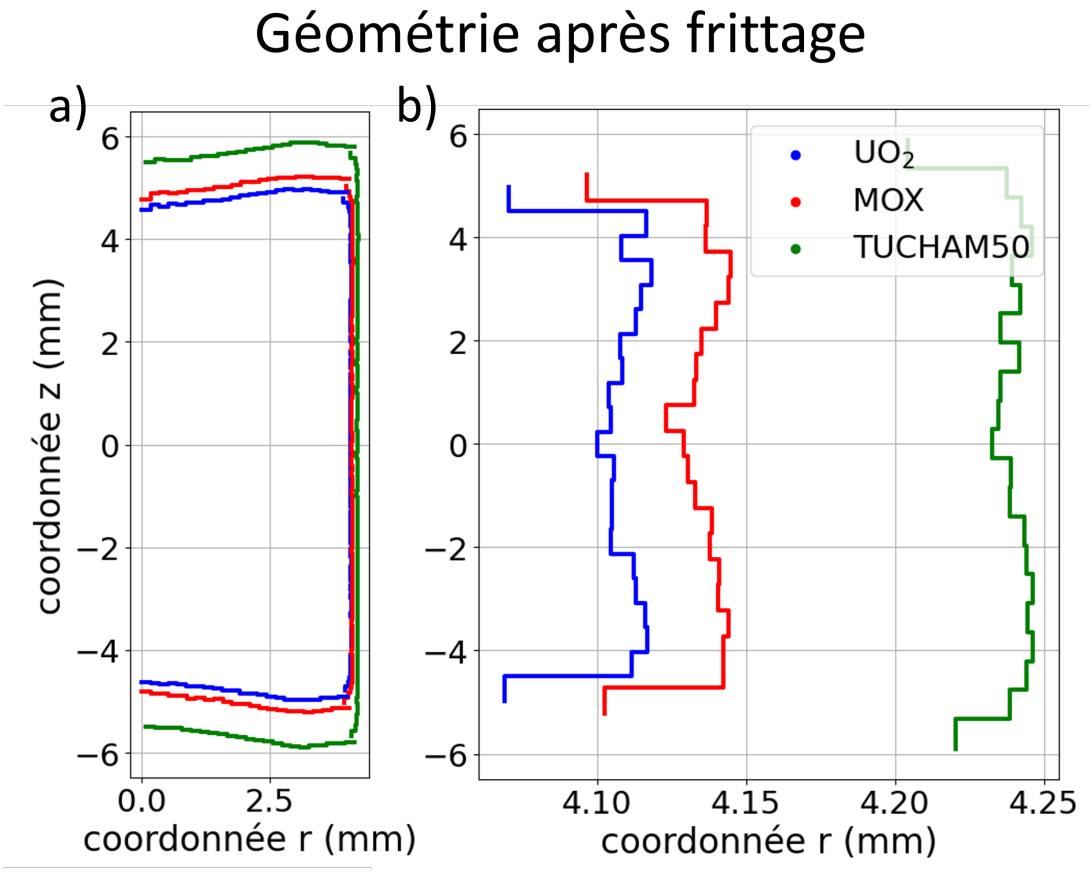

FIGURE 5.10 – Géométrie des pastilles de UO_2, MOX et TUCHAM50 après frittage selon le modèle affine. Deux perspectives sont présentées : une vue globale (a) et un zoom sur la section radiale (b).

On observe les mêmes tendances qu'avec le modèle discret : la pastille de UO_2 présente les dimensions les plus réduites, suivie par celle de MOX, puis la TUCHAM50. Cependant, on note la présence d'un effet diabolo plus marqué, avec une tendance bien définie par rapport au modèle discret.

5.4 Conclusion

Le travail présenté dans ce chapitre a permis de comparer deux approches différentes pour simuler le frittage des pastilles : un modèle empirique basé sur la solution affine et un modèle discret plus élaboré. Le modèle empirique, bien que rapide (requérant seulement quelques minutes de temps de calcul) et précis pour prédire la géométrie finale des pastilles, requiert des ajustements de paramètres qui peuvent ne pas capturer toutes les subtilités du processus de frittage.

En revanche, le modèle discret, bien que plus exigeant en termes de temps de calcul (environ 6 heures), offre une représentation plus fidèle de la dynamique du frittage, sans nécessiter d'ajustement des paramètres. Cependant, il s'avère moins précis dans la prédiction des dimensions finales des pastilles. Ceci est essentiellement lié à l'anisotropie générée par l'étape de compaction qui entraîne une anisotropie de frittage surévaluée.

Le modèle affine, malgré sa simplicité, s'avère être relativement efficace. Il repose sur l'hypothèse que seule l'hétérogénéité de densité dans la pastille compactée est responsable de l'effet diabolo.

En partant de la géométrie de la pastille après éjection (qui elle-même n'est pas homothétique de la géométrie de la matrice), nous pouvons, via l'ajustement du paramètre α, obtenir un diabolo sur les pastilles d'UO_2 en accord raisonnable avec les données expérimentales. Ceci conforte l'hypothèse de l'impact majeur du champ de densité pour prédire l'effet diabolo.

Parmi les perspectives d'avenir, plusieurs axes de recherche peuvent être envisagés pour affiner la compréhension et la prédiction du frittage des pastilles nucléaires :

— Étudier l'influence de la géométrie des poinçons lors de l'étape de pastillage sur la géométrie finale après frittage. Cette étude pourrait mener à optimiser les formes des poinçons pour contrôler l'effet diabolo et améliorer la qualité des pastilles.

— Intégrer l'effet de l'oxyde de plutonium sur le frittage, ce qui est important pour

la simulation de pastilles MOX, où le PuO_2 joue un rôle dans les propriétés de frittage.

— Reproduire la cinématique de frittage en modélisant la montée en température, les paliers de température et le temps total de frittage.

— Dans le cadre du modèle discret, ajuster la procédure de densification des agglomérats pour assurer un compact avec un nombre de contacts suffisamment élevé et une isotropie plus réaliste.

En ce qui concerne le frittage des pastilles MOX, on a supposé que seule la carte de densité avant le frittage influence la géométrie finale de la pastille frittée. Cela souligne l'importance de l'étape de compaction et la nécessité d'une répartition homogène de la densité pour obtenir une pastille de qualité après frittage.

En somme, ce chapitre met en évidence le potentiel et les limites des modèles actuels, tout en ouvrant la voie à de futurs travaux qui pourraient considérablement améliorer la prédiction et le contrôle du frittage des pastilles nucléaires.

Conclusion générale

Cette thèse avait pour but de développer un outil numérique capable de simuler les processus de compaction et de frittage des poudres nucléaires, notamment UOX et MOX, à l'échelle d'un comprimé entier.

Dans le chapitre 1, une étude bibliographique a été menée pour explorer les modèles empiriques, semi-empiriques et continus existants dans la littérature. Cette étude a montré qu'il y avait intérêt à incorporer de manière explicite la nature granulaire des poudres et les divers composants du mélange. La méthode des éléments discrets (DEM) a été privilégiée parce que son formalisme est très bien adapté à cette tâche. Cette approche se distingue des modèles continus parce qu'elle permet de représenter chaque particule de manière individuelle, ce qui permet une modélisation plus fine au niveau de la microstructure. Par ailleurs, dans le cadre d'une application industrielle avec des poudres complexes (mélanges avec des compositions variables), elle permet de représenter simplement l'interaction entre des particules de propriétés différentes.

Le chapitre 2 se concentre sur l'application de la DEM à notre problématique. Ce chapitre présente un aperçu général de la DEM et explore en détail les lois constitutives adaptées à la compaction. Pour notre application spécifique, le modèle de B. Harthong [79] a été choisi car il n'est pas limité en densité relative, contrairement à d'autres modèles. Ce modèle se distingue par sa prise en compte de l'effet de la densité locale sur l'écrouissage de la poudre, permettant ainsi de modéliser efficacement la densification à haute densité. Cependant, ce modèle dans sa forme actuelle présente une limitation : il dépend de la présence de la matrice et des poinçons, sans lesquels le

calcul de la densité des particules en surface devient inexact. L'utilisation de cellules de Voronoi pour calculer les densités locales, nécessaires au modèle de B. Harthong, a donc été limitée aux phases de compaction et d'éjection. Cependant, la question du calcul d'une densité locale pour une géométrie quelconque reste ouverte.

La DEM est une méthode exigeante en termes de temps de calcul, rendant difficile la simulation d'un comprimé entier à l'échelle des cristallites. Pour surmonter cette contrainte, nous avons choisi de modéliser la poudre à l'échelle des agglomérats. La poudre MOX est donc représentée par deux types d'agglomérats poreux : les agglomérats d'UO_2 et les agglomérats de mélange primaire (MP). Cette approche représente correctement la déformation et le réarrangement des agglomérats, mais ne peut pas modéliser explicitement leur rupture. Bien que cette méthode soit nécessaire pour simuler un comprimé entier, elle impose des limitations lors du frittage de la poudre compactée, car elle ne permet pas de représenter avec précision la cinématique du frittage (cf. section 5.1.4). Cette méthode impose également une limitation au niveau de la finesse des grains dans la pastille (voir la figure 4.15 par exemple). Pour les cartes de densité, cette approche peut entraîner l'apparition d'artefacts dus aux variations abruptes de la densité locale, comme illustré par la TUCHAM50 dans la figure 4.17.

Le chapitre 3 est consacré à la modélisation numérique de la compaction en matrice (à simple-effet) des agglomérats d'UO_2. Ce chapitre, qui constitue le cœur des résultats de cette thèse, examine en détail les données expérimentales de la poudre d'UO_2, décrit la création d'un modèle numérique des agglomérats d'UO_2, et présente les résultats obtenus après ajustement des paramètres matériau par apprentissage machine. L'apprentissage machine s'est révélé être une méthode particulièrement flexible : une fois la base de données établie, il est possible d'ajuster les paramètres matériau pour diverses poudres, telles que UO_2 ou MOX, sans nécessiter de nouvelles simulations coûteuses. Bien que certains ajustements restent nécessaires (cf. section 3.3.4), les résultats obtenus montrent une bonne adéquation entre les simulations DEM et les données expérimentales, validant ainsi la loi constitutive proposée dans le chapitre 2. Cette méthode est puissante car elle permet d'ajuster les paramètres du modèle à par-

tir d'un ensemble hétéroclite de données (expérimentales et simulées) et nécessairement parcellaire. Elle pose cependant le problème de l'interprétation des paramètres matériau du modèle. Dans notre cas, et dans le contexte d'une application industrielle des simulations DEM, nous avons privilégié la meilleure adéquation possible aux courbes expérimentales ou aux cartes de densité obtenues par la FEM. Au final, ce chapitre montre qu'il est possible avec la DEM de simuler les différentes phases de la compaction, en représentant relativement fidèlement les aspects les plus importants : l'effet du frottement de la matrice sur le champ de densité, l'indice de fluidité, et le gonflement élastique du comprimé à l'éjection.

Le chapitre 4 aborde la caractérisation des agglomérats de mélange primaire ainsi que la compaction des poudres UOX et MOX. Il se rapproche encore davantage du processus industriel, en simulant la compaction à double-effet et la géométrie des poinçons, avec le "dishing" et les chanfreins. En raison du manque de données expérimentales sur le MOX, l'ajustement des paramètres matériau a été effectué de manière plus sommaire par rapport au chapitre 3. Cette démarche implique plusieurs hypothèses simplificatrices, telles que la conservation de plusieurs paramètres matériau de la poudre d'UO_2 ou la supposition d'une similitude de comportement entre les poudres de PuO_2 et d'UO_2. Ces hypothèses, bien qu'elles constituent un point faible de l'étude, étaient nécessaires pour permettre la simulation de la compaction de la poudre MOX avec différentes compositions. Elles nous semblent raisonnables pour une première approche de simulation du procédé. Nous avons pu montrer dans ce chapitre que la DEM est bien adaptée pour représenter un mélange de poudres. En particulier, les simulations DEM permettent d'étudier l'effet du taux de chamotte sur la géométrie de la pastille après éjection. Il reste bien sûr à améliorer l'adéquation entre les données expérimentales et les résultats de simulation, en particulier en ce qui concerne la forme de la pastille après éjection.

Enfin, le chapitre 5 propose d'ajouter, en partant des simulations de compactage issues du chapitre 4, l'étape de frittage des pastilles. Ce chapitre peut être vu comme étant une preuve de concept permettant la simulation de l'ensemble du processus de

fabrication des pastilles nucléaires, depuis la compaction de la poudre (hors remplissage des matrices) jusqu'au frittage de la pastille crue, pour laquelle la géométrie finale de la pastille est simulée. L'objectif était d'examiner, en particulier, comment la carte de densité, issue de la compaction, affecte la géométrie finale des pastilles frittées. Deux approches ont été explorées : une simulation du frittage basée sur une loi constitutive DEM, et une autre méthode, empirique, se concentrant uniquement sur la carte de densité dans la pastille compactée. L'approche empirique, malgré sa simplicité, s'est avérée très efficace, comme le montrent les résultats comparés aux données expérimentales. Le principal problème rencontré avec l'approche discrète est que l'anisotropie observée lors de la compaction entraîne également une anisotropie artificielle pendant le frittage. Cette anisotropie au frittage ne permet pas de reproduire fidèlement les dimensions de la pastille mesurées expérimentalement. Malgré cela, ce modèle réussit à reproduire l'effet diabolo caractéristique du frittage d'une pastille dont les extrémités basses et hautes sont plus denses qu'à mi-hauteur. Même si pour le moment l'approche discrète n'est pas satisfaisante, elle ouvre la voie à une modélisation plus proche de la physique du frittage en prenant en compte les paramètres matériau du frittage (coefficients de diffusion, énergie de surface, grossissement des grains, ...).

A l'issue de ce chapitre, une interface graphique a été développée, intégrant les avancées réalisées tout au long de cette thèse, pour tendre vers l'objectif initial énoncé à la fin du chapitre 2 : développer un outil numérique dédié au processus industriel de Orano pour simuler les étapes de compaction et de frittage des mélanges de poudres à l'échelle d'un comprimé entier. Le temps typique requis pour simuler ces deux étapes est d'environ une journée.

La figure 6.1 présente la page d'accueil de cet outil. Pour plus de détails sur son fonctionnement, on se reportera à l'annexe D. Il permet globalement à un ingénieur de tester plusieurs configurations, aussi bien pour la composition de la poudre (du mélange primaire et du mélange secondaire), la géométrie des poinçons et le mode de compaction. Bien que nos simulations soient globalement en accord avec les résultats

expérimentaux, il est important de garder à l'esprit que nous cumulons les erreurs et simplifications inhérentes à chaque simulation. En tentant de reproduire un processus industriel complexe, il est essentiel de comprendre et de contextualiser les erreurs associées à chaque étape.

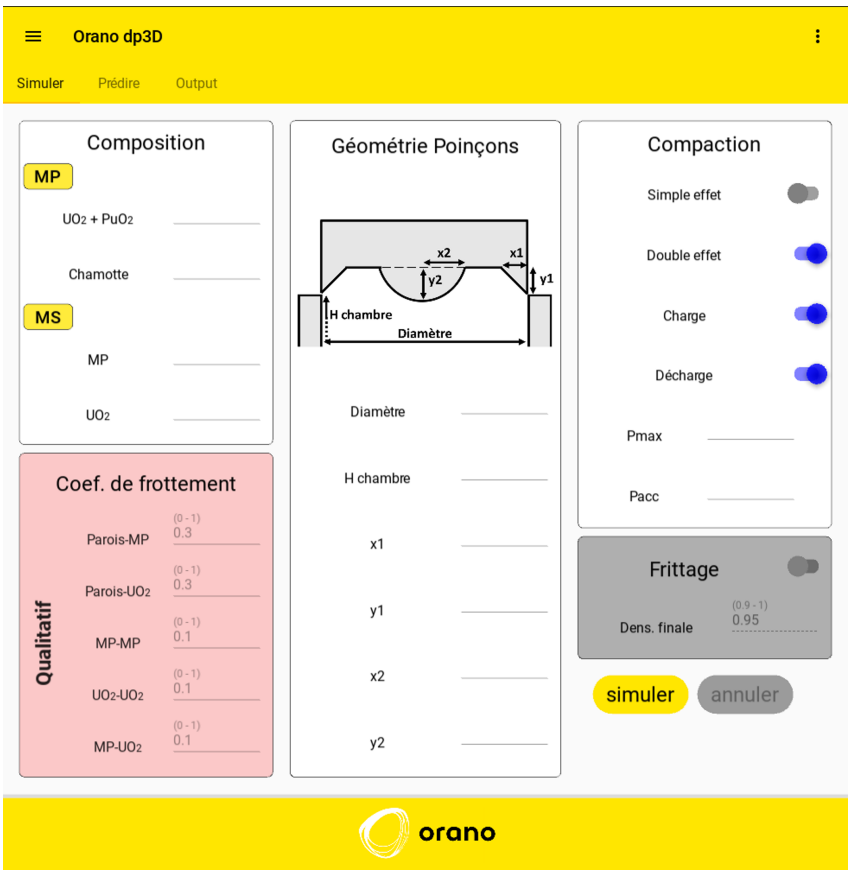

FIGURE 6.1 – Interface graphique de l'outil DEM, intégrant la compaction et le frittage des poudres MOX/UOX.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses et concernent aussi bien l'aspect développement numérique que l'aspect expérimental. Le résultat qui intéresse le plus le partenaire industriel est la géométrie finale de la pastille. Cette géométrie est la conséquence d'un ensemble de processus. La simulation de chacun de ces processus apporte des erreurs qui sont transmises à l'étape suivante. Les travaux futurs devront s'attacher à améliorer chacune de ces étapes de calcul.

En termes de perspectives à court terme (3-6 mois), il serait donc judicieux d'apporter des modifications spécifiques au modèle pour améliorer la fidélité de la géométrie finale des pastilles frittées par rapport aux données expérimentales. Voici quelques

pistes d'amélioration envisageables :

— Améliorer le calcul de la densité locale : la densité locale joue un rôle important dans le calcul du champ de densité, qui à son tour influe fortement sur la géométrie finale. L'objectif est de rendre ce calcul moins dépendant de la présence de la matrice et des poinçons. Bien que Voro++ (le package utilisé pour calculer les cellules de Voronoi) soit déjà implémenté dans le code dp3D, explorer d'autres méthodes pourrait offrir des avantages concernant le calcul de la densité locale.

— Comprendre les facteurs influant sur la forme des pastilles après compaction-éjection : une étude approfondie visant à identifier les facteurs conduisant à l'apparition de formes telles que le diabolo ou le tonneau après compaction serait bénéfique. Cela permettrait non seulement d'améliorer la précision des simulations, mais aussi de mieux comprendre les paramètres critiques du processus industriel qui contrôlent ces écarts de cylindricité.

— Revisiter l'effet du taux de chamotte sur les rebonds axiaux et radiaux : jusqu'à présent, seul le paramètre matériau σ^* a été ajusté pour simuler l'effet de la chamotte. Une révision plus globale, intégrant d'autres paramètres matériau, pourrait conduire à une simulation plus représentative des impacts réels de la chamotte. Cela pourrait contribuer à une meilleure compréhension et prédiction des comportements de compaction et d'éjection.

À moyen terme (6-12 mois), il serait bénéfique de proposer des simulations pour tester la tenue à la rupture des pastilles crues. On peut penser à des essais de compression simple ou à des essais de type compression diamétrale (essai brésilien). Dans tous les cas, il faudra soit revisiter le modèle élasto-plastique utilisé dans ce travail afin de le rendre compatible avec ces essais centrés sur la rupture soit passer à un modèle plus classique de type liens élastiques entre particules (bonds) avec un critère de rupture. Si on opte pour le modèle élasto-plastique cela nécessitera de résoudre le problème du calcul de la densité locale en surface de la pastille en l'absence de la matrice, comme évoqué plus haut. En ce qui concerne le frittage, pour se rapprocher davantage du pro-

cessus physique et obtenir des informations plus détaillées, nous pourrions envisager d'augmenter le nombre de particules simulées ou de manière plus réaliste réaliser la simulation à l'échelle des cristallites avec un volume représentatif dans ce cas beaucoup plus petit. Cela permettrait également d'intégrer l'effet du PuO_2 sur le frittage. Néanmoins, cette approche ne permettrait pas d'obtenir la géométrie finale de la pastille. Elle serait plutôt centrée sur l'évolution microstucturale (évolution des porosités, grossissement des grains, cinétique de frittage).

A moyen terme aussi, l'outil de simulation discrète proposé dans ce travail a clairement une finalité applicative. Deux types de simulation peuvent être imaginés. On peut utiliser ces simulations pour tout d'abord améliorer la compréhension du processus et des mécanismes qui conduisent à la distorsion de la pastille. Ces simulations devraient, de manière plutôt qualitative et pédagogique, proposer un outil pour appréhender visuellement les grandes tendances lors du procédé de compaction-éjection-frittage.

A plus long terme, et une fois que la qualité des simulations sera plus robuste, on peut imaginer utiliser l'outil DEM comme un outil d'optimisation du processus. Quelques propositions envisageables :

— Modifier la géométrie des poinçons pour étudier l'impact du "dishing" et des chanfreins sur la carte de densité et, par conséquent, sur la géométrie finale de la pastille.
— Tester le frottement entre la paroi et la poudre lors de la compaction pour homogénéiser davantage la carte de densité.
— Identifier la pression d'accompagnement qui permet le meilleur contrôle des défauts d'éjection et potentiellement des rebonds.
— Optimiser le processus d'éjection des pastilles, par exemple en utilisant une matrice tricoquille, pour une éjection plus délicate.

Tout au long de cette thèse, nous avons utilisé des hypothèses simplificatrices parce que nous manquions de données expérimentales sur la compaction des poudres. À plus long terme donc, il serait aussi important de constituer une base de données ex-

périmentales pour l'UOX mais surtout sur le MOX. Cela permettrait un ajustement plus précis des paramètres matériau pour les agglomérats d'UO_2 et de MP, conduisant à un outil DEM plus efficace et utile pour les applications industrielles. Cela impliquerait de réaliser la compaction des poudres nucléaires de différentes compositions dans une presse instrumentée, où les contraintes radiales et axiales seraient mesurées tout au long du processus de compaction. Pour affiner davantage les simulations, le gradient de densité des pastilles compactées pourrait être mesuré par nanotomographie ou spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie (EDX), ce qui nous dispenserait de nous appuyer exclusivement sur les résultats des simulations par éléments finis pour ajuster la carte de densité. Enfin, une étude sur les critères d'endommagement des pastilles après compaction et frittage pourrait être envisagée, car bien que peu abordé dans cette thèse, il s'agit d'une étape importante pour le processus industriel.

Annexe - Fonction objectif

La fonction objectif est une métrique essentielle en apprentissage machine et en optimisation. Elle permet d'évaluer la performance d'un modèle ou la qualité d'une solution par rapport à un idéal ou à des données de référence. Dans le contexte de notre étude, la fonction objectif sert à quantifier la proximité entre les résultats simulés et les données expérimentales. Deux des mesures couramment utilisées pour évaluer cette proximité sont le R-carré et le RMSE.

A.1 R-carré

Le coefficient de détermination, plus couramment appelé R-carré, est une mesure statistique utilisée pour évaluer la qualité d'ajustement d'un modèle de régression à des données observées. En d'autres termes, il quantifie la capacité du modèle à expliquer la variation observée dans les données.

La notion de "variance" est centrale pour comprendre le R-carré. La variance mesure à quel point les valeurs d'un ensemble de données diffèrent de la moyenne de cet ensemble. Dans le contexte du R-carré, nous nous intéressons à la proportion de cette variance que notre modèle est capable d'expliquer. Mathématiquement, le R-carré est défini en termes de variance comme :

$$R^2 = 1 - \frac{\text{Variance résiduelle}}{\text{Variance totale}} \tag{A.1}$$

$$\text{Variance résiduelle} = \sum_{i=1}^{n} (y_i - \hat{y}_i)^2 \tag{A.2}$$

$$\text{Variance totale} = \sum_{i=1}^{n} (y_i - \bar{y})^2 \tag{A.3}$$

où y_i est la valeur observée, $\hat{y}_i$ est la valeur prédite et $\bar{y}$ est la moyenne des valeurs observées. Ainsi, en remplaçant dans la formule initiale, nous obtenons :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n} (y_i - \hat{y}_i)^2}{\sum_{i=1}^{n} (y_i - \bar{y})^2} \tag{A.4}$$

Pour mieux comprendre, considérons un ensemble de données et un modèle qui tente de prédire ces données. Si toutes les prédictions du modèle correspondent parfaitement aux données observées, le R-carré serait de 1, indiquant un ajustement parfait. Si le modèle ne fait pas mieux que de simplement prédire la moyenne des données observées, sans tenir compte des autres facteurs, le R-carré serait de 0. le R-carré peut être aussi négatif. Cela signifie que le modèle est tellement inadapté qu'une simple moyenne des données observées serait une meilleure prédiction.

A.2 RMSE (Erreur Quadratique Moyenne)

L'Erreur Quadratique Moyenne (RMSE pour Root Mean Square Error en anglais) est une mesure couramment utilisée pour quantifier l'erreur entre les valeurs prédites et les valeurs observées. Elle donne une idée de la magnitude de l'erreur, mais pas de sa direction. Elle est définie comme la racine carrée de la moyenne des carrés des erreurs :

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} (y_i - \hat{y}_i)^2} \tag{A.5}$$

Contrairement au R-carré, le RMSE n'a pas de valeur maximale et peut varier de 0 à l'infini. Un RMSE de 0 indiquerait des prédictions parfaites.

Bien que le R-carré et le RMSE soient tous deux des mesures de la performance d'un modèle, ils ont des interprétations différentes. Le R-carré donne une idée de la "bonne forme" du modèle, c'est-à-dire à quel point les prédictions du modèle correspondent

aux données réelles en termes de variance. Le RMSE, en revanche, donne une idée de la "taille" de l'erreur, sans se soucier de la direction.

Dans certains contextes, comme lorsque l'on veut comprendre la capacité d'un modèle à capturer la structure sous-jacente des données, le R-carré peut être plus pertinent. Dans d'autres situations, en particulier lorsque la précision des prédictions est primordiale, le RMSE peut être plus approprié car il donne une mesure directe de l'erreur en unités observées.

En général, il est conseillé d'utiliser à la fois le R-carré et le RMSE pour obtenir une vue complète de la performance d'un modèle. Cependant, si l'on devait choisir une seule métrique, le RMSE est souvent privilégié car il fournit une mesure directe et interprétable de l'erreur. De plus, contrairement au R-carré, le RMSE est toujours en unités observées, ce qui peut faciliter son interprétation.

Annexe - Pair plots et Box plots

B.1 Exemple fictif

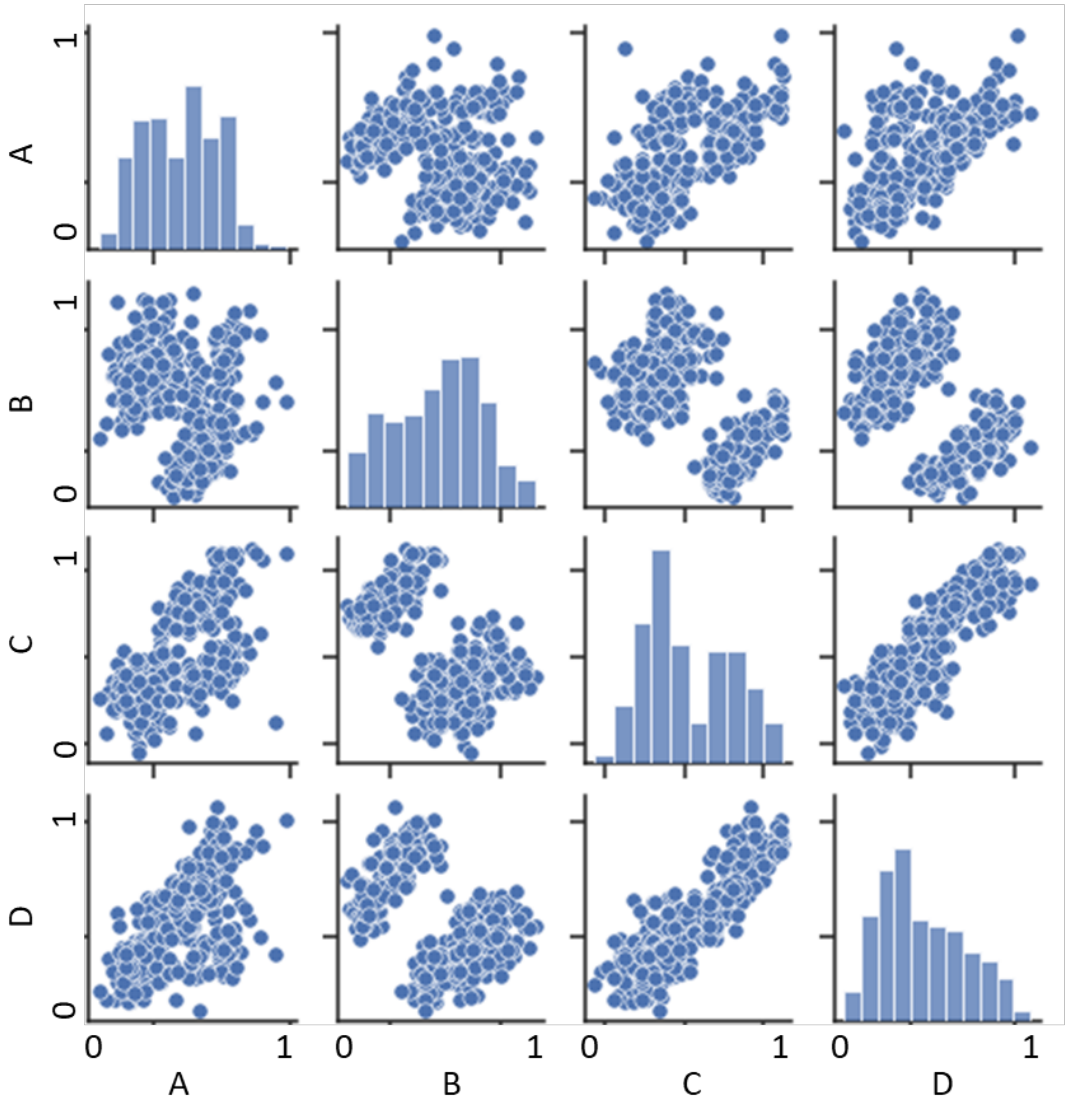

Figure B.1 – Exemple fictif illustrant une corrélation forte entre quatre paramètres A, B, C et D [145].

B.2 Box Plots

Les box plots, également appelés boîtes à moustaches, sont des graphiques qui fournissent une représentation visuelle de la distribution statistique des données. Ils mettent en évidence plusieurs caractéristiques clés de la distribution [146] :

- Médiane : La ligne centrale de la boîte représente la médiane des données, c'est-à-dire la valeur qui sépare la moitié supérieure de la moitié inférieure des données.
- Quartiles : Les bords supérieur et inférieur de la boîte représentent respectivement le troisième (Q3) et le premier quartile (Q1). Le premier quartile est la médiane de la moitié inférieure des données, tandis que le troisième quartile est la médiane de la moitié supérieure des données.
- Intervalle interquartile (IIQ) : C'est la distance entre le premier et le troisième quartile. Il donne une idée de la dispersion des valeurs centrales des données.
- Moustaches : Les lignes qui s'étendent à partir des bords de la boîte représentent la variabilité des données en dehors des quartiles, et peuvent également indiquer la présence d'outliers.
- Outliers : Ce sont des points de données qui tombent en dehors des moustaches. Ils peuvent indiquer des valeurs anormales ou des erreurs dans les données.

Dans notre contexte, les box plots permettent aussi de visualiser les plages de chaque paramètre matériau.

La figure B.2 montre que les données pour chaque paramètre sont bien distribuées, comme en témoignent les médianes centrées et les boîtes symétriques.

Cette symétrie indique une distribution homogène des données sans biais apparent. De plus, l'absence de points en dehors des moustaches suggère qu'il n'y a pas d'outliers, ce qui est cohérent avec notre méthode de génération de données. Ces observations confirment la qualité de notre ensemble de données.

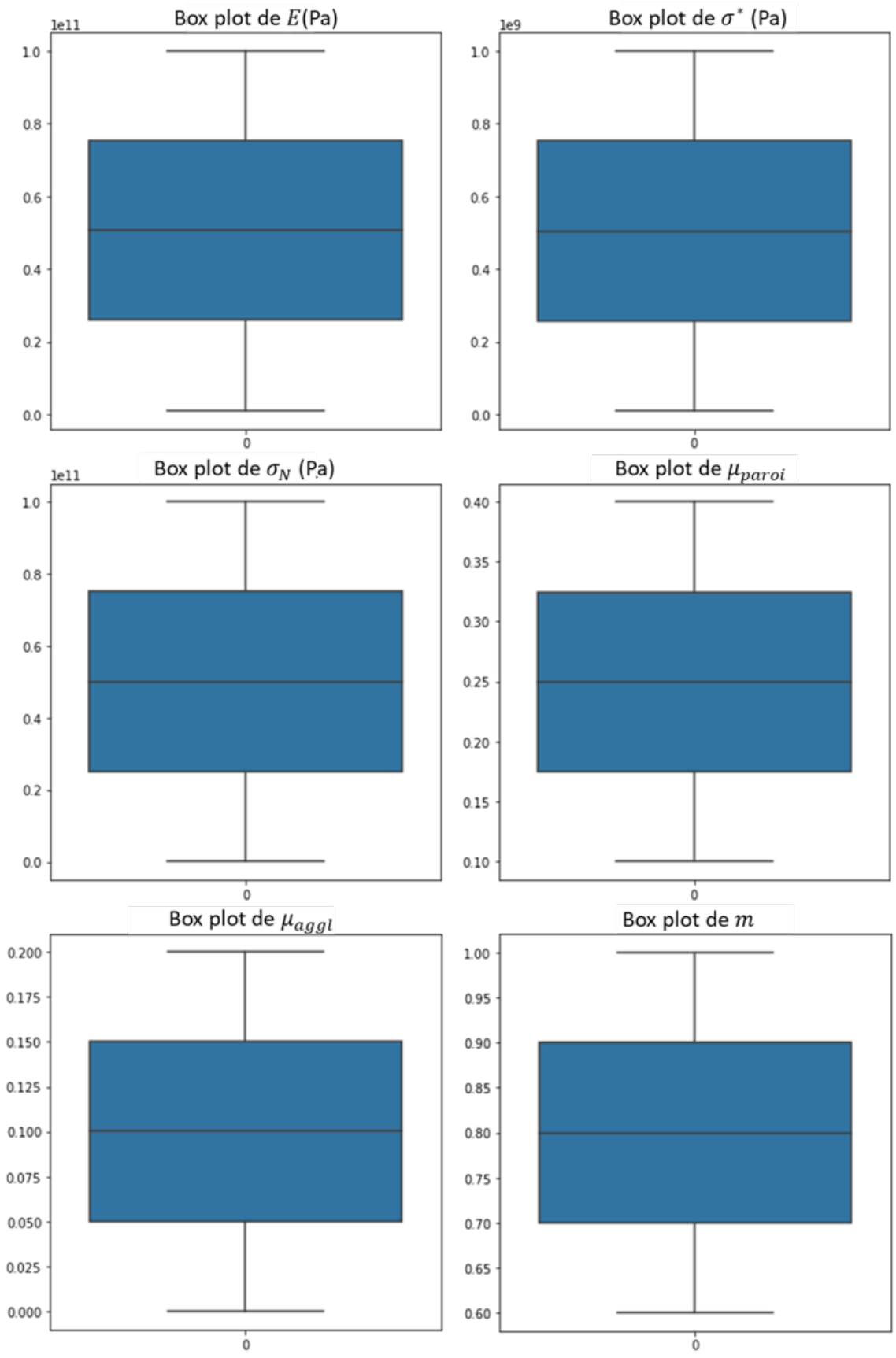

FIGURE B.2 – Box Plots des 6 paramètres matériaux, illustrant la distribution, la médiane, les quartiles et la variabilité des données.

Annexe - Post-traitement de la simulation du frittage par le modèle discret

La figure C.1 illustre les résultats de la mise en œuvre d'une stratégie de post-traitement pour le modèle discret. La géométrie a été déterminée après avoir retiré les particules ayant un nombre de contacts inférieur à un seuil spécifié :

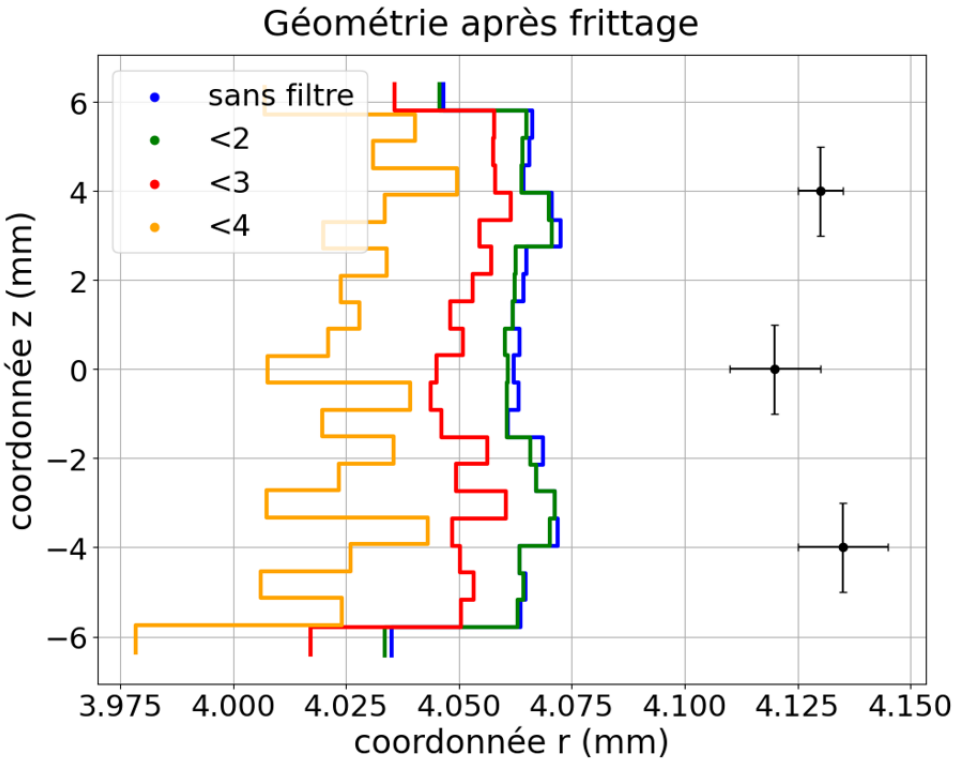

FIGURE C.1 – Géométrie radiale de la pastille TUCHAM0 après frittage selon le modèle discret. Quatre configurations sont comparées : la pastille sans suppression de particules, et les pastilles avec suppression des particules ayant moins de 2, 3 et 4 contacts, respectivement. Les points avec les barres d'erreur représentent les mesures expérimentales.

Dans cette illustration, quatre cas sont présentés pour comparaison : la pastille sans suppression de particules, et les pastilles avec suppression des particules ayant moins de 2, 3 et 4 contacts respectivement.

On observe que dans le cas où les particules ayant moins de 2 contacts sont supprimées, le bruit diminue et la géométrie de la pastille est mieux préservée. Avec la suppression des particules ayant moins de 3 contacts, la géométrie change drastiquement, avec une tendance claire observée entre le haut et le bas de la pastille. Cependant, la partie inférieure semble présenter plus de bruit. Dans le cas avec moins de 4 contacts, on atteint la limite de ce "filtre", avec beaucoup de bruit et sans tendance claire.

Cette stratégie semble contribuer à améliorer la forme de la géométrie finale, mais elle comporte un aspect arbitraire, car le choix du nombre de contacts à utiliser (1 ou 2, par exemple) n'est pas évident. De plus, étant donné qu'il s'agit d'une stratégie de post-traitement, l'idéal serait d'ajuster la simulation elle-même pour obtenir directement la géométrie souhaitée.

Annexe - Outil DEM

L'interface graphique de l'outil DEM a été développée en Python et sert de surcouche au code dp3D. En raison de la présence de code Bash dans dp3D, cet outil numérique est uniquement compatible avec les systèmes d'exploitation Linux. Actuellement, l'accès à distance à l'application n'est pas disponible pour des raisons de sécurité, mais cette fonctionnalité pourrait être implémentée à l'avenir.

L'objectif de l'interface graphique de l'outil DEM est de maximiser l'intuitivité pour l'utilisateur. Ainsi, les simulations présentées dans cette thèse peuvent être réalisées en quelques clics seulement. La figure 6.1 offre un aperçu de l'interface de cet outil.

Dans cette interface, trois onglets sont présentés : "Simuler", "Prédire" et "Output". L'onglet Simuler, qui constitue la page d'accueil, offre tous les champs nécessaires pour lancer les simulations. Chaque champ est accompagné d'une plage de valeurs acceptables, et une erreur est signalée si une valeur saisie ne respecte pas ces limites. Des abréviations sont utilisées pour une présentation épurée, et des informations détaillées sont disponibles via une infobulle lorsqu'on survole chaque champ avec le curseur. Parmi les options disponibles, l'utilisateur peut choisir une cinématique à simple ou double effet, avec ou sans décharge, et inclure également l'étape de frittage.

L'onglet "Prédire" n'est pas encore fonctionnel. L'idée est d'y intégrer des fonctionnalités d'apprentissage machine pour réduire le temps de calcul des simulations. Il représente donc une perspective d'évolution future de l'outil.

L'onglet "Output" affiche les résultats des simulations récentes et en cours. L'utilisa-

teur peut sélectionner, dans une base de données, les simulations pour ensuite accéder aux résultats correspondants (charge, décharge, éjection et frittage).

Bibliographie

[1] "Nuclear Power in France | French Nuclear Energy - World Nuclear Association." Available at https://www.world-nuclear.org/information-library/country-profiles/countries-a-f/france.aspx, Accessed on 04/08/2023.

[2] "Nuclear power economics | nuclear energy costs - world nuclear association."

[3] "Backgrounder On Plutonium | NRC.gov." Available at https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/fact-sheets/plutonium.html, Accessed on 04/08/2023.

[4] O. N. E. A. W. Party, *Physics of Plutonium Recycling : A Report*. No. vol. 1 in OECD documents, Nuclear Energy Agency, Organisation for Economic Co-operation and Development, 1995.

[5] Orano, "All about mox." Available at https://www.orano.group/country/china/en/our-stories/mox-recycling-nuclear-energy, Accessed on 04/08/2023.

[6] "World Uranium Mining - World Nuclear Association." Available at https://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/mining-of-uranium/world-uranium-mining-production.aspx, Accessed on 04/08/2023.

[7] "Orano Melox - recyclage et combustible MOX | Orano."

[8] A. Barreau, B. Roque, P. Marimbeau, C. Venard, P. Bioux, and H. Toubon, "Parametric studies of the effect of MOx environment and control rods for PWR-UOx burnup credit implementation," *JAERI-Conf 2003*, 2003.

[9] EDF, "Le mox," 2015. Available at https://www.edf.fr/groupe-edf/espaces-dedies/l-energie-de-a-a-z/tout-sur-l-energie/produire-de-l-electricite/le-mox, Accessed on 04/08/2023.

[10] "Uranium - ce qu'il faut retenir | orano." Available at https://www.orano.group/fr/decodage/tout-savoir-sur-l-uranium, Accessed on 04/08/2023.

[11] S. Jae Cheon, S. Gi Hong, Y. Suk Nam, and J. Hun Lee, "A Radiation Analysis of 500W RTPV System having Cylindrical Sources," *EPJ Web Conf.*, 2017.

[12] O. N. E. A. W. P. o. P. o. P. Recycling, *Physics of Plutonium Recycling : A Report, Volume 1*, vol. I. Secretary-General of the OECD, 1995.

[13] "Nuclear Fuel Fabrication - World Nuclear Association." Available at https://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/conversion-enrichment-and-fabrication/fuel-fabrication.aspx, Accessed on 04/08/2023.

[14] B. Guérin, Yannick et Bonin, "À Quoi Ressemble Le Combustible Des Réacteurs À Eau ?," *Les combustibles nucléaires - CEA*, pp. 9–12, 2015.

[15] J. P. Fourcade, P. Sornay, F. Sudreau, and P. Papet, "Experimental approach of UO_2 compaction and analytical modelling of pellet diametric deformations," 2006.

[16] O. Alvain, *Caractérisation, modélisation et simulation numérique de la mise en forme de pièces par compression et frittage de poudres dures*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2001.

[17] P. Parant, *Compaction de microsphères poreuses d'oxyde de lanthanides : approche expérimentale et simulations numériques*. Phd thesis, Université Grenoble Alpes, Nov. 2016.

[18] P. Sornay, E. Bertrand, and S. Boukobza, "Rapport technique : Relation entre la physico-chimie des poudres d'UO_2 et leur compressibilité et compactibilité.," Tech. Rep. NT LCU 05-012, CEA, 2005.

[19] C. Ablitzer, "Etude de la compressibilité de poudre d'UO_2 voie humide TU2 et voie sèche Lingen en relation avec leurs propriétés physiques.," tech. rep., CEA, 2004.

[20] A. Ledac, "Analyse et Essai d'Interprétation des Relation entre les Caractéristiques des Poudres leur Compressibilité, leur compactibilité et leur frittabilité," tech. rep., DTP/SECC, 1992.

[21] E. R. Irish and W. H. Reas, "The purex process-a solvent extraction reprocessing method for irradiated uranium," Tech. Rep. HW-49483 A, 4341712, General Electric Co., 1957.

[22] P. Pizette, *Simulation de la compaction de poudres céramiques par la méthode des éléments discrets : Application à la mise en forme des combustibles nucléaires mixtes*. PhD thesis, Institut Polytechnique de Grenoble, 2009.

[23] J. Fourcade, *Etude de la mise en forme par pressage uni-axial des poudres de combustible nucléaire*. PhD thesis, Université de sciences de montpellier, 2002.

[24] P. Dehaudt, *Rapport technique : Le combustible nucléaire et son état physico-chimique à la sortie des réacteurs*. CEA Saclay, Direction de l'information scientifique et technique, 2000.

[25] G. Kerboul, *Etude de l'endommagement des produits céramiques crus par émission acoustique*. PhD thesis, Ecole Doctorale Matériaux de Lyon, 1992.

[26] A. Beche, G. Delette, and S. Di Iorio, "Simulation par éléments finis de I'éjection de comprimés MOX mis en forme par pressage uniaxial," tech. rep., CEA, 2005.

[27] U. Klemm and D. Sobek, "Influence of admixing of lubricants on compressibility and compactibility of uranium dioxide powders," *Powder Technology*, vol. 57, no. 2, pp. 135–142, 1989.

[28] O. M. Alzouma, F. Marion, A.-c. Robisson, O. M. Alzouma, F. Marion, and A.-c. R. The, "The importance of the amount / thickness of die wall lubricant for UO_2 pellets pressing," *Ceramics International*, 2020.

[29] B. Palanki, K. Chakraborthy, and A. Singh, "End-capping and other defects in pressed ceramic compacts," *Indian Journal of Engineering and Materials Sciences*, vol. 3, pp. 196–200, 10 1996.

[30] E. E. Walker, "The properties of powders. Part VI. The compressibility of powders," *Trans. Faraday Soc.*, vol. 19, no. July, pp. 73–82, 1923.

[31] P. J. Denny, "Compaction equations : a comparison of the heckel and kawakita equations," *Powder Technology*, vol. 127, pp. 162–172, 10 2002.

[32] R. Heckel, "An analysis of powder compaction phenomena," *Transactions of the metallurgical society of AIME 221*, pp. 1001–1008, 1961.

[33] K. Kawakita and K. Ludde, "Some considerations on powder compression equations," *Powder Technology*, vol. 4, pp. 61–68, 1970.

[34] D. Niesz, "Automated generation an analysis of powder compaction diagrams," *Angewandte Chemie International Edition, 6(11), 951–952.*, vol. 51, pp. 677– 680, 1967.

[35] M. Adams, "Agglomerate strength measurement using a uniaxial confined compression test," *Powder Technology*, vol. 78, pp. 5–13, 1994.

[36] A.R. Cooper and L. Eaton, "Compaction behaviour of several ceramic powders," *Journal of American Ceramic Society*, vol. 45, no. N3, pp. 97–101, 1962.

[37] H. Janssen, "Experiments on grain pressures in silos," *Verein deutscher Ingenieure Zeitschrift*, vol. 39, pp. 1045–1049, 1895.

[38] R. A. Thompson, "Mechanics of powder pressing i : model for powder densification," *Ceram. Bull.*, pp. vol. 60 (2), pp. 237–243, 1981.

[39] H. Unkel, "The mechanism of pressing of metal powders," *Arcl Eisenhuttenw*, pp. 161–167, 1945.

[40] K. Yanai, M. Hirai, T. Ishikawa, J. Ishizaki, and H. Saitoh, "An analysis of density distribution in UO_2 green pellet by finite element method," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 257, no. 3, pp. 318–330, 1998.

[41] G. Delette, "Modelisation de l'élaboration des pastilles de combustible MOX par compression et frittage," tech. rep., CEA, 2001.

[42] G. Delette, "Modelisation de la mise en forme de pastilles de combustible MOX : Validation et optimisation du cycle de pressage," tech. rep., CEA, 2002.

[43] F. Usseglio-Viretta and G. Delette, "Modélisation de la compaction et optimisation du procédé MELOX," tech. rep., CEA, 2011.

[44] G. Delette, "Contribution au dossier de synthèse R&D fabrication MOX.," tech. rep., CEA, 2006.

[45] C. Dellis and O. Gillia, "DRT/LITEN/DTEN/S3ME-Club Castem 2005-MdP dans Castem Modélisation en Métallurgie des Poudres sur Castem."

[46] G. Delette, "Finite Element modelling of the pressing of nuclear oxide powders to predict the shape of LWR fuel pellet after die compaction and sintering.," *Technical committee meeting held in Brussels*, no. October 2003, p. 329, 2003.

[47] S. J. Glass, K. G. Ewsuk, and F. Mahoney, "Ceramic powder compaction," tech. rep., Sandia National Labs., Albuquerque, NM (United States), 1995.

[48] D. E. Niesz, "A review of ceramic powder compaction," *KONA Powder and Particle Journal*, vol. 14, pp. 44–51, 1996.

[49] B. Harthong, D. Imbault, and P. Dorémus, "The study of relations between loading history and yield surfaces in powder materials using discrete finite element simulations," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 60, no. 4, pp. 784–801, 2012.

[50] G. Frenning, "Compression mechanics of granule beds : A combined finite/discrete element study," *Chemical Engineering Science*, vol. 65, pp. 2464–2471, 2010.

[51] P. A. Cundall and O. D. Strack, "A discrete numerical model for granular assemblies," *Géotechnique*, vol. 29, pp. 47–65, 3 1979.

[52] B. J. Alder and T. E. Wainwright, "Phase Transition for a Hard Sphere System," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 27, p. 1208, aug 1957.

[53] B. J. Alder and T. E. Wainwright, "Studies in Molecular Dynamics. I. General Method," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 31, p. 459, aug 1959.

[54] P. Pizette, C. L. Martin, G. Delette, F. Sans, and T. Geneves, "Green strength of binder-free ceramics," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 33, no. 5, pp. 975–984, 2013.

[55] D. O. Potyondy and P. A. Cundall, "A bonded-particle model for rock," *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, vol. 41, no. 8 SPEC.ISS., pp. 1329–1364, 2004.

[56] M. Khanal, W. Schubert, and J. Tomas, "Dem simulation of diametrical compression test on particle compounds," *Granular Matter*, vol. 7, pp. 83–90, 7 2005.

[57] C. L. Martin, D. Bouvard, and G. Delette, "Discrete element simulations of the compaction of aggregated ceramic powders," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 89, no. 11, pp. 3379–3387, 2006.

[58] B. Henrich, A. Wonisch, T. Kraft, M. Moseler, and H. Riedel, "Simulations of the influence of rearrangement during sintering," *Acta Materialia*, vol. 55, pp. 753–762, jan 2007.

[59] C. L. Martin, H. Camacho-Montes, L. Olmos, D. Bouvard, and R. K. Bordia, "Evolution of defects during sintering : Discrete element simulations," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 92, no. 7, pp. 1435–1441, 2009.

[60] C. L. Martin, L. C. Schneider, L. Olmos, and D. Bouvard, "Discrete element modeling of metallic powder sintering," *Scripta Materialia*, vol. 55, no. 5, pp. 425–428, 2006.

[61] B. Paredes-Goyes, D. Jauffres, J. M. Missiaen, and C. L. Martin, "Grain growth in sintering : A discrete element model on large packings," *Acta Materialia*, vol. 218, p. 117182, 2021.

[62] J. J. Moreau, *Unilateral Contact and Dry Friction in Finite Freedom Dynamics*, pp. 1–82. Vienna : Springer Vienna, 1988.

[63] R. Kawamoto, E. Andò, G. Viggiani, and J. E. Andrade, "Level set discrete element method for three-dimensional computations with triaxial case study," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 91, pp. 1–13, 2016.

[64] I. Trabelsi, M. Moakher, C. Gatumel, and H. Berthiaux, "An algebraic condition and an algorithm for the internal contact between two ellipsoids," *Engineering Computations (Swansea, Wales)*, vol. 26, no. 6, pp. 635–644, 2009.

[65] J. Barnes and P. Hut, "A hierarchical O(N log N) force-calculation algorithm," *Nature 1986 324 :6096*, vol. 324, no. 6096, pp. 446–449, 1986.

[66] V. Ogarko and S. Luding, "A fast multilevel algorithm for contact detection of arbitrarily polydisperse objects," *Computer Physics Communications*, vol. 183, no. 4, pp. 931–936, 2012.

[67] W. C. Swope, H. C. Andersen, P. H. Berens, and K. R. Wilson, "A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules : Application to small water clusters," *The Journal of Chemical Physics*, vol. 76, pp. 637–649, jan 1982.

[68] H. Yoshida, "Construction of higher order symplectic integrators," *Physics Letters A*, vol. 150, pp. 262–268, nov 1990.

[69] R. D. Skeel, "Variable step size destabilizes the Störmer/leapfrog/verlet method," *BIT*, vol. 33, pp. 172–175, mar 1993.

[70] C. Thornton and S. J. Antony, "Quasistatic deformation of particulate media," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 356, pp. 2763–2782, nov 1998.

[71] C. L. Martin, D. Bouvard, and S. Shima, "Study of particle rearrangement during powder compaction by the Discrete Element Method," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 51, no. 4, pp. 667–693, 2003.

[72] J. Roux and F. Chevoir, "Simulation numérique discrète et comportement mécanique des matériaux granulaires," *Bulletin Des Laboratoires Des Ponts et Chaussées, 254, 109–138*, vol. 254, pp. 109–138, 2005.

[73] J. Weber, "Recherches concernant les contraintes intergranulaires dans les milieux pulvérulents," *Bulletin de liaison des Ponts et Chaussées*, pp. 1–20, 1966.

[74] J. Christoffersen, M. M. Mehrabadi, and S. Nemat-Nasser, "A micromechanical description of granular material behavior," *Journal of Applied Mechanics*, vol. 48, pp. 339–344, 1981.

[75] C. L. Martin and R. K. Bordia, "Influence of adhesion and friction on the geometry of packings of spherical particles," *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 77, no. 3, pp. 1–8, 2008.

[76] I. Agnolin and J. N. Roux, "Internal states of model isotropic granular packings. I. Assembling process, geometry, and contact networks," *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 76, no. 6, pp. 1–27, 2007.

[77] N. A. Fleck, B. Storåkers, and R. M. McMeeking, "The Viscoplastic Compaction of Powders," *KLUWER ACADEMIC PUBLISHERS*, pp. 1–10, 1997.

[78] C. L. Martin, "Elasticity, fracture and yielding of cold compacted metal powders," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 52, no. 8, pp. 1691–1717, 2004.

[79] B. Harthong, J. F. Jérier, P. Dorémus, D. Imbault, and F. V. Donzé, "Modeling of high-density compaction of granular materials by the Discrete Element Method," *International Journal of Solids and Structures*, vol. 46, no. 18-19, pp. 3357–3364, 2009.

[80] X. Liu, C. L. Martin, G. Delette, and D. Bouvard, "Elasticity and strength of partially sintered ceramics," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 58, no. 6, pp. 829–842, 2010.

[81] C. L. Martin and R. K. Bordia, "The effect of a substrate on the sintering of constrained films," *Acta Materialia*, vol. 57, no. 2, pp. 549–558, 2009.

[82] Z. Yan, C. L. Martin, O. Guillon, and D. Bouvard, "Effect of size and homogeneity of rigid inclusions on the sintering of composites," *Scripta Materialia*, vol. 69, no. 4, pp. 327–330, 2013.

[83] H. Hertz, "Ueber die berührung fester elastischer körper," *Journal fur die Reine und Angewandte Mathematik*, vol. 1882, pp. 156–171, 1 1882.

[84] B. V. Derjaguin, V. M. Muller, and Y. P. Toporov, "Effect of contact deformations on adhesion of particles," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 53, pp. 314–326, 1975.

[85] K. L. Johnson, K. Kendall, and A. D. Roberts, "Surface energy and the contact of elastic solids," *Proc. R. Soc. Lond. A*, vol. A324, pp. 301–313, 1971.

[86] E. Barthel, "Adhesive elastic contacts - JKR and more," *J. Phys. D : Appl. Phys.*, vol. 41, p. 163001, 2008.

[87] D. Maugis, "Adhesion of spheres : The jkr-dmt transition using a dugdale model," *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 150, pp. 243–269, 4 1992.

[88] B. Storakers, N. A. Fleck, and R. M. McMeeking, "The viscoplastic compaction of composite powders," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 47, pp. 785–815, 1999.

[89] K. L. Johnson, *Contact Mechanics*. Cambridge University Press, 1985.

[90] S. M. Sweeney and C. L. Martin, "Pore size distributions calculated from 3-D images of DEM-simulated powder compacts," *Acta Materialia*, vol. 51, no. 12, pp. 3635–3649, 2003.

[91] S. Garner, J. Strong, and A. Zavaliangos, "Study of the die compaction of powders to high relative densities using the discrete element method," *Powder Technology*, vol. 330, pp. 357–370, 5 2018.

[92] T. Weinhart, L. Orefice, M. Post, M. P. van Schrojenstein Lantman, I. F. Denissen, D. R. Tunuguntla, J. M. Tsang, H. Cheng, M. Y. Shaheen, H. Shi, P. Rapino, E. Grannonio, N. Losacco, J. Barbosa, L. Jing, J. E. Alvarez Naranjo, S. Roy, W. K. den Otter, and A. R. Thornton, "Fast, flexible particle simulations — An introduction to MercuryDPM," *Computer Physics Communications*, vol. 249, p. 107129, apr 2020.

[93] P. Pizette, C. L. Martin, G. Delette, P. Sornay, and F. Sans, "Compaction of aggregated ceramic powders : From contact laws to fracture and yield surfaces," *Powder Technology*, vol. 198, no. 2, pp. 240–250, 2010.

[94] C. H. Rycroft, "VORO++ : A three-dimensional Voronoi cell library in C++," *Chaos*, vol. 19, no. 4, p. 41111, 2009.

[95] G. Jefferson, G. K. Haritos, and R. M. McMeeking, "The elastic response of a cohesive aggregate - A discrete element model with coupled particle interaction," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 50, no. 12, pp. 2539–2575, 2002.

[96] C. Martin, *Short manual for dp3D*. No. October in SIMaP documents, SIMaP, 2021. Available at `https://www.overleaf.com/project/61370d663a049547c72bcf36`.

[97] B. Saint-Cyr, *Modélisation des matériaux granulaires cohésifs à particules non convexes : Application à la compaction des poudres d'UO_2*. PhD thesis, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 11 2011.

[98] B. Saint-Cyr, F. Radjai, J. Y. Delenne, and P. Sornay, "Cohesive granular materials composed of nonconvex particles," *Physical Review E*, vol. 87, p. 052207, 5 2013.

[99] E. Azéma, F. Radjaï, B. Saint-Cyr, J. Y. Delenne, and P. Sornay, "Rheology of three-dimensional packings of aggregates : Microstructure and effects of nonconvexity," *Physical Review E*, vol. 87, p. 052205, 5 2013.

[100] A. Balakrishnan, P. Pizette, C. L. Martin, S. V. Joshi, and B. P. Saha, "Effect of particle size in aggregated and agglomerated ceramic powders," *Acta Materialia*, vol. 58, no. 3, pp. 802–812, 2010.

[101] P. Pizette, "Rapport de synthèse des simulations - Application de la modélisation de la compaction à des besoins industriels - Lot 2 : Impact de la poudre VS.," tech. rep., SIMaP, 2011.

[102] S. Okamoto, Y. Nakazono, K. Otsuka, Y. Shimoitani, and J. Takada, "Mechanical properties of wc/co cemented carbide with larger wc grain size," *Materials Characterization*, vol. 55, pp. 281–287, 11 2005.

[103] S. J. Wright, *Numerical optimization*. Spinger, 2006.

[104] S. Ruder, "An overview of gradient descent optimization algorithms," 9 2017.

[105] M. Mitchell, "Genetic algorithms : An overview.," in *Complex.*, vol. 1, pp. 31–39, Citeseer, 1995.

[106] A. Géron, *Hands-on machine learning with Scikit-Learn, Keras, and TensorFlow*. " O'Reilly Media, Inc.", 2022.

[107] R. T. Marler and J. S. Arora, "Survey of multi-objective optimization methods for engineering," *Structural and Multidisciplinary Optimization*, vol. 26, pp. 369–395, 4 2004.

[108] A. T. Nguyen, S. Reiter, and P. Rigo, "A review on simulation-based optimization methods applied to building performance analysis," *Applied Energy*, vol. 113, pp. 1043–1058, 1 2014.

[109] J. M. Dufour and J. Neves, "Finite-sample inference and nonstandard asymptotics with monte carlo tests and r," *Handbook of Statistics*, vol. 41, pp. 3–31, 1 2019.

[110] G. Nogueira, T. Gervais, V. Peres, E. Marc, and C. L. Martin, "Using discrete simulations of compaction and sintering to predict final part geometry," *https ://doi.org/10.1080/00325899.2023.2198796*, 2023.

[111] A. L. Samuel, "Some studies in machine learning using the game of checkers," *IBM Journal of Research and Development*, vol. 3, pp. 210–229, 7 1959.

[112] E. Bisong, "Batch vs. online learning," *Building Machine Learning and Deep Learning Models on Google Cloud Platform*, pp. 199–201, 2019.

[113] "scipy.optimize.minimize — scipy v1.11.2 manual."

[114] M. Banko and E. Brill, "Scaling to very very large corpora for natural language disambiguation," in *Proceedings of the 39th annual meeting of the Association for Computational Linguistics*, pp. 26–33, Association for Computational Linguistics (ACL), 2001.

[115] M. Stein, "Large sample properties of simulations using latin hypercube sampling," *Technometrics*, vol. 29, pp. 143–151, 1987.

[116] W. K. Hastings, "Monte carlo sampling methods using markov chains and their applications," *Biometrika*, vol. 57, pp. 97–109, 4 1970.

[117] A. Golbraikh, M. Shen, Z. Xiao, Y. D. Xiao, K. H. Lee, and A. Tropsha, "Rational selection of training and test sets for the development of validated qsar models," *Journal of Computer-Aided Molecular Design*, vol. 17, pp. 241–253, 2003.

[118] J. W. Tukey *et al.*, *Exploratory data analysis*, vol. 2. Reading, MA, 1977.

[119] "Correlation concepts, matrix & heatmap using seaborn - data analytics."

[120] J. W. Emerson, W. A. Green, B. Schloerke, J. Crowley, D. Cook, H. Hofmann, and H. Wickham, "The generalized pairs plot," *Journal of Computational and Graphical Statistics*, vol. 22, pp. 79–91, 2013.

[121] L. Shao, A. Mahajan, T. Schreck, and D. J. Lehmann, "Interactive regression lens for exploring scatter plots," *Computer Graphics Forum*, vol. 36, pp. 157–166, 6 2017.

[122] A. Zheng and A. Casari, *Feature engineering for machine learning : principles and techniques for data scientists*. " O'Reilly Media, Inc.", 2018.

[123] D. U. Ozsahin, M. T. Mustapha, A. S. Mubarak, Z. S. Ameen, and B. Uzun, "Impact of feature scaling on machine learning models for the diagnosis of diabetes," in *2022 International Conference on Artificial Intelligence in Everything (AIE)*, pp. 87–94, IEEE, 2022.

[124] L. Breiman, "Random forests," *Machine Learning*, vol. 45, pp. 5–32, 10 2001.

[125] M. Belgiu and L. Drăgu, "Random forest in remote sensing : A review of applications and future directions," *ISPRS Journal of Photogrammetry and Remote Sensing*, vol. 114, pp. 24–31, 4 2016.

[126] K. Gurney, *An Introduction to Neural Networks*. CRC Press, 10 2018.

[127] L. N. Smith, "A disciplined approach to neural network hyper-parameters : Part 1 – learning rate, batch size, momentum, and weight decay," *arXiv preprint arXiv :1803.09820*, 3 2018.

[128] D. P. Kingma and J. L. Ba, "Adam : A method for stochastic optimization," *3rd International Conference on Learning Representations, ICLR 2015 - Conference Track Proceedings*, 12 2014.

[129] C. Perlich *et al.*, "Learning curves in machine learning.," 2010.

[130] H. Kaneko, "Cross-validated permutation feature importance considering correlation between features," *Analytical Science Advances*, vol. 3, pp. 278–287, 10 2022.

[131] C. Gulcehre, M. Moczulski, M. D. Com, Y. Bengio, and B. U. Ca, "Noisy activation functions," 6 2016.

[132] M. Kato and T. Matsumoto, "Thermal and mechanical properties of UO_2 and PuO_2," tech. rep., Atomic Energy Agency, 2015.

[133] A. Jagota, K. Mikeska, and R. Bordia, "Isotropic constitutive model for sintering particle packings," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 73, pp. 2266–2273, 8 1990.

[134] J. R. Carazzone, C. L. Martin, and Z. C. Cordero, "Crack initiation, propagation, and arrest in sintering powder aggregates," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 103, pp. 4754–4773, 9 2020.

[135] A. Jagota and G. W. Scherer, "Viscosities and sintering rates of composite packings of spheres," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 78, pp. 521–528, 3 1995.

[136] F. Parhami and R. M. McMeeking, "A network model for initial stage sintering," *Mechanics of Materials*, vol. 27, pp. 111–124, 2 1998.

[137] D. Bouvard and R. M. McMeeking, "Deformation of interparticle necks by diffusion-controlled creep," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 79, pp. 666–672, 3 1996.

[138] R. L. COBLE, "Initial sintering of alumina and hematite," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 41, pp. 55–62, 2 1958.

[139] J. Pan, H. Le, S. Kucherenko, and J. A. Yeomans, "A model for the sintering of spherical particles of different sizes by solid state diffusion," *Acta Materialia*, vol. 46, pp. 4671–4690, 8 1998.

[140] J. Simeon, F. Lebreton, L. Ramond, N. Clavier, and G. Bernard-Granger, "Influence of the puo2 content on the sintering behaviour of uo2-puo2 freeze-granulated powders under reducing conditions," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 41, pp. 6778–6783, 10 2021.

[141] J. Simeon, *Frittage et développement de la microstructure du combustible nucléaire MOX RNR*. Theses, Université Grenoble Alpes [2020-....], Feb. 2022.

[142] R. O. Hall, M. J. Mortimer, and D. A. Mortimer, "Surface energy measurements on uo2 — a critical review," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 148, pp. 237–256, 5 1987.

[143] H. J. Frost and M. F. Ashby, "Deformation-mechanism maps : the plasticity and creep of metals and ceramics," *(No Title)*, 1982.

[144] L. Desgranges, G. Baldinozzi, G. Rousseau, J. C. Nièpce, and G. Calvarin, "Neutron diffraction study of the in situ oxidation of uo2," *Inorganic Chemistry*, vol. 48, pp. 7585–7592, 8 2009.

[145] "seaborn.pairplot — seaborn 0.12.2 documentation."

[146] R. L. Nuzzo, "The box plots alternative for visualizing quantitative data," *PM&R*, vol. 8, pp. 268–272, 3 2016.

Simulation discrète de la compaction et du frittage des poudres d'UOX et de MOX.

RÉSUMÉ

Ce travail, réalisé en collaboration avec l'usine de recyclage Orano Melox, s'inscrit dans le contexte de l'industrie nucléaire française, qui joue un rôle central dans la production d'électricité du pays. La thèse est centrée sur la fabrication du combustible nucléaire à travers les étapes de compaction et de frittage des poudres nucléaires : les combustibles UOX (Uranium OXide) et MOX (Mixed OXide). La compaction uni-axiale induit un champ de densité hétérogène dans la pastille. Cette hétérogénéité est responsable d'une déformation radiale lors des étapes d'éjection et de frittage (effet diabolo), qui impose au fabricant une étape de rectification de la surface latérale. Le but de la thèse est de développer un outil numérique dédié pour simuler la géométrie des pastilles après compaction et frittage. Il s'agit en particulier d'anticiper l'effet de la composition du MOX.

L'outil numérique doit prendre en compte le caractère granulaire des poudres, la composition du mélange, et les conditions industrielles du processus. Pour cela, la méthode des éléments discrets (DEM) est utilisée. Cette méthode de simulation, qui prend explicitement en compte la microstructure granulaire des poudres en modélisant chaque particule individuellement, est explorée en détail dans ce manuscrit. Les lois constitutives pour la compaction et le frittage sont abordées, ainsi que leur application dans le contexte des poudres nucléaires. Nous adaptons un modèle qui permet d'aborder les hautes densités relatives en tenant compte de l'effet de la densité locale (calculée via des cellules de Voronoi) sur l'écrouissage de la poudre.

L'approche choisie pour simuler la poudre à l'échelle d'un comprimé entier consiste à représenter la poudre MOX comme étant composée de deux types d'agglomérats poreux : les agglomérats d'UO_2 et les agglomérats de mélange primaire (MP, un mélange à haute teneur en plutonium). Cela permet d'optimiser le temps de calcul des simulations, et de rendre compte de la composition des différents mélanges utilisées par l'industriel.

Dans un premier temps, l'agglomérat d'UO_2 est modélisé. Pour ce faire, une base de données a été générée, comprenant des milliers de simulations dans lesquelles six paramètres matériau ont été variés. Un modèle d'apprentissage machine a été développé et entraîné par apprentissage supervisé, afin de déterminer l'ensemble des paramètres matériau qui correspondent le mieux aux données expérimentales disponibles sur l'UO_2.

L'agglomérat de MP est modélisé via des hypothèses simplificatrices. Une fois les agglomérats d'UO_2 et de MP modélisés, la simulation de la compaction à simple et à double effet sur le UOX et MOX a été réalisée. La cinématique et la géométrie industrielle des pastilles sont prises en compte. En particulier, les phases de décharge élastique et d'éjection sous pression d'accompagnement sont modélisées. A l'issue de l'étape de compaction, un gradient de densité est observé, résultant des mouvements relatifs des parois et du frottement entre les parois et la poudre. Nous obtenons dès cette étape une déformation radiale de la pastille.

En fin de manuscrit, le frittage est abordé. Cette partie, servant de preuve de concept, n'aborde pas toute la complexité du frittage, mais permet d'étudier l'influence du gradient de densité sur la géométrie finale du comprimé. Deux modèles sont proposés. Le premier consiste à simuler le frittage via la simulation discrète en prenant en compte les phénomènes de diffusion à l'échelle des contacts. Le second, beaucoup plus simple, prend uniquement en compte la carte de densité dans la pastille compactée.