



HAL
open science

Étude de l'influence des caractéristiques physiques des poudres UO₂ sur leurs propriétés rhéologiques

Ahmed Madian

► **To cite this version:**

Ahmed Madian. Étude de l'influence des caractéristiques physiques des poudres UO₂ sur leurs propriétés rhéologiques. Génie des procédés. Université de Technologie de Compiègne, 2019. Français. NNT : 2019COMP2461 . tel-04730317

HAL Id: tel-04730317

<https://theses.hal.science/tel-04730317v1>

Submitted on 10 Oct 2024

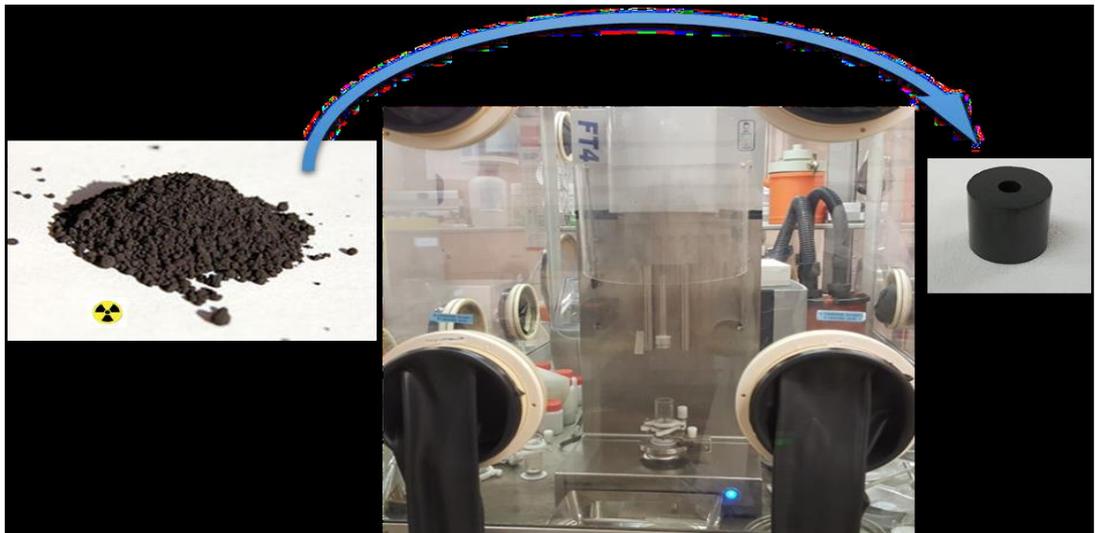
HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

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.

Par **Ahmed MADIAN**

*Étude de l'influence des caractéristiques physiques
des poudres UO₂ sur leurs propriétés rhéologiques*

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



Soutenue le 15 janvier 2019

Spécialité : Génie des Procédés Industriels et développement durable : Transformations intégrées de la matière renouvelable (EA-4297)

D2461

Université de Technologie de Compiègne

ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES DES POUDRES UO_2 SUR LEURS PROPRIETES RHEOLOGIQUES

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 15 janvier 2019
pour l'obtention du

Doctorat en Sciences de l'Ingénieur
Spécialité : Génie des Procédés Industriels et développement durable

par

Ahmed MADIAN

Composition du jury

Véronique Falk	Rapporteur
Professeur (Université de Lorraine, Nancy)	
Alain De Ryck	Rapporteur
Professeur (Ecole des mines d'Albi-Carmaux)	
Mohamed Guessasma	Examineur
Professeur (Université de Picardie Jules Verne)	
Jérôme Favergeon	Examineur (Président du jury)
Professeur (Université de Technologie de Compiègne)	
Khashayar Saleh	Directeur de thèse
Professeur (Université de Technologie de Compiègne)	
Carine Ablitzer	Encadrant
Ingénieur chercheur (CEA Cadarache)	
Guillaume Bernard-Granger	Encadrant/Invité
Ingénieur chercheur (CEA Marcoule)	
Mikel Leturia	Encadrant/Invité
Maitre de Conférences (Université de Technologie de Compiègne)	
Pierre Matheron	Encadrant/Invité
Ingénieur chercheur (CEA Cadarache)	
Jeremy Nos	Invité
Ingénieur (Orano)	

REMERCIEMENTS

Enfin les remerciements !! J'ai dû y penser tellement de fois lors de la rédaction du manuscrit et j'avais tellement hâte d'en arriver à ce moment-là. Mais finalement la tâche s'avère très difficile à écrire car je ne dispose ni d'articles ni de résultats expérimentaux pour m'y appuyer mais seulement moi et les souvenirs de ces trois années de thèse.

Pour ma part je ressens un mélange de joie et de nostalgie. D'un côté c'est un plaisir de remercier tous ceux qui m'ont consciemment et inconsciemment aidé à mener à bien ce projet et qui en ont fait une très belle expérience. Mais d'un autre côté elle marque la fin d'une aventure... C'est donc avec une certaine émotion que je vais rendre hommage aux différentes personnes qui m'ont inspiré.

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

Tout d'abord je remercie Véronique Falk et Alain De Ryck qui ont accepté de rapporter ce travail ainsi que les examinateurs Mohamed Guessasma, Jérôme Favergeon et Jeremy Nos.

Je remercie mes encadrants : Khashayar et Guillaume pour avoir généreusement partagé leurs connaissances ; Mikel qui m'a aussi beaucoup aidé et avec qui on a arrêté de compter le nombre d'heures passées au téléphone à des discussions constructives ; J'aimerais remercier particulièrement mes encadrants du CEA Carine Ablitzer et Pierre Matheron qui m'ont en premier lieu guidé puis m'ont permis de devenir plus indépendant dans mon travail. Je vous suis infiniment reconnaissant pour votre disponibilité, vos conseils, vos remarques et critiques constructives, votre soutien, vos corrections, vos lectures et relectures surtout en fin de thèse. Vous avez toujours été prêts à m'aider avec le sourire.

Je remercie Jérôme Lamontagne (chef du LCU à mon arrivée) qui m'a fait confiance, m'a soutenu et permis de réaliser cette thèse. Je remercie également Maité Bertaux, chef du LCU, pour son implication et son soutien.

Un grand merci à tous les ingénieurs du Laboratoire pour les discussions scientifiques mais aussi pour leur bonne humeur : Anne-Charlotte Robisson, Joel Raynal, Philippe Sornay, Dominique Moulinier, Xavière Iltis, Christelle Duguay et Olivier Fiquet (je vais m'inspirer du précieux livre que tu m'as donné pour mon avenir post-thèse). Un merci particulier à mon voisin de manip Philippe Garcia qui m'a appris à toujours me poser des questions et à avoir confiance dans mon travail. Les discussions scientifiques ainsi que tes conseils ont joué un rôle dans la réalisation de cette thèse. Merci pour ta bonne humeur et je n'oublierai pas d'observer en premier lieu la « STOECHIOMETRIE » dans mes prochaines études !



Je remercie également tous les techniciens du laboratoire pour leur gentillesse ainsi que tous les moments agréables qu'on a passé ensemble (les repas de labo, les pique-niques d'été, les AG) : Eric Bertrand, Catherine Tanguy, Joseph Sanchez, Laetitia Silvestre, Audrey Miard (AMi), Mathias Soulon,

Franck Marion, Helene Rouquette, Justine Roubaud, Nicolas Tarisien, Florent Garel, Andréa Sanchez, Olivier Laurent et Clarisse Bonnier.

Je remercie l'équipe d'exploitation du Labo UO₂ : Christophe Bertrand, Cathy Collavoli, Julie Pons, Océane, Bastien, Eric Guipponi, Vincent Moutte et Sébastien Lefevre. Je remercie également ma SPR préférée Karine Burbaud ainsi que ma secrétaire préférée Corinne Druesne.

Merci aussi à tous les stagiaires que j'ai rencontrés (Grégoire, ...) et les doctorants (Claire, Marie, Ibrahim, Jean-Baptiste, ...) pour leur gentillesse. Je remercie spécialement celle qui me succède, Elodie, pour sa précieuse aide en fin de thèse, je te souhaite de vivre une très belle expérience au sein d'un beau labo.

Un chaleureux merci à Ouacilla et Vanessa qui ont été les premières personnes à m'intégrer au sein du Laboratoire. J'aimerais aussi remercier toutes les personnes du Laboratoire mais aussi du centre CEA que j'ai rencontrées durant cette thèse : l'équipe LECA (David, Anthony, Alain), Roger, Danielle (pour le café à la cantine), l'équipe libanaise (Jizzini, momo,...), le chauffeur de bus de la ligne 6, ...

Les mots me manquent pour exprimer ma profonde gratitude à l'égard de certaines personnes exceptionnelles que je considère actuellement comme ma seconde famille. Durant ces trois ans j'ai noué des liens fort avec vous. Pour plus d'originalité je vais essayer de vous décrire selon mon point de vue 😊 : Alexandre l'ami de toujours, Christophe le grand frère, Florent le boudeur (avec un très grand appétit), Nico le vieux-jeune (et l'analyste de performance), Karine la voyageuse (et la raleuse), Lorie la lionne, Marine la meilleure pâtissière (et toujours souriante), Corinne alias Coco le chat noir (mais aussi la meilleure), Julie alias Lisi la police (et la rigolote), Serge le fêtard (que j'adore, j'ai l'impression de te connaître depuis toujours), Cathy la plénitude (et la folie), Mira l'optimiste (la légèreté), Andréa la joie de vivre (mais aussi la pire) et Pierre le MEILLEUR tout simplement !

Des remerciements spéciaux surtout pour Christophe, Andréa, Cathy et Pierre. Merci à Christophe qui au début ne m'inspirait pas mais s'est révélé être tout le contraire. Tu es devenu l'un de mes meilleurs amis, merci pour tes conseils et je n'oublierai jamais le saut à Esparron. Merci à Andréa qui m'a beaucoup supporté, merci pour ton rire communicatif et tes expressions qui me manqueront et pour toutes ses organisations d'évènements, j'ai même été formé partiellement en métallographie ainsi que sur les rondes 😊 Merci à Cathy pour les pauses café en dernière année, tu m'a beaucoup encouragé durant la rédaction du manuscrit. Un très grand merci à mon père spirituel Pierre, ta présence durant cette thèse m'a permis de travailler dans des conditions agréables. Les soirées et les missions avec toi (la préfecture et restaurant éthiopien à Paris) vont me manquer ! Tu as été présent pour moi dans les mauvais comme dans les bons moments, tu as toujours eu une oreille attentive, toujours eu le mot pour me faire rire et tu m'as toujours supporté. Je te remercie infiniment pour TOUT ce que tu m'as apporté !! J'ai été extrêmement chanceux d'avoir connu des gens tel que vous. Je vous suis entièrement reconnaissant pour tout le plaisir que nous avons eu durant ces dernières années (les sorties à Esparon, les courses à pied, ...). Et sachez que votre soutien et vos encouragements valaient plus que ce que je peux exprimer sur papier.

Un au revoir aussi à mon local Calcination où j'ai passé la majeure partie de mon temps de manip. Au revoir au rhéomètre FT4 et à M2, vous m'en avez fait baver mais au final ça fut un plaisir, on s'est bien amusé !

Un petit mot pour remercier mes amis du club « FC Brelles » (Matt le PLOMBEUR, Adri, Alex et Lionel) pour toutes les soirées de fous rires que vous m'offrez.

Je remercie profondément toute ma famille, ma femme Séverine, mes frères et sœurs (Hassan, Hamadi, Safa, Marwa, Omar, Amaane, Moussab et Thufeil), mes belles mères Filsan et Faiza, ma mère Samira et en particulier mon père le Dr. Madian un modèle de vie pour moi. Tout au long de mon cursus ils m'ont toujours encouragé et aidé et ont su me donner toutes les chances pour réussir. Qu'ils trouvent, dans la réalisation de ce travail, l'aboutissement de leurs efforts. Je les remercie aussi personnellement pour leur amour, leur soutien émotionnel et leur patience.

Et surtout une très grande pensée à Laetitia à qui je dédie cette thèse. J'ai beaucoup appris avec toi en fabrication. Merci beaucoup pour ta bonne humeur, tu as toujours été très souriante, attentionnée et bienveillante avec moi. Que ton âme repose en paix.

Cette thèse a été une expérience formidable et inoubliable aussi bien d'un point de vue professionnel mais aussi humain grâce à vous. Tous vous nommer serait presque impossible mais sachez que chacun à sa façon m'a permis d'être heureux durant cette thèse.

MERCI ENCORE A VOUS TOUS

RESUME

Le combustible nucléaire pressenti pour les réacteurs de quatrième génération à neutrons rapides refroidis au sodium présente différentes caractéristiques qui le différencient du combustible utilisé dans les Réacteurs à Eau Pressurisée, notamment : une structure homogène (U,Pu)O₂, une géométrie annulaire et une forte teneur en PuO₂. Le procédé de fabrication des pastilles de combustible comprend la réalisation d'un mélange UO₂/PuO₂ par cobroyage suivie d'une mise en forme par pressage. Cependant, le mélange UO₂/PuO₂ cobroyé n'a pas les propriétés adaptées à un remplissage reproductible des moules de presses annulaires. Il s'agit donc d'identifier une opération intermédiaire, entre le cobroyage et la mise en forme, pour faciliter le remplissage des moules. Pour orienter le choix de cette opération, une étude à effets séparés a été réalisée sur des granulés d'UO₂, considérés représentatifs de la poudre broyée en première approche. Les caractéristiques physiques cibles qui ont été étudiées sont la granulométrie et la morphologie (état de surface) de la poudre. Ainsi, des mélanges de granulés de tailles différentes ont été caractérisés pour évaluer l'influence de la quantité de fines (particules inférieures à 100 µm) sur les propriétés rhéologiques. En parallèle une intercomparaison entre les cellules de cisaillement de volumes et de types différents (Cellule de Schulze et FT4) a été effectuée afin d'avoir un bon compromis entre la quantité de poudre utilisée et la qualité des résultats. Un premier objectif a été de déterminer quelle proportion de fines est acceptable. Par ailleurs, pour évaluer l'effet de l'état de surface des granulés, une opération de type sphéroïdisation a été réalisée. Elle conduit à modifier la rugosité des granulés. Il a été montré que le taux de fines et la rugosité de surface sont deux paramètres influents qui permettent de modifier les propriétés rhéologiques. Notamment dans le cadre de ces travaux, la présence de fines de moins de 100 µm ne semble pas avoir d'impact négatif sur la mise en écoulement jusqu'à une proportion proche de 10%_m. Par contre d'autres propriétés telle que la perméabilité sont sensibles à la proportion de fines même en dessous de 10%_m. Une opération de sphéroïdisation permet d'améliorer les propriétés de mise en écoulement de la poudre même au-delà de 10%_m de fines. Ces résultats font apparaître deux modes d'action possibles qui sont la sélection granulométrique et la sphéroïdisation, cette dernière semblant la plus adaptée pour notre application.

Mots clés : remplissage, poudre, caractéristiques physiques, écoulement, cisaillement, rhéologie, uranium

ABSTRACT

The nuclear fuel for the fourth generation sodium-cooled fast neutron reactors presents characteristics which differentiate it from that used in Pressurized Water Reactors: a homogeneous structure (U,Pu)O₂, an annular geometry and a high content of PuO₂. The manufacturing process of the fuel pellets starts with the realization of a UO₂/PuO₂ mixture by co-grinding followed by forming by pressing. However, the UO₂/PuO₂ mixture does not exhibit the suitable properties for a reproducible filling of annular press moulds. An intermediate operation, between the co-grinding and the shaping, is necessary to facilitate the filling of the moulds. To direct the choice of this operation, a separate effects study was carried out on UO₂ granules, considered as representative of the crushed powder in a first approach. The investigated target physical characteristics are the powder size distribution and morphology. Therefore, mixtures of granules of various sizes were characterized to evaluate the influence of the quantity of fines (particles with a size lower than 100 μm) on the rheological properties. In parallel an intercomparison study between shear cells of different volumes and types (Schulze cell and FT4) was carried out in order to have a good compromise between the quantity of powder used and the quality of the results. A first objective was to determine the proportion of fines acceptable. Then to evaluate the effect of the surface quality of the granules, an operation of spheroidization was carried out. This resulted in modifying the granules roughness. It has been shown that both the fines ratio and the surface roughness are influential parameters that make it possible to modify the rheological properties. In particular within the framework of this study, the presence of fines with a size lower than 100 μm does not seem to have a negative impact on incipient flow up to about 10 w%. On the contrary, other properties such as permeability are sensitive to the fines amount, even below 10 w%. A spheroidization stage enables to improve incipient flow properties of the powder even above 10 w% of fines. These results lead to two possible action modes, which are the grain size selection and the spheroidization, the latter being the most adapted for our application.

Keywords : filling, powder, physical characteristics, shear, flow, rheology, uranium

TABLE DES MATIERES

Remerciements	xvii
Résumé	xxiii
Abstract	xxi
Liste des figures	xvii
Liste des tableaux	xxiii
Introduction	1
1 Chapitre I : État de l'art	5
1.1 Caractéristiques physico-chimiques d'une poudre	6
1.1.1 Taille et distribution granulométrique	6
1.1.2 La forme	9
1.1.3 La porosité et la masse volumique.....	11
1.1.4 Les propriétés surfaciques	11
1.2 Techniques de mesures des propriétés rhéologiques	19
1.2.1 Mesures d'angles	19
1.2.2 Méthode de densité tassée	21
1.2.3 Rhéomètre.....	21
1.2.4 Cellules de cisaillement indirectes.....	23
1.2.5 Cellules de cisaillement directes.....	25
1.2.6 Test de compressibilité	36
1.2.7 Le testeur de poudre Sevilla	37
1.2.8 Analyseur de friction granulaire (ou Granular Friction Analyzer GFA)	38

1.2.9	Synthèse.....	39
1.3	Lien entre les caractéristiques physico-chimiques et les propriétés rhéologiques	39
1.3.1	Influence de la taille et de la forme des particules.....	39
1.3.2	Influence de l'humidité et de la température	43
1.3.3	Influence de l'énergie de surface	44
1.3.4	Influence sur le remplissage	44
1.4	Conclusion	45
2	Chapitre II : Matériels et méthodes	48
2.1	Équipements de caractérisation physique	48
2.1.1	Granulomètre voie sèche	48
2.1.2	Observation de la morphologie des particules.....	49
2.2	Équipements de mesures rhéologiques	49
2.2.1	Tests de mise en écoulement : passage d'un état statique à un état dynamique	50
2.2.2	Mesure de densité et compressibilité.....	54
2.2.3	Tests d'écoulement : régime dynamique	56
2.3	Étude préliminaire.....	59
2.3.1	Contraintes de manipulation.....	59
2.3.2	Intercomparaison des cellules de cisaillement : FT4 et Schulze	59
2.3.3	Influence de l'humidité.....	65
2.3.4	Protocole et enchainement des caractérisations rhéologiques des poudres d'UO ₂	67
2.4	Préparation et caractérisation des granulés	68
2.4.1	Granulation mécanique.....	68
2.4.2	Concassage et tamisage : FREWITT	70
2.5	Conclusion	72

3	Chapitre III : Influence de la granulométrie sur les propriétés rhéologiques	74
3.1	Préparation de poudres à différents taux de fines.	74
3.2	Mesures des propriétés de mise en écoulement	77
3.2.1	Densité aérée, densité tassée et compressibilité	77
3.2.2	Test de cisaillement	80
3.3	Mesure des propriétés d'écoulement	85
3.3.1	Test de perméabilité.....	85
3.3.2	Tests dynamiques : Variable Flow Rate (VFR).....	88
3.4	Conclusion	91
4	Chapitre IV : Influence de la morphologie sur l'écoulement	96
4.1	Présentation du dispositif de brassage : Le Turbula	96
4.1.1	Modification de la morphologie	97
4.1.2	Phénomène de sphéroïdisation	98
4.2	Modification de la morphologie des granulés : résultats rhéologiques.....	101
4.2.1	Mesures de compressibilité	101
4.2.2	Essais de cisaillement	102
4.2.3	Mesures dynamiques	107
4.3	Analyse microscopique du cisaillement.....	113
4.3.1	Dilatation	113
4.3.2	Estimation théorique des forces d'interactions.....	115
4.3.3	Estimation des forces d'interactions expérimentales.....	117
4.3.4	Synthèse.....	119
4.4	Discussion.....	119
5	Chapitre V : Application au procédé.....	124

5.1	Choix du procédé de modification de la poudre	124
5.1.1	La poudre de référence du procédé : la poudre broyée.....	125
5.1.2	Sphéroïdisation de la poudre broyée.....	125
5.2	Calcul de Janssen	127
5.3	Résultats rhéologiques	129
5.3.1	Test de suivi du comportement rhéologique.....	130
5.3.2	Passage de la trémie au moule de presse	130
5.3.3	Écoulement de la poudre dans le moule de presse.....	135
5.4	Synthèse	137
	Conclusion générale	139
	Références	145
	Annexe A : Tracé du cercle de Mohr	153
	Annexe B : Tensiomètre.....	156
	Glossaire.....	159

LISTE DES FIGURES

FIGURE 1 : PASTILLE ANNULAIRE.....	2
FIGURE 2 : SCHEMA DU PROCEDE ENVISAGE.....	3
FIGURE 3: DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE EN FREQUENCE (A) ET CUMULEE (B).	7
FIGURE 4: REPRESENTATIONS D'UNE DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE EN NOMBRE OU EN VOLUME.....	8
FIGURE 5 : DECOMPOSITION D'UNE PARTICULE [WADELL, 1932].	9
FIGURE 6 : PARTICULE DE SURFACE S DE MEME VOLUME QUE LA SPHERE DE SURFACE S.....	10
FIGURE 7 : ESTIMATION DES DIFFERENTES SPHERICITES ET ARRONDIS [POWERS, 1953].	10
FIGURE 8 : GEOMETRIE DU CONTACT ENTRE DEUX PARTICULES EN PRESENCE D'ASPERITES.....	15
FIGURE 9 : ÉQUATION DE YOUNG, MOUILLABILITE D'UNE GOUTTE SUR UNE SURFACE.....	18
FIGURE 10 : PRINCIPE DE L'AFM (EXTRAIT DE [BUTT, 2005]).	19
FIGURE 11 : MESURE DES ANGLES DE REPOS STATIQUE ET DYNAMIQUE.....	20
FIGURE 12 : MESURE DE L'ENERGIE EN FONCTION DE LA VITESSE DE ROTATION DE LA PALE [FREEMAN, 2007].	22
FIGURE 13 : MOUVEMENT DE LA PALE LORS DU TEST VFR [FREEMAN, 2007].	22
FIGURE 14 : MOUVEMENT DE LA PALE LORS DE LA MESURE DE L'ENERGIE SPECIFIQUE (SE) LORS DU TEST VFR.....	23
FIGURE 15 : TEST COMPRESSION UNIAXIALE : CONSOLIDATION-RUPTURE.....	23
FIGURE 16 : SCHEMA D'UNE CELLULE DE CISAILLEMENT BIAXIAL [SCHWEDES, 1990].	24
FIGURE 17 : CELLULE DE CISAILLEMENT TRIAXIALE : (A) STANDARD ET (B) « VRAIE » [SCHWEDES, 1990].....	24
FIGURE 18 : LA CELLULE DE JENIKE (A LA BASE, B L'ANNEAU ET C LE COUVERCLE).....	25
FIGURE 19 : LES DIFFERENTS ETATS DE CONSOLIDATION D'UNE POUDRE : A SURCONSOLIDEE, B SOUSCONSOLIDEE, C CONSOLIDEE.....	26
FIGURE 20 : REPRESENTATION DU LIEU D'ECOULEMENT [SCHULZE, 2011].	26
FIGURE 21 : REPRESENTATION DES CERCLES DE MOHR ET DU LIEU D'ECOULEMENT [SCHULZE, 2011].....	28
FIGURE 22 : CLASSIFICATION DE L'ECOULEMENT SELON JENIKE (EXTRAIT DE [SCHULZE, 2011]).....	29

FIGURE 23 : CELLULES DE CISAILLEMENT ROTATIONNEL : FT4 (A GAUCHE) ET SCHULZE (A DROITE).....	29
FIGURE 24 : SCHEMATISATION DES FORCES INTERPARTICULAIRES EN FONCTION DES DIFFERENTS PARAMETRES CARACTERISANT LE LIEU D'ECOULEMENT REPRESENTANT LA RUPTURE DU LIT DE POUDRE [TOMAS, 2003].	31
FIGURE 25 : SCHEMATISATION DES FORCES INTERPARTICULAIRES EN FONCTION DES DIFFERENTS PARAMETRES CARACTERISANT LE LIEU D'ECOULEMENT STATIONNAIRE [TOMAS, 2003].....	33
FIGURE 26 : CELLULE DE CISAILLEMENT : VARIATION DE LA CONTRAINTE DE CISAILLEMENT EN FONCTION DU DEPLACEMENT DE LA CELLULE : LIEU D'ECOULEMENT DE RUPTURE ET STATIONNAIRE.....	34
FIGURE 27 : PRINCIPE DE DILATANCE DE REYNOLDS.	34
FIGURE 28 : ESSAIS DE CISAILLEMENT : PHENOMENES D'INTERLOCKING ET DE FRICTION [SCHOFIELD, 1998- JULIANO, 2006].....	35
FIGURE 29 : COMPACTION D'UNE POUDRE COHESIVE (A) ET D'UNE POUDRE A ECOULEMENT LIBRE (B).	37
FIGURE 30 : (A) SCHEMA DU TESTEUR DE POUDRE SEVILLA. (B) POUDRE A ECOULEMENT LIBRE. (C) POUDRE COHESIVE [ZAFAR, 2015].	38
FIGURE 31: PRINCIPE DU GFA.	39
FIGURE 32 : EVOLUTION DU LIEU D'ECOULEMENT EN FONCTION POUR DIFFERENTS MELANGES GRANULOMETRIQUES (EXTRAIT DE [SHINOHARA, 2002]).....	41
FIGURE 33 : CONDITIONS DE REMPLISSAGE DES MOULES DE PRESSES [FREEMAN, 2009].	45
FIGURE 34 : GRANULOMETRE VOIE SECHE MASTERSIZER 3000 EN BAG.....	49
FIGURE 35 : DIFFERENTES CONFIGURATIONS DE LA CELLULE DE CISAILLEMENT DU FT4.	50
FIGURE 36 : CELLULE DE CISAILLEMENT DU FT4 [FREEMAN, 2009].	51
FIGURE 37 : FT4 (IMAGE FREEMAN TECHNOLOGY) ET PHOTOGRAPHIE DE L'EQUIPEMENT EN BAG	51
FIGURE 38 : MOUVEMENT DE LA PALE LORS DU CONDITIONNEMENT [FREEMAN, 2007].	52
FIGURE 39 : SYNOPTIQUE D'UN TEST DE MESURE DE CISAILLEMENT AU FT4 (AVEC σ_{PRE} LA CONTRAINTE DE PRECONSOLIDATION POUR L'ETAPE DE PRECISAILLEMENT).	53
FIGURE 40 : CELLULE DE CISAILLEMENT DE SCHULZE [SCHULZE, 2011].	54
FIGURE 41 : CELLULE DE SCHULZE ET PHOTOGRAPHIE DE L'EQUIPEMENT EN BAG.	54
FIGURE 42 : VOLUMENOMETRE.	55
FIGURE 43 : PROTOCOLE DU TEST DE COMPRESSIBILITE FT4.....	56
FIGURE 44 : SCHEMA DE PRINCIPE DU TEST DE PERMEABILITE FT4 [FREEMAN, 2007].	57

FIGURE 45 : PROTOCOLE DE MESURE D'UN TEST VFR (FT4).	58
FIGURE 46 : RECAPITULATIF DES DIFFERENTS VOLUMES ET GEOMETRIES DES CELLULES DE CISAILLEMENT FT4 ET SCHULZE.	60
FIGURE 47 : COMPARAISON DE LA PREPARATION DES TESTS POUR CHAQUE CELLULE DE CISAILLEMENT (FT4 ET SCHULZE).	61
FIGURE 48 : CELLULE DE SCHULZE : ARASEMENT MANUEL.	61
FIGURE 49 : CELLULE DE CISAILLEMENT FT4 : ARASEMENT [FREEMAN, 2007].	62
FIGURE 50 : COMPARAISON DES TESTS DE CISAILLEMENTS POUR LA CELLULE DE SCHULZE PAR RAPPORT A CELLE DU FT4 [FREEMAN, 2007- SCHULZE, 2011].	62
FIGURE 51 : MESURES DE CISAILLEMENT : DETERMINATION DE LA COHESION, DE L'ANGLE DE FROTTEMENT INTERNE ET DE L'INDICE D'ÉCOULEMENT POUR DEUX POUDRES UO ₂ DE REFERENCE (P.A : POUDRE UO ₂ VOIE SECHE ET P.B : POUDRE UO ₂ VOIE HUMIDE).	64
FIGURE 52 : ENCEINTE FERMEE SOUS HUMIDITE RELATIVE CONTROLEE AVEC COUPELLES EN ALUMINIUM.	65
FIGURE 53 : INFLUENCE DE L'HUMIDITE (11% ET 75%HR) SUR LA POUDRE D'UO ₂ VOIE SECHE (P.A) EN FONCTION DU TEMPS.	66
FIGURE 54 : PROTOCOLE DE MESURES RHEOLOGIQUES POUR LA CARACTERISATION DES POUDRES D'UO ₂ .	68
FIGURE 55 : PRINCIPE DE LA PRESSE ISOSTATIQUE : GRANULATION.	69
FIGURE 56 : DENSITE DU COMPRIME EN FONCTION DE LA PRESSION DE COMPACTION.	69
FIGURE 57 : COMPRIME CRU D'UO ₂ .	70
FIGURE 58 : FREWITT (EN BAG A GAUCHE)	71
FIGURE 59 : PROTOCOLE DE FABRICATION DE GRANULES D'UO ₂ .	72
FIGURE 60 : ÉVOLUTION DU TAUX DE FINES (POURCENTAGE MASSIQUE) EN FONCTION DU TEMPS LORS DU TAMISAGE D'UN LOT DE POUDRE.	74
FIGURE 61 : ZONES DES PRELEVEMENTS POUR LES 3 MESURES DE LA GRANULOMETRIE.	75
FIGURE 62 : DISTRIBUTIONS GRANULOMETRIQUES DES DIFFERENTS LOTS (GRANULOMETRE LASER VOIE SECHE) AVEC ΔDENSITE VOLUMIQUE = 1%.	76
FIGURE 63 : ÉVOLUTION DE LA DENSITE VOLUMIQUE CUMULEE EN FONCTION DU TAUX DE FINES POUR LES PARTICULES INFERIEURES A 100 μM.	77
FIGURE 64 : COMPRESSIBILITE EN FONCTION DE LA CONSOLIDATION (RHEOMETRE FT4).	79
FIGURE 65 : VARIATION DE L'INDICE DE CARR ET DE LA COMPRESSIBILITE (15 kPA AU FT4) EN FONCTION DU TAUX DE FINES.	80

FIGURE 66 : TRACE DES LIEUX D'ÉCOULEMENTS ET DES CERCLES DE MOHR POUR LES LOTS A0 (0% DE FINES EN BLEU) ET E100 (100% DE FINES EN ROUGE) POUR LES DIFFÉRENTES CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION 3, 6, 9 ET 15 KPA.	81
FIGURE 67 : FONCTIONS D'ÉCOULEMENT POUR LES DIFFÉRENTS LOTS (A 0%M, B 10%M, C 30%M, D 50%M ET E 100%M).	82
FIGURE 68 : VARIATION DE L'INDICE D'ÉCOULEMENT EN FONCTION DE LA QUANTITÉ DE FINES (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 KPA).	82
FIGURE 69 : ANGLE DE FROTTEMENT INTERNE EN FONCTION DU TAUX DE FINES DANS LA POUDRE (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 KPA).	84
FIGURE 70 : VARIATION DE LA COHESION EN FONCTION DES DIFFÉRENTS TAUX DE FINES (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 KPA).....	84
FIGURE 71 : VARIATION DE LA PERTE DE CHARGE ΔP EN FONCTION DE LA CONSOLIDATION NORMALE APPLIQUÉE SUR LE LIT DE POUDRE POUR LES DIFFÉRENTS LOTS.	86
FIGURE 72 : VARIATION DE LA PERMEABILITÉ k (cm^2) EN FONCTION DE LA CONSOLIDATION NORMALE APPLIQUÉE SUR LE LIT DE POUDRE POUR LES DIFFÉRENTS LOTS.	87
FIGURE 73 : PERMEABILITÉ EN FONCTION DE LA QUANTITÉ DE FINES (15 KPA).	88
FIGURE 74 : ÉVOLUTION DE L'ÉNERGIE NÉCESSAIRE À DÉPLACER LA POUDRE POUR DES VITESSES DE PALE DONNÉES : TEST VFR [Δ ÉNERGIE = +/-200 MJ].	89
FIGURE 75 : DÉTERMINATION DES DIFFÉRENTS INDICES MESURES (BFE, FRI, SI ET SE) EN FONCTION DE LA TENEUR EN FINES (%M).	90
FIGURE 76 : VARIATION DE LA PERMEABILITÉ, DE LA COMPRESSIBILITÉ, DU NBFÉ ET DE L'INDICE D'ÉCOULEMENT EN FONCTION DU TAUX DE FINES. (MESURES À $\sigma_{PRE} = 15$ KPA)	92
FIGURE 77 : LE MÉLANGEUR TURBULA.....	96
FIGURE 78 : IMAGE MEB : LES DIFFÉRENTES MORPHOLOGIES EN FONCTION DES PARAMÈTRES DU TURBULA (ÉTAT 1 : POUDRE INITIALE).....	98
FIGURE 79 : IMAGES MEB DES QUATRE POUDRES ÉTUDIÉES.	99
FIGURE 80 : DISTRIBUTIONS GRANULOMÉTRIQUES DES POUDRES (0 %M FINES SPHÉROÏDISEES AS0; 0 %M FINES NON-SPHÉROÏDISEES A0; 100 %M FINES SPHÉROÏDISEES ES100; 100 %M FINES NON-SPHÉROÏDISEES E100).	100
FIGURE 81 : MÉCANISMES DE CHANGEMENT DE TAILLE [SASTRY, 1973].	101
FIGURE 82 : MESURES DE LA COMPRESSIBILITÉ POUR DES POUDRES DE MORPHOLOGIES DIFFÉRENTES (GROSSES LISSES AS0, GROSSES RUGUEUSES A0, FINES LISSES ES100, FINES RUGUEUSES E100).....	102
FIGURE 83 : LIEUX D'ÉCOULEMENT À DIFFÉRENTES CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION 3, 6, 9 ET 15 KPA (GROSSES LISSES AS0, GROSSES RUGUEUSES A0, FINES LISSES ES100, FINES RUGUEUSES E100).	103

FIGURE 84 : ÉVOLUTION DES ANGLES DE FROTTEMENT AIF, AIFE ET AIFS EN FONCTION DE LA CONTRAINTE DE PRECONSOLIDATION POUR UNE POUDRE DONNÉE (EXEMPLE DES FINES LISSES ES100).	104
FIGURE 85 : VARIATION DES ANGLES DE FROTTEMENTS POUR DES MORPHOLOGIES ET DES GRANULOMETRIES DIFFÉRENTES (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 kPa).....	104
FIGURE 86 : VARIATION DE LA COHESION C EN FONCTION DE LA CONTRAINTE DE CONSOLIDATION MAJEURE Σ_1 (GROSSES LISSES AS0, GROSSES RUGUEUSES AS, FINES LISSES ES100, FINES RUGUEUSES E100).....	105
FIGURE 87 : TRACE DE LA FONCTION D'ÉCOULEMENT. (GROSSES LISSES AS0, GROSSES RUGUEUSES A0, FINES LISSES ES100, FINES RUGUEUSES E100).	107
FIGURE 88 : MESURES DE LA PERTE DE CHARGE ET DE LA PERMEABILITÉ EN FONCTION DE LA CONSOLIDATION DU LIT DE POUDRE. 109	
FIGURE 89 : MODIFICATION DE LA MORPHOLOGIE : TEST VFR.	110
FIGURE 90 : MESURES GRANULOMÉTRIQUES DES GRANULES LISSES ($> 100 \mu\text{m}$) AVANT ET APRES LE TEST DE VFR.	112
FIGURE 91 : MESURES GRANULOMÉTRIQUES DES GRANULES LISSES ($< 100 \mu\text{m}$) AVANT) ET APRES LE TEST DE VFR.	112
FIGURE 92 : VARIATION DE LA CONTRAINTE DE CISAILLEMENT EN FONCTION DU DÉPLACEMENT DE LA CELLULE DE CISAILLEMENT POUR UNE CONTRAINTE DE CONSOLIDATION A 9 kPa. (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 kPa).....	114
FIGURE 93 : VARIATION DU RAPPORT (τ/σ) EN FONCTION DU DÉPLACEMENT DE LA CELLULE DE CISAILLEMENT POUR UNE CONTRAINTE DE CONSOLIDATION A 9 kPa. (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 kPa).....	114
FIGURE 94 : VARIATION DU RAPPORT (τ/σ) AU NIVEAU DU PIC ET AU NIVEAU DU PLATEAU POUR CHAQUE POUDRE POUR UNE CONTRAINTE DE CONSOLIDATION A 9 kPa. (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 kPa).....	115
FIGURE 95 : LES FORCES D'INTERACTIONS ENTRE DES PARTICULES D' UO_2 (DISTANCE INTERPARTICULAIRE DE 0,3 nm) POUR DES RUGOSITÉS DIFFÉRENTES ET EN FONCTION DE LA TAILLE DES PARTICULES (COMPARÉES AU POIDS).....	116
FIGURE 96 : SCHEMATISATION DE LA DÉFORMATION ENTRE DEUX PARTICULES.	118
FIGURE 97 : SCHEMA DE PRINCIPE ILLUSTRANT LES POINTS DE CONTACTS EN FONCTION DE LA RUGOSITÉ.	120
FIGURE 98 : RECAPITULATIF DES RESULTATS RHEOLOGIQUES DES POUDRES A0, AS0, E100 ET ES100.	121
FIGURE 99 : DISTRIBUTION GRANULOMÉTRIQUE DE LA POUDRE BROYÉE AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION	125
FIGURE 100 : IMAGE MEB : MORPHOLOGIE DES GRANULES AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION.	126
FIGURE 101 : MESURES DE POROSIMÉTRIE MERCURE POUR LE MÉLANGE BROYÉ.....	127
FIGURE 102: LES FORCES S'EXERÇANT SUR LA COUCHE CYLINDRIQUE DE HAUTEUR DZ.....	128
FIGURE 103 : ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE DE CONSOLIDATION EN FONCTION DE LA PROFONDEUR (MODELE JANSSEN).....	129

FIGURE 104 : COMPRESSIBILITE DE LA POUDRE POUR LES DIFFERENTS TESTS RHEOLOGIQUES A UNE CONTRAINTE DE PRECONSOLIDATION DE 15 KPa : (1) AVANT (2) APRES LA PERMEABILITE ET AVANT LE VFR, (3) APRES LE VFR.	130
FIGURE 105 : FONCTIONS D'ÉCOULEMENT DE LA POUDRE BROYÉE AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION (ÉCART-TYPE DES CONTRAINTES $\approx 10\%$).	131
FIGURE 106 : COHESION DE LA POUDRE BROYÉE AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION	132
FIGURE 107 : LES ANGLES DE FROTTEMENTS DE LA POUDRE BROYÉE AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION. (CONTRAINTES DE PRECONSOLIDATION DE 15 KPa)	132
FIGURE 108 : REGLETTE D'ARNOLD (A GAUCHE) ET REGLETTE D'ARNOLD ANNULAIRE (A DROITE).	133
FIGURE 109 : TRACE DE L'INTERSTICE E (MOYENNE DE TROIS MESURES) EN FONCTION DU FACTEUR D'ÉCOULEMENT FI A 15 KPa (REGLETTE ARNOLD MODIFIÉE).	135
FIGURE 110 : PERMEABILITE DE LA POUDRE BROYÉE AVANT ET APRES SPHEROÏDISATION (POUR 1 KPa ET 15 KPa) [ÉCART-TYPE $\approx 15\%$].	136
FIGURE 111 : ÉVOLUTION DE L'ÉNERGIE TOTALE PAR UNITE DE MASSE DURANT LE TEST VFR (AVEC UN ÉCART-TYPE $\approx 3 \text{ MJ}\cdot\text{g}^{-1}$).	137
FIGURE 112 : CONTRAINTES SUR UN PLAN INCLINE.	153
FIGURE 113 : REPRESENTATION GRAPHIQUE DU CERCLE DE MOHR ET DES CONTRAINTES APPLIQUÉES SUR LE MILIEU GRANULAIRE.	155
FIGURE 114 : DETERMINATION GRAPHIQUE DE L'ÉNERGIE DE SURFACE DISPERSIVE DU SOLIDE ET L'ÉNERGIE DE SURFACE POLAIRE DU SOLIDE.	158

LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1 : CLASSIFICATION DE L'ÉCOULEMENT DES POUDRES BASEE SUR L'ANGLE DE REPOS, SELON CARR [CARR, 1965].	20
TABLEAU 2 : APTITUDE A L'ÉCOULEMENT DE LA POUDRE D'UO ₂ OBTENUE PAR VOIE SECHE A 11 ET 75 % HR.	66
TABLEAU 3 : DIAMETRES CARACTERISTIQUES EN FONCTION DE LA TENEUR EN FINES (ECART-TYPE DE DV ≈ 20 μM).	76
TABLEAU 4 : MESURES DE DENSITE ET COMPRESSIBILITE (FT4)	78
TABLEAU 5 : RECAPITULATIF DES RESULTATS DES TESTS DE CISAILLEMENT OBTENUS POUR LES POUDRES A0, B10, C30, D50 ET E100.	83
TABLEAU 6 : COMPRESSIBILITE A UNE CONTRAINTE DE CONSOLIDATION DE 15 KPA AVANT ET APRES LE TEST DE PERMEABILITE.	88
TABLEAU 7 : COMPRESSIBILITE A UNE CONTRAINTE DE CONSOLIDATION DE 15 KPA AVANT ET APRES LE TEST DE VFR.	91
TABLEAU 8 : LES DIFFERENTS PARAMETRES DE BRASSAGE DES GRANULES.	97
TABLEAU 9 : RESULTATS DES TESTS DE CISAILLEMENT.	106
TABLEAU 10 : INDICES DETERMINES PAR VFR.	111
TABLEAU 11 : DETERMINATION DES FORCES THEORIQUES ET NOMBRE DE BOND POUR DIFFERENTES TAILLES ET MORPHOLOGIES DE PARTICULES (AVEC LE DIAMETRE DES PARTICULES D _P =2R ET LE DIAMETRE DES ASPERITES D _{ASP} = 2.R _{ASP}).	117
TABLEAU 12 : DETERMINATION DU FACTEUR DE DEFORMATION ELASTIQUE-PLASTIQUE K.	118
TABLEAU 13 : DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA RESISTANCE A LA TRACTION RT ₀ , DE LA FORCE DE COHESION FH0 ET DU NOMBRE DE BOND EXPERIMENTAL.	118
TABLEAU 14 : DETERMINATION DU COEFFICIENT DE DEFORMATION ELASTIQUE-PLASTIQUE K (ÉQUATION 33) POUR LE MELANGE COBROYE D'UO ₂ .	133
TABLEAU 15 : DIFFERENTES TAILLES DE TROUS POUR LA REGLETTE D'ARNOLD MODIFIEE (ANNULAIRE).	134
TABLEAU 16 : RESULTATS DE LA REGLETTE D'ARNOLD MODIFIEE (ANNULAIRE).	134
TABLEAU 17 : MESURE DES DIFFERENTS INDICES NBF, SI, FRI ET SE.	137
TABLEAU 18 : RESULTATS OBTENUS AU TENSIOMETRE POUR DIFFERENTES POUDRES D'OXYDE D'URANIUM.	158

INTRODUCTION

L'énergie nucléaire apporte une contribution essentielle à la production d'électricité mondiale. Les réacteurs nucléaires mettent en œuvre des combustibles nucléaires qui produisent de la chaleur grâce aux réactions de fission et celle-ci est ensuite convertie en électricité.

Les réacteurs nucléaires actuellement en fonctionnement en France sont des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Le combustible est constitué de pastilles en céramique de géométrie cylindrique composées de dioxyde d'uranium (U enrichi entre 3 et 5% de ^{235}U) ou d'un mélange de dioxyde d'uranium appauvri et de dioxyde de plutonium. Ce dernier type de combustible, qui permet de recycler une partie du plutonium produit dans le réacteur, est appelé MOX (Mixed OXide) [Guérin, 2008].

Pour le futur, les réacteurs nucléaires pressentis, dits de quatrième génération, pourraient être à neutrons rapides et refroidis au sodium (RNR-Na). Ce type de réacteur est prévu de fonctionner avec du combustible mixte à base d'oxyde d'uranium et de plutonium, avec pour but une utilisation optimisée de la matière fissile et fertile ainsi qu'un recyclage maximal du plutonium. Le sodium est utilisé comme fluide caloporteur pour ses bonnes propriétés thermiques, sa faible activation par les neutrons ainsi que sa bonne compatibilité avec les aciers (faible corrosion) [Zaetta, 2014]. Le réacteur RNR-Na de quatrième génération a pour but de fonctionner en mode iso-générateur, c'est-à-dire que la production de matière fissile serait équivalente à la consommation.

Le combustible prévu pour les RNR-Na de quatrième génération est un combustible mixte comme le MOX des REP, mais il présente des caractéristiques spécifiques qui le distinguent nettement de ce dernier. En particulier, les teneurs en plutonium sont plus élevées (jusqu'à 30% massique) et le plutonium pourra être multi-recyclé. La géométrie des pastilles serait annulaire (Figure 1) et la microstructure homogène. Dans les conditions de fonctionnement d'un RNR, c'est-à-dire à des températures comprises entre 800 et plus de 2000 °C, le combustible d'oxyde mixte irradié subit un gonflement. Il a donc été jugé essentiel dans la conception du combustible de disposer d'un volume vide dans l'aiguille combustible pour permettre au combustible oxyde de gonfler sans trop solliciter la gaine. De plus, le cœur d'une pastille pleine peut atteindre une température supérieure à 2000 °C ce qui induit un transport de matière du fait du gradient thermique, jusqu'à l'apparition d'un trou central. Les concepteurs des réacteurs RNR de quatrième génération ont donc étudié la conception du combustible pour diminuer fortement la probabilité d'initiation d'accident de fusion généralisée du cœur mais aussi pour en maîtriser les conséquences en éliminant pratiquement le risque de criticité. Dans cette optique, la géométrie des pastilles proposée est annulaire et à puissance linéique identique, la température centrale de la pastille est d'environ 200 à 300 °C inférieure à celle du centre d'une pastille pleine. Ainsi, grâce à cette configuration, il est possible de diminuer fortement la température au cœur de l'oxyde et d'atteindre les objectifs assignés en termes de puissance linéique, de taux de combustion et de respect des critères de dimensionnement, en particulier vis-à-vis de la marge par rapport à la température de fusion du combustible [Pelletier, 2016].

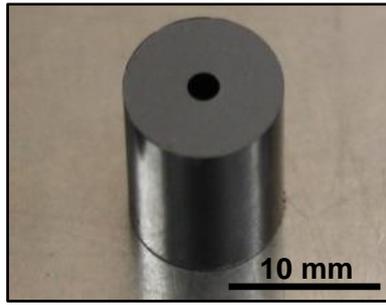


Figure 1 : Pastille annulaire.

Le combustible des RNR-Na de quatrième génération étant différent du combustible MOX des REP, il est nécessaire de définir un procédé de fabrication adapté. Notamment, afin d'atteindre la microstructure homogène recherchée (taille maximale des amas de plutonium de l'ordre de 30 microns), il est envisagé de mélanger les poudres UO_2 et PuO_2 par cobroyage (Figure 2). Cette étape diffère de la fabrication du MOX des REP pour laquelle les constituants mélangés par double dilution, conduisant à une microstructure hétérogène [Guérin, 2008]. Ce procédé doit permettre de conduire à un combustible capable, non seulement de répondre aux exigences des spécifications géométriques, mais aussi aux contraintes associées à l'utilisation de fortes teneurs en plutonium ainsi qu'à la mise en œuvre de plutonium multi-recyclé, très pénalisante d'un point de vue radiologique.

Dans le procédé envisagé, la poudre cobroyée présente de mauvaises propriétés d'écoulement, incompatibles avec une mise en forme directe. En effet, la forme annulaire des pastilles nécessite une géométrie des moules de presse pénalisante car l'espace entre le bord de l'aiguille centrale et le bord de la matrice est d'environ 4 mm. Ceci est d'autant plus problématique que l'on souhaite éviter une rectification diamétrale des pastilles après frittage. Ainsi, le remplissage des moules de presse doit-il être homogène et reproductible dans des conditions de fabrication industrielles. Des solutions connues sont utilisées pour la fabrication des pastilles UO_2 des REP afin d'améliorer la coulabilité de la poudre, comme la granulation mécanique. Cependant, ce type d'opération est assez lourd à réaliser et conduirait dans le cas d'un combustible mixte à la production de poussières chargées en plutonium pouvant se déposer dans certaines zones du système, avec un impact radiologique significatif, particulièrement dans le cas de l'utilisation de Pu multi-recyclé.

Ces travaux de thèses visent donc à proposer une étape qui va modifier les propriétés intrinsèques de la poudre broyée et permettre un remplissage reproductible des moules de presse en géométrie annulaire. Cette étape doit être simple à réaliser et peu pénalisante radiologiquement.

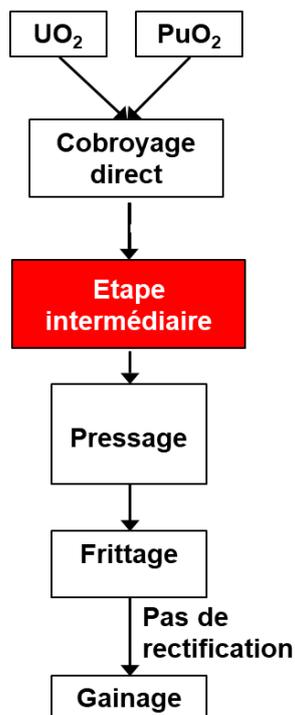


Figure 2 : Schéma du procédé envisagé.

D'un point de vue expérimental, les essais réalisés dans le cadre de cette étude ont été faits avec de l' UO_2 , et non avec des mélanges $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$. La fraction élevée de poudre UO_2 (environ 70%) et l'effet du broyage permettent en effet de considérer l' UO_2 comme suffisamment représentatif de mélanges $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ en première approche. L'étude sur la poudre d' UO_2 est réalisée au sein de l'ICPE Laboratoire UO_2 qui permet de travailler sur de l'uranium non irradié. La réalisation d'expérimentations sur des mélanges réels ($\text{UO}_2\text{-PuO}_2$) aurait été beaucoup plus contraignante car l'utilisation de PuO_2 nécessiterait de travailler au sein d'une Installation Nucléaire de Base (INB) pour des raisons de sûreté et de sécurité. Ceci aurait entraîné une forte limitation des quantités de matière mises en œuvre, avec un risque de manque de représentativité des résultats. Cependant, l'optimisation du protocole de mesures rhéologiques (tests destructifs ou non, séquence optimale des tests, etc.) sera étudiée, à la fois pour optimiser les quantités d' UO_2 utilisées, mais également dans l'optique de futures études mettant en œuvre le PuO_2 .

L'objectif principal de l'étude vise ainsi à **identifier les caractéristiques physiques** de la poudre d' UO_2 lui conférant une bonne coulabilité et compatibles avec le procédé industriel. À terme, les résultats serviront de base pour **identifier les opérations** permettant d'atteindre les caractéristiques visées de la poudre de référence afin de définir l'étape « intermédiaire » (Figure 2).

Pour répondre à cette problématique, plusieurs points seront traités :

- La minimisation de la taille d'échantillon à caractériser rhéologiquement, tout en restant représentatif de l'ensemble de la poudre, ainsi que la mise en place d'une séquence optimale des tests rhéologiques.

- Une étude à effets séparés pour des études de coulabilité sur des poudres fines et cohésives.
- La compatibilité de l'étape intermédiaire proposée avec les contraintes radiologiques associées aux procédés de fabrication de combustibles nucléaires.

Ce manuscrit s'articule en cinq parties :

Le *chapitre 1* établit un état de l'art : il met en avant les méthodes de caractérisation physique d'un milieu granulaire et celles utilisées pour mesurer ses propriétés rhéologiques. Il regroupe aussi les données de la littérature pour différentes poudres cohésives inertes (c'est-à-dire non radioactives). Ceci a permis de faire le point sur les paramètres de premier ordre influençant la rhéologie d'une poudre.

Le *chapitre 2* présente les techniques expérimentales de caractérisations physiques et rhéologiques utilisées dans ce travail. Il justifie le choix d'une étude à effets séparés à partir de granulés de poudre d' UO_2 et décrit le protocole de mesures rhéologiques mis en œuvre afin de minimiser les quantités de poudres utilisées.

Le *chapitre 3* décrit l'influence de la granulométrie, paramètre de premier ordre. Par un procédé de tamisage, deux classes granulométriques sont obtenues : les fines particules (inférieures à $100\ \mu\text{m}$) et les grosses particules (supérieures à $100\ \mu\text{m}$), puis des mélanges de ces deux classes sont réalisés en faisant varier les proportions de chacune. Cette étude permet ainsi d'identifier le rôle que jouent les fines sur le comportement rhéologique de poudres d' UO_2 .

Le *chapitre 4* présente l'influence du second paramètre de premier ordre : la morphologie (plus particulièrement l'état de surface). En fonction des conditions de brassage, différents types de morphologies de poudres ont pu être obtenus afin de comprendre l'impact de cette caractéristique sur les propriétés rhéologiques.

Le *chapitre 5* établit un bilan de l'importance de chacun des paramètres étudiés dans les chapitres 3 et 4. Des caractéristiques cibles précédemment identifiées seront mis en œuvre sur la poudre de référence du procédé, qui est la poudre d' UO_2 broyée. Enfin l'impact de ces modifications sur le comportement rhéologique de la poudre d' UO_2 broyée sera également détaillé.

CHAPITRE I : ÉTAT DE L'ART

1.1	Caractéristiques physico-chimiques d'une poudre	6
1.1.1	Taille et distribution granulométrique	6
1.1.2	La forme	9
1.1.3	La porosité et la masse volumique.....	11
1.1.4	Les propriétés surfaciques	11
1.2	Techniques de mesures des propriétés rhéologiques	19
1.2.1	Mesures d'angles	19
1.2.2	Méthode de densité tassée	21
1.2.3	Rhéomètre.....	21
1.2.4	Cellules de cisaillement indirectes.....	23
1.2.5	Cellules de cisaillement directes.....	25
1.2.6	Test de compressibilité	36
1.2.7	Le testeur de poudre Sevilla	37
1.2.8	Analyseur de friction granulaire (ou Granular Friction Analyzer GFA)	38
1.2.9	Synthèse.....	39
1.3	Lien entre les caractéristiques physico-chimiques et les propriétés rhéologiques	39
1.3.1	Influence de la taille et de la forme des particules.....	39
1.3.2	Influence de l'humidité et de la température	43
1.3.3	Influence de l'énergie de surface	44
1.3.4	Influence sur le remplissage	44
1.4	Conclusion	45

Chapitre I : État de l'art

Ce premier chapitre introduit le contexte de l'étude et la problématique qui en découle. Il propose ensuite un état de l'art : dans un premier temps une revue est réalisée sur les différentes caractéristiques physico-chimiques d'une poudre puis, dans un second temps, les différentes méthodes de mesure des propriétés rhéologiques seront présentées ainsi que les connaissances sur le lien entre les caractéristiques physico-chimiques de la poudre et ses propriétés rhéologiques.

1.1 CARACTERISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUES D'UNE POUDRE

Une poudre est un ensemble de grains qui peut être caractérisé par ses propriétés physico-chimiques telles que la forme des particules, leur distribution granulométrique, leur surface spécifique, leur masse volumique, leurs propriétés surfaciques [Guyon, 1994]. Tous ces paramètres vont influencer les forces interparticulaires qui lient les particules entre elles et conditionner le comportement rhéologique macroscopique du milieu granulaire.

1.1.1 Taille et distribution granulométrique

1.1.1.1 Définitions

1.1.1.1.1 Taille d'un grain

Si la notion de diamètre est claire pour un grain de forme sphérique, elle devient ambiguë pour un grain non sphérique. L'introduction de la notion de diamètre équivalent pour une particule nécessite d'assimiler cette dernière à une sphère. Il existe différents types de diamètres équivalents [Saleh, 2009] :

- en volume d_v : diamètre d'une sphère de même volume que la particule,
- en surface d_s : diamètre d'une sphère de même surface que la particule,
- en périmètre d_{per} : diamètre d'une sphère de même périmètre que la particule,
- en surface spécifique d_{sv} : diamètre d'une sphère de même surface spécifique que la particule.

D'autres mesures de diamètre peuvent être utilisées, tel que le diamètre de Féret d_F : distance entre deux tangentes parallèles à des côtés opposés de la particule. On en déduit d_{Fmax} (respectivement d_{Fmin}) pour la distance maximale (respectivement minimale) entre les deux tangentes parallèles.

1.1.1.1.2 La distribution granulométrique

La poudre est un ensemble de grains représenté par une distribution de leurs tailles. La distribution granulométrique, quantifiée en nombre ou en volume, peut se représenter selon la distribution en fréquence ou cumulée (Figure 3).

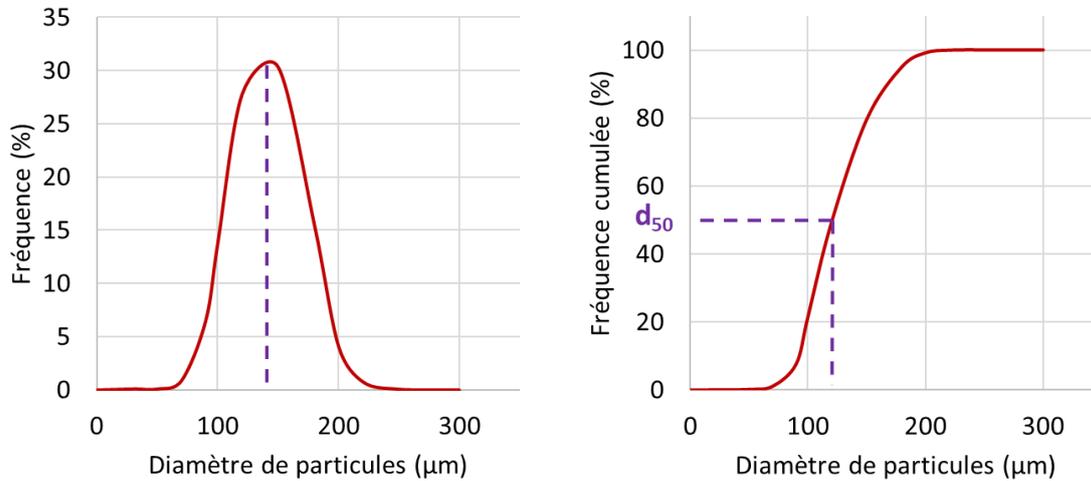


Figure 3: Distribution granulométrique en fréquence (a) et cumulée (b).

Dans une distribution granulométrique, on détermine :

- le mode, qui correspond au diamètre de fréquence maximale,
- la médiane (d_{50}), qui est le diamètre partageant la distribution granulométrique en deux parties de même aire.

Par ailleurs, si on dispose de deux types de particules également réparties en nombre, avec des fines ayant un diamètre moyen de 40 µm et des grosses à 110 µm, la distribution granulométrique en nombre indique deux pics de même amplitude. Cette distribution est très différente de la distribution granulométrique en volume qui permet de représenter la répartition en volume des deux populations (Figure 4).

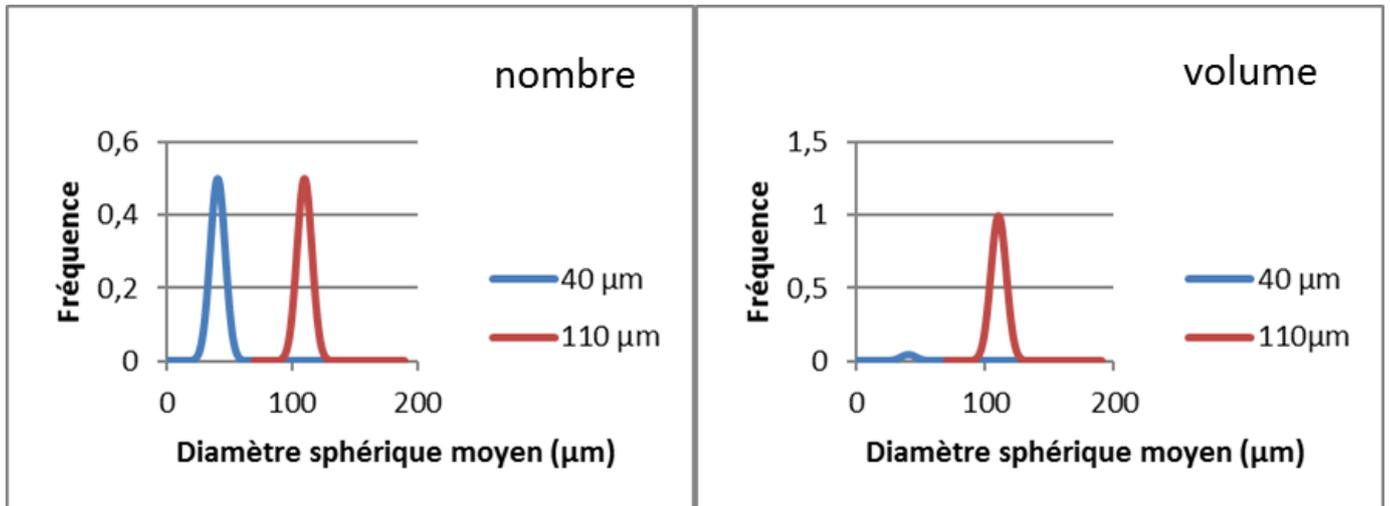


Figure 4: Représentations d'une distribution granulométrique en nombre ou en volume.

1.1.1.1.3 Le diamètre moyen

On distingue différents diamètres moyens : par exemple en nombre tout en prenant en compte le diamètre équivalent en volume dv ; ou en nombre avec le diamètre équivalent en surface ; ou encore en volume avec le diamètre équivalent en surface [Allen, 1997- Xu, 2000]. De manière générale le diamètre moyen est défini par la relation suivante tout en prenant en compte deux paramètres p et q (représentatifs de la grandeur choisie) :

$$\bar{D}(p,q) = \left[\frac{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^p n(D) dD}{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^q n(D) dD} \right]^{\frac{1}{p-q}} \quad \text{Équation 1}$$

Avec :

$p \neq q$ et $p, q = 1, 2, 3, \text{ etc.}$

$n(D)$ la densité de probabilité en nombre des particules de diamètre D ,

$\bar{D}(1,0)$ ($p=1$ et $q=0$) le diamètre moyen en nombre,

$\bar{D}(2,0)$ le diamètre moyen surfacique,

$\bar{D}(3,0)$ le diamètre moyen volumique.

À la différence du diamètre moyen en nombre, le diamètre moyen volumique donne plus de poids aux particules de grande taille.

1.1.1.2 Moyens de caractérisation associés

Parmi les différentes techniques de mesures on distingue : le tamisage, l'analyse d'images ou la granulométrie laser.

Le tamisage permet la séparation en taille de la poudre en la faisant passer à travers un ou plusieurs tamis d'ouvertures de maille connues. Cette méthode est peu coûteuse, mais peu précise car différents paramètres peuvent influencer les résultats comme le mouvement des tamis (vitesse, amplitude, orientation, durée) qui peut former des agglomérats ou casser ceux qui sont fragiles. Il n'est d'autre part pas possible de caractériser par tamisage des particules de très petites tailles (moins de quelques dizaines de microns).

L'analyse d'image (optique et électronique (MEB)) permet d'observer la taille, mais aussi la forme des particules en deux dimensions. Cette méthode est cependant très limitée par la préparation de l'échantillon car les particules peuvent se chevaucher et la prise d'essai est également très faible et donc l'échantillon n'est pas forcément représentatif du lot entier.

La granulométrie laser consiste à envoyer sur des particules de poudre dispersées un faisceau incident entraînant la formation d'une figure de diffraction du faisceau. L'analyse de cette figure par la théorie de Mie [Kleitz, 2016] permet d'en déduire la distribution granulométrique. Il existe différents modes de dispersion de la poudre (en voie sèche ou en voie liquide) nécessitant de connaître les indices optiques des poudres.

1.1.2 La forme

Les particules peuvent avoir différentes formes (anguleuses, lamellaires, etc.) pouvant être caractérisées par différents paramètres :

- La notion d'arrondi ζ est introduite par Wadell [Wadell, 1932] :

$$\zeta = \frac{\int_s r_c \cdot dS}{A_s \cdot R} \quad \text{Équation 2}$$

Avec :

r_c le rayon de courbure des arrêtes,

R le rayon de la plus grande sphère inscrite dans la particule (Figure 5),

A_s l'aire de la surface du grain.

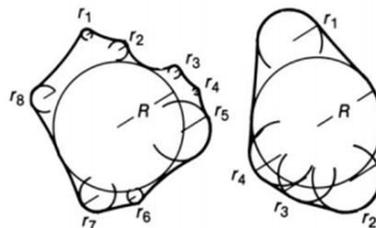


Figure 5 : Décomposition d'une particule [Wadell, 1932].

L'arrondi est une mesure de l'état de surface microscopique de la particule. Pour les particules lisses, l'arrondi est équivalent à 1. Plus une particule est rugueuse, plus l'arrondi diminuera. Pour un arrondi petit (proche de 0), on en déduit que la surface est très rugueuse. Ainsi, l'arrondi est associé aux phénomènes de verrouillage et de friction [Guo, 2015].

- Le facteur de forme caractérise l'écart de la géométrie du grain à une forme de référence. La sphère est fréquemment prise comme référence, Wadell [Wadell, 1932] et on définit ainsi le facteur de sphéricité :

$$\text{facteur de sphéricité} = \frac{\text{surface de la sphère de même volume}}{\text{surface réelle de la particule}} \quad \text{Équation 3}$$

Si le facteur vaut 1, la particule considérée est une sphère.

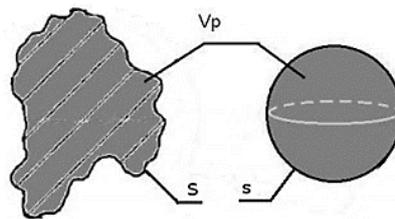


Figure 6 : Particule de surface S de même volume que la sphère de surface s .

Powers [Powers, 1953] propose de résumer la forme d'une particule par ces deux paramètres (Figure 7) : la sphéricité et l'arrondi.

Roundness classes	Very Angular	Angular	Sub-angular	Sub-rounded	Rounded	Well Rounded
High Sphericity						
Low Sphericity						
Roundness indices	0.12 to 0.17	0.17 to 0.25	0.25 to 0.35	0.35 to 0.49	0.49 to 0.70	0.70 to 1.00

Figure 7 : Estimation des différentes sphéricités et arrondis [Powers, 1953].

Ces différents paramètres pourront être utilisés pour la caractérisation morphologique de nos poudres. La forme et l'état de surface microscopique d'une particule peuvent être évalués par analyse d'image grâce un granulomorphomètre (pour des mesures quantitatives) ou par microscopie optique et/ou électronique à balayage (pour des mesures qualitatives et comparatives).

1.1.3 La porosité et la masse volumique

Une poudre, constituée d'une population de grains, présente deux types de porosité : interparticulaire et intraparticulaire.

La masse volumique « vraie » de la poudre est donnée par la relation [Saleh, 2009] :

$$\rho_s = \frac{\text{Masse solide}}{\text{Volume de solide}} \quad \text{Équation 4}$$

Le volume « vrai » de la poudre (ou volume de solide) est le volume sans les porosités inter et intraparticulaires. Il peut être mesuré par pycnométrie à hélium.

La pycnométrie à hélium est basée sur le déplacement d'un gaz entre différentes chambres (pycnomètre à déplacement de gaz). Elle permet de mesurer le volume réel (hors porosité fermée) d'un échantillon massif ou pulvérulent, de forme régulière ou irrégulière, de masse connue et d'en déduire ainsi la masse volumique.

Le volume poreux interparticulaire peut être déterminé par porosimétrie à mercure. La masse volumique apparente d'une particule au sein du lit de poudre est donnée par la relation [Saleh, 2009] :

$$\rho_p = \frac{\text{Masse solide}}{\text{Volume de particule (solide+porosité intraparticulaire)}} \quad \text{Équation 5}$$

On peut alors définir la masse volumique apparente du lit de poudre [Saleh, 2009] :

$$\rho_{app} = \frac{\text{Masse solide}}{\text{Volume du lit}} \quad \text{Équation 6}$$

A partir du volume des particules et du volume de vide dans un lit de poudre (Volume poreux interparticulaire), le volume du lit de poudre est donc :

$$\text{Volume du lit} = \text{Volume des particules} + \text{Volume poreux}_{\text{interparticulaire}} \quad \text{Équation 7}$$

1.1.4 Les propriétés surfaciques

Lors d'un remplissage, les grains sont en contact entre eux mais aussi avec les parois du contenant. Ces différents types d'interaction, résultant de forces d'adhésion et de forces de friction, vont gouverner l'écoulement de la poudre.

Les forces d'adhésion sont les forces qui s'appliquent entre deux matériaux différents, tels qu'une particule et la surface du contenant par exemple. Dans le cas particulier où les deux matériaux sont de même nature, les forces d'adhésion sont appelées forces de cohésion [Goalard, 2005]. Le terme d'adhésion est ici général, il englobe toutes les forces, dont la cohésion. Les forces de cohésion seront déterminées par des méthodes telles que les mesures de cisaillement.

Les forces des frictions sont des forces dues à la forme et à la rugosité des surfaces.

1.1.4.1 La surface spécifique

La surface spécifique d'un lit de poudre est la surface développée par unité de masse ou de volume. Elle peut être mesurée par adsorption de gaz. La méthode BET (Brunauer, Emmet et Teller), par exemple, permet de déterminer la surface spécifique à partir des courbes d'adsorption.

Si on suppose un modèle simple : des particules sphériques de même taille et de même masse volumique. La surface spécifique S_s d'une particule sphérique et non poreuse est équivalente à :

$$S_s = \frac{A_s}{m} = \frac{A_s}{V \cdot \rho_p} = \frac{4 \cdot \pi \cdot R^2}{\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R^3 \cdot \rho_p} = \frac{3}{R \cdot \rho_p} \quad \text{Équation 8}$$

Avec :

S_s la surface spécifique ($\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$)

A_s la surface totale (m^2)

m la masse de la particule (kg),

V le volume de la particule (m^3)

R le rayon de la particule (m)

ρ_p la masse volumique « vraie » de la particule ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$),

On peut en déduire que la surface spécifique dépend de la taille des particules. Plus la taille des particules est grande, plus la surface spécifique diminue. Ce modèle simple n'est pas exactement représentatif d'une poudre réelle (particules de différentes tailles avec des rugosités différentes), mais permet d'avoir une idée de l'influence de la taille sur la surface spécifique.

Santamarina [Santamarina, 2002] a étudié l'influence de la forme sur la surface spécifique : la surface spécifique dépend ainsi également de la forme des particules. Plus une particule s'éloigne d'une forme sphérique, plus la surface spécifique augmente.

1.1.4.2 Les forces s'exerçant sur les particules

Pour les milieux granulaires secs, les principales forces agissant sur les particules sont [Castellanos, 2005] :

- la force gravitationnelle, liée au poids des particules,
- les forces électrostatiques qui sont présentes lorsque la surface des particules est chargée,
- les forces de Van der Waals (VdW) liées aux interactions au niveau moléculaire.

1.1.4.2.1 La force gravitationnelle

La force gravitationnelle dépend de la taille et de la masse volumique vraie de la particule. Cette force, contrairement aux précédentes, n'est pas une force de cohésion interparticulaire. Pour un grain supposé sphérique, cette force s'exprime selon la formule :

$$F_G = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R^3 \cdot \rho_p \cdot g \quad \text{Équation 9}$$

Avec :

ρ_p la masse volumique apparente de la particule ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$),

R le rayon de la particule (m),

g l'intensité de pesanteur ($\text{N} \cdot \text{kg}^{-1}$),

1.1.4.2.2 Les forces électrostatiques

Les forces électrostatiques s'appliquent entre deux corps chargés [Seville, 2012], chacun d'eux exerçant une force électrostatique sur l'autre :

$$F_{\text{électrostatique}} = \frac{|q_1 \cdot q_2|}{4\pi \cdot \varepsilon \cdot \varepsilon_v \cdot D^2} \quad \text{Équation 10}$$

Avec :

ε la permittivité relative du milieu ($\text{F} \cdot \text{m}^{-1}$),

ε_v la permittivité du vide ($\text{F} \cdot \text{m}^{-1}$),

q la charge de la particule (C),

D la distance entre les corps chargés (m).

Si q_1 et q_2 sont de même signe alors la force est répulsive. Si q_1 et q_2 ont des signes opposés, les corps auront tendance à s'attirer. Les forces électrostatiques peuvent donc influencer la cohésion d'une poudre.

1.1.4.2.3 Les forces de Van der Waals

Les forces de Van der Waals sont présentes pour tout type de matériau [Gerschel, 1995]. Elles sont la combinaison de différentes interactions intermoléculaires :

- les forces de dispersion de London qui induisent une tension ou énergie de surface dite dispersive γ_S^d ,

- les forces dipolaires de Keesom qui induisent une tension ou énergie de surface dite polarisable γ_S^p ,
- les forces de polarisation de Debye.

Parmi ces trois forces, les forces de London sont prédominantes. De plus, elles ne dépendent pas des propriétés moléculaires, c'est pourquoi on peut dire que les forces de Van der Waals sont présentes quel que soit le matériau. La tension de surface dispersive γ_S^d prédomine donc sur la tension de surface polarisable γ_S^p .

Les forces de Van der Waals dépendent fortement de la distance entre les particules. Elles s'expriment de manière générale entre deux particules sphériques de même taille [Séville, 2000] :

$$F_{VdW} = \frac{H_A R}{12 z_0^2} \quad \text{Équation 11}$$

Avec :

R le rayon d'une particule (m),

z_0 la distance séparant deux particules (m),

H_A la constante de Hamaker (J).

H_A est appelée constante de Hamaker ou constante de Lifshitz. Elle diffère selon que l'interaction se fait entre deux particules ou entre une particule et une surface.

Généralement, les forces de Van der Waals sont prédominantes pour les poudres sèches et fines (de taille inférieure à 100 μm). Ces forces causent la formation d'agglomérats influençant les propriétés rhéologiques de la poudre [Castellanos, 2005]. De plus Podcezk [Podcezk, 1998] estime aussi que les forces électrostatiques sont environ 10 fois plus faibles que les forces de Van der Waals pour une poudre sèche. On pourra donc supposer que les forces de cohésion sont essentiellement dues aux forces de Van der Waals.

Les forces de Van der Waals proviennent de l'attraction induite par dipôle entre les molécules constituant les deux particules. Dans le calcul, différentes propriétés de la poudre peuvent influencer la valeur des forces de Van der Waals : la forme des grains, la rugosité des particules responsables des aspérités de surfaces, la taille des particules, ainsi que les propriétés mécaniques des grains telles que leur densité et leur élasticité [Capece, 2015].

Ainsi, un modèle théorique proposé par Rumpf [Rumpf, 1990] puis modifié par Rabinovich [Rabinovich, 2000] prend en compte la rugosité de surface, entre les particules en contact pour calculer la force interparticulaire. La Figure 8 schématise l'interaction entre deux particules A et B en présence de rugosité.

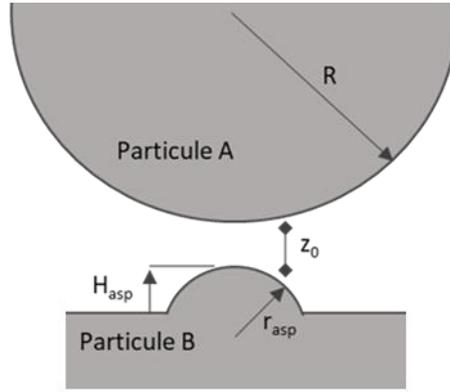


Figure 8 : Géométrie du contact entre deux particules en présence d'aspérités.

Le premier terme de l'équation représente l'interaction entre l'aspérité et la particule A alors que le second terme représente l'interaction entre la particule A et la particule B (Équation 12).

$$F_{\text{cohésion}} = \frac{H_A \cdot R}{6 z_0^2} \cdot \left(\frac{r_{\text{asp}}}{(r_{\text{asp}} + R)} + \frac{1}{\left(1 + \frac{H_{\text{asp}}}{z_0}\right)^2} \right) \quad \text{Équation 12}$$

Avec :

R le rayon de la particule (m),

z_0 la distance entre les deux particules (m),

H_{asp} la hauteur moyenne des rugosités (m) considérées comme sphériques de rayon r_{asp} (m).

Ce modèle de force de cohésion permet donc de déterminer les interactions entre deux particules en fonction du rayon des particules R avec des surfaces rugueuses caractérisées par des aspérités de rayon r_{asp} . La distance de séparation à l'équilibre z_0 est supposée être égale à 0,3 nm [Capece, 2015].

La constante de Hamaker H_A a été déterminée par la relation de Frenkel (Équation 13) en fonction de la distance limite D_0 (environ équivalente à 0,165 nm [Israelachvili, 1992]) et l'énergie de surface dispersive γ^d [Castellanos, 2005] :

$$H_A = 24\pi D_0^2 \gamma^d \quad \text{Équation 13}$$

1.1.4.2.4 La force frictionnelle

La force frictionnelle F_F est donnée par l'Équation 14 [Coulomb, 1975]. Plus les particules ont des formes éloignées d'une sphère, plus la force frictionnelle est grande. Cette force s'oppose au glissement des particules entre elles ; elle empêche donc l'écoulement.

$$F_F = F_N \cdot \mu \quad \text{Équation 14}$$

Avec :

F_N la force normale perpendiculaire au plan de cisaillement (N),

μ le coefficient de friction.

1.1.4.3 Mesure de l'énergie d'adhésion

Différentes méthodes permettent de mesurer la force d'adhésion.

1.1.4.3.1 L'énergie de surface

Lorsque l'interaction est du type Van der Waals, l'énergie de surface γ_S d'un solide est la somme de la tension de surface dispersive et polarisable.

$$\gamma_S = \gamma_S^d + \gamma_S^p \quad \text{Équation 15}$$

Il existe plusieurs équations mettant en relation l'énergie de surface et la force d'adhésion.

Selon Wu [Wu, 1971] :

$$W_{12} = 4 \cdot \left(\frac{\gamma_{S1}^p \cdot \gamma_{S2}^p}{\gamma_{S1}^p + \gamma_{S2}^p} + \frac{\gamma_{S1}^d \cdot \gamma_{S2}^d}{\gamma_{S1}^d + \gamma_{S2}^d} \right) \quad \text{Équation 16}$$

Où W_{12} représente le travail d'adhésion, 1 et 2 correspondent à deux poudres différentes constituées de particules de rayons respectifs R_1 et R_2 .

Barra [Barra, 1998] a établi une relation pour la force d'adhésion entre deux particules sphériques, non poreuses, en fonction de leur taille.

$$F_{12} = 2\pi \left(\frac{R_1 \cdot R_2}{R_1 + R_2} \right) W_{12} \quad \text{Équation 17}$$

On peut voir que la force d'adhésion dépend de la taille des particules, mais aussi de l'énergie de surface des particules.

Différentes techniques permettent de mesurer cette tension superficielle ou énergie de surface :

La méthode de Stevens [Stevens, 1974]

La poudre est recouverte de différents liquides présentant chacun des tensions de surface différentes. On essaye alors de déterminer la tension de surface du liquide commençant à peine à mouiller la poudre. Dans cette méthode la tension interfaciale du liquide est alors supposée identique à celle du solide. Cette méthode est simple et rapide, mais très imprécise.

La chromatographie gazeuse inverse (CGI) :

La méthode de chromatographie par phase gazeuse repose sur l'adsorption/désorption. Elle a pour principe d'injecter un gaz de concentration connue à travers une colonne contenant la poudre. Le gaz fait partie de la famille des alcanes. La poudre capte les particules gazeuses et on observe donc une rétention du gaz en fonction du temps jusqu'à saturation (recouvrement du gaz sur les poudres) [Gamble, 2012].

$$\gamma_S^d = \frac{[Rg.T.\ln(V_{N(C_{n+1}H_{2n+4})}/V_{N(C_nH_{2n+2})})]}{4 N_A^2 \cdot a_{CH_2}^2 \cdot \gamma_{CH_2}} \quad \text{Équation 18}$$

Avec :

a_{CH_2} la surface d'un groupe CH_2 (~0,6 nm),

γ_{CH_2} son énergie libre (35,6 mJ.m²),

Rg la constante des gaz parfaits,

T la température (K),

V_N le volume de rétention (m³),

N_A la constante d'Avogadro.

La mesure de capillarité Washburn [Washburn, 1921]

Dans ses travaux, Washburn utilise la loi de Poiseuille pour évaluer la montée capillaire d'un liquide à travers un milieu poreux en négligeant les forces de gravité. La vitesse de pénétration du liquide est la suivante :

$$v = \frac{dh}{dt} = \frac{R_h^2 \cdot \Delta P}{8 \eta_L \cdot h} \quad \text{Équation 19}$$

Avec :

h la hauteur du liquide (m),

t le temps (s),

R_h le rayon hydrodynamique des pores (m),

ΔP la différence de pression (Pa),

η_L la viscosité dynamique du liquide (Pa.s).

De plus, d'après la loi de Laplace, au niveau de l'interface solide-liquide, la différence de pression vaut [Forny, 2010] :

$$\Delta P = \frac{2 \gamma_L \cdot \cos \theta}{R_S} - \rho_L \cdot g \cdot h \quad \text{Équation 20}$$

Avec :

θ l'angle de contact ($^\circ$),

γ_L la tension de surface du liquide ($J \cdot m^{-2}$),

ρ_L la masse volumique du liquide ($g \cdot m^{-3}$),

R_S e rayon statique des pores (m),

g l'intensité de pesanteur ($9,8 \text{ m} \cdot s^{-2}$).

Par simplification, on suppose identiques les rayons R_h et R_S . De plus, on ne mesure pas la hauteur du liquide mais la masse m du liquide pénétrant dans la poudre en fonction du temps. On obtient après intégration l'équation de Lucas-Washburn modifiée :

$$\frac{m^2}{t} = C_{\text{cap}} \frac{\rho_L^2 \cdot \gamma_L \cdot \cos \theta}{2 \eta_L} \quad \text{Équation 21}$$

C_{cap} est la constante de capillarité. Dans notre cas elle est déterminée en utilisant un liquide qui mouille entièrement la poudre tel que l'hexane ou l'heptane : on aura alors $\theta=0^\circ$ et donc $\cos(\theta)=1$. Connaissant C_{cap} on peut alors en déduire l'angle de contact θ_2 pour un autre liquide avec l'équation :

$$\cos \theta_2 = \frac{\eta_{L1} \cdot \gamma_{L2} \left[\frac{dm^2}{dt} \right]_2}{\eta_{L2} \cdot \gamma_{L1} \left[\frac{dm^2}{dt} \right]_1} \quad \text{Équation 22}$$

Connaissant l'angle de contact pour plusieurs liquides, il est possible de calculer l'énergie de surface du solide. On utilise pour cela plusieurs relations dont l'équation de Young.

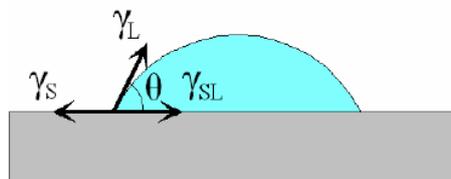


Figure 9 : Équation de Young, mouillabilité d'une goutte sur une surface.

En établissant un bilan de forces au niveau du point triple (Figure 9), l'équation de Young relie l'énergie de surface du solide γ_S ($J \cdot m^{-2}$) à la tension de surface du liquide, à l'énergie de l'interface

liquide/solide et à l'angle de contact.

$$\gamma_S = \gamma_{SL} + \gamma_L \cdot \cos(\theta)$$

Équation 23

1.1.4.3.2 Autre méthode de mesure des interactions : L'AFM

La Microscopie par Force Atomique (AFM) [Butt, 2005] a pour principe d'utiliser une pointe piézoélectrique et un support fixe. Sur la pointe on place une particule puis elle est rapprochée du support jusqu'à ce qu'il y ait contact, puis va s'éloigner. Cet appareil permet de mesurer directement la force d'interaction entre les deux particules (un exemple est présenté sur la Figure 10). On mesure l'amplitude de la force agissant entre les deux particules lorsqu'on les rapproche jusqu'au contact puis lorsque l'on les éloigne l'une de l'autre. On établit donc une mesure de force en fonction de la distance entre les particules. Ceci permet de déterminer expérimentalement la force d'adhésion agissant entre les deux particules, mais aussi le type de force (Van der Waals et/ou électrostatique).

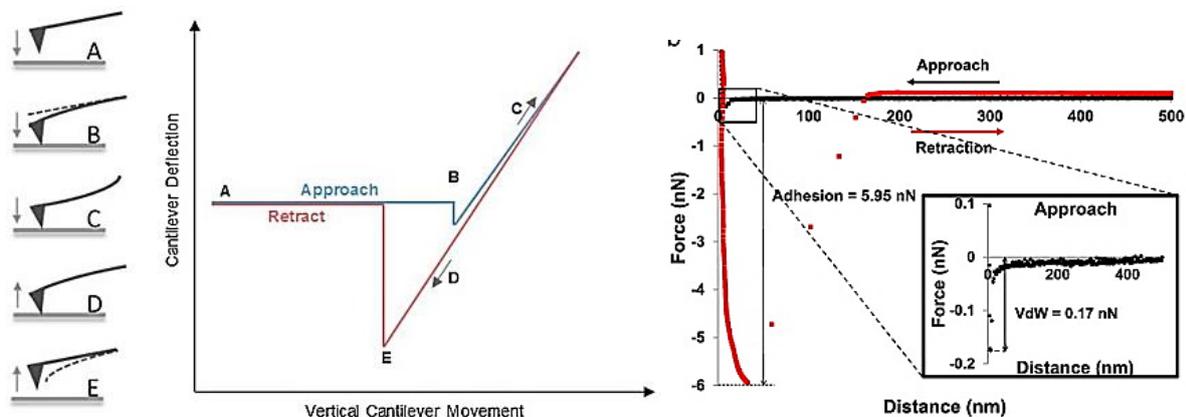


Figure 10 : Principe de l'AFM (extrait de [Butt, 2005]).

1.2 TECHNIQUES DE MESURES DES PROPRIETES RHEOLOGIQUES

Les propriétés rhéologiques d'une poudre caractérisent son comportement lors de la mise en écoulement ou lors de l'écoulement. Pour les caractériser, il est nécessaire que la méthode utilisée permette de reproduire les contraintes appliquées au système lors de sa mise en œuvre dans le procédé étudié. Il n'existe pas de méthode standard et universelle pour caractériser les propriétés rhéologiques d'une poudre mais il en existe plusieurs apportant des informations partielles [Juliano, 2006].

Schwedes et Schulze [Schwedes, 1990] listent les différentes méthodes pouvant caractériser ces propriétés rhéologiques. Ces méthodes sont détaillées ci-après.

1.2.1 Mesures d'angles

La mesure de l'angle de repos est une méthode simple et rapide à réaliser qui permet d'avoir une

première idée de la coulabilité d'une poudre. Carr [Carr, 1965] a établi un lien entre l'angle de repos et la coulabilité (Tableau 1). Pour un angle de repos (Figure 11) inférieur à 30°, la poudre s'écoule facilement. Plus la poudre est cohésive, plus l'angle est élevé.

Tableau 1 : Classification de l'écoulement des poudres basée sur l'angle de repos, selon Carr [Carr, 1965].

Écoulement	Angle de repos (°)
Très bon écoulement	25-30
Écoulement libre	30-38
Écoulement adéquat	38-45
Cohésif	45-55
Très cohésif	> 55

Quatre méthodes principales sont utilisées pour la mesure des angles (Figure 11) [Geldart, 2006] :

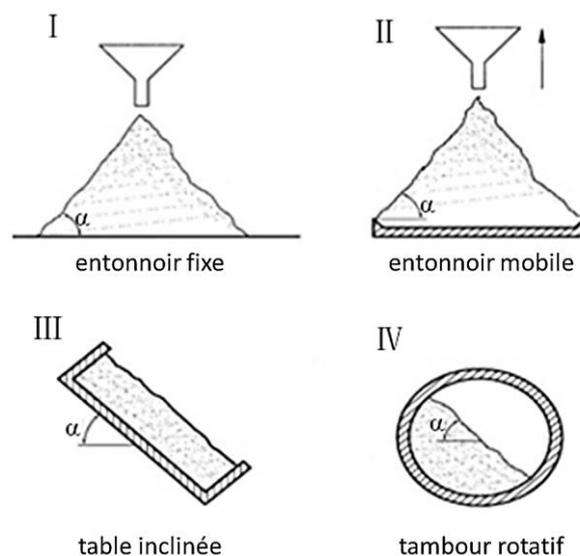


Figure 11 : Mesure des angles de repos statique et dynamique.

Les méthodes I et II (Figure 11) mesurent l'angle de repos statique alors que les deux autres méthodes mesurent l'angle de repos en dynamique [Cain, 2002]. La première méthode met en œuvre un entonnoir fixe. On verse la poudre par le dessus et on observe la formation d'un tas de poudre sur la surface plane. La méthode II est similaire sauf que la poudre est d'abord versée dans l'entonnoir, placé près de la surface fixe, et va s'éloigner au fur à mesure que le tas se forme grâce aux forces de friction. Dans ces deux méthodes la poudre doit être capable de passer à travers le petit orifice de l'entonnoir. Au fur et à mesure que la poudre est versée, le tas va se former jusqu'à atteindre un angle dit de repos. Lorsque l'on dépasse cet angle, les forces de friction deviennent plus faibles que les forces de gravité, entraînant un éboulement des grains afin de maintenir la pente de l'angle de repos. Une limitation vient du fait que le tas formé ne garde souvent pas la même forme après éboulement. Ces mesures présentent l'inconvénient d'être souvent imprécises, avec notamment un effet opérateur important.

1.2.2 Méthode de densité tassée

Une poudre possède différentes densités (ou masses volumiques apparentes) en fonction des sollicitations qu'elle subit : on distingue ainsi la densité aérée et la densité tassée. La densité aérée (DA) met en avant l'aptitude d'une poudre à s'arranger uniquement sous l'effet de la gravité, sans autre contribution extérieure. La différence entre la DA et la densité tassée (DT) est l'aptitude d'une poudre à s'organiser sous l'effet de mouvements mécaniques (on applique un certain nombre de chocs verticaux pour le protocole de mesure correspondant).

Carr [Carr, 1965] suggère que la compressibilité d'une poudre (au sens aptitude au tassement) est un indicateur de l'écoulement d'une poudre. L'indice d'Hausner est un indicateur similaire à l'indice de Carr. Selon Cain [Cain, 2002], ces deux indicateurs sont comparables à la fonction d'écoulement (définie au Chapitre 1, § 1.2.5.1) de Jenike pour la prédiction de l'écoulement d'une poudre [Jenike, 1964]. Les poudres cohésives ont un indice d'Hausner supérieur à 1,4 et un indice de Carr (définis au Chapitre 2, § 2.2.2.1) supérieur à 20%. Cette méthode est simple et rapide à réaliser, mais reste très qualitative.

1.2.3 Rhéomètre

Un rhéomètre détermine différents indices pouvant renseigner sur les phénomènes au niveau macroscopique. Différents rhéomètres existent, celui qui sera utilisé dans cette thèse est le rhéomètre de FT4 de Freeman Technology.

Le principe de cette mesure est le suivant : une poudre est placée dans un récipient cylindrique ; une pale spécifique s'insère dans le lit de poudre puis va tourner et se déplacer verticalement dans la poudre selon une trajectoire hélicoïdale et une vitesse bien précise (Figure 12).

En fonction du sens de déplacement de la pale (montée ou descente (Figure 13)), on détermine des indices qui seront présentés par la suite. Le test est répété un certain nombre de fois suivant un protocole prédéfini au Chapitre 2, § 2.2.3.2. Un aller-retour de la pale à travers la colonne de poudre correspond à un cycle. L'énergie est calculée à partir du travail mesuré lors du déplacement de la lame à travers la poudre du haut vers le bas, c'est-à-dire pendant la descente. Lors de cette descente, la pale effectue un mouvement de compression et de cisaillement.

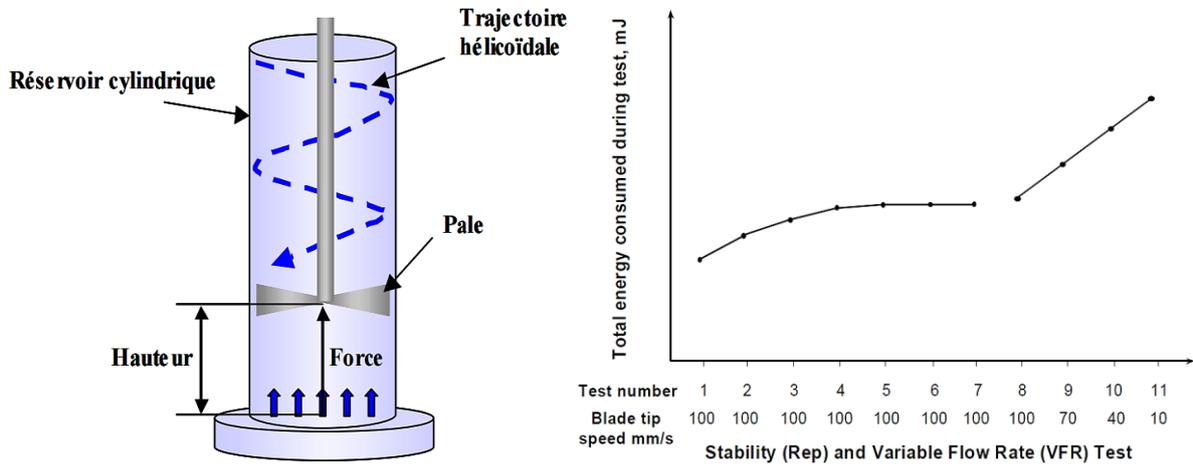


Figure 12 : Mesure de l'énergie en fonction de la vitesse de rotation de la pale [Freeman, 2007].

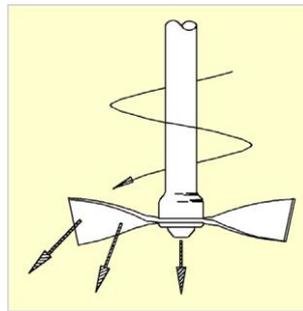


Figure 13 : Mouvement de la pale lors du test VFR [Freeman, 2007].

Plusieurs informations peuvent être exploitées à partir de ce test :

- L'indice de stabilité SI (Stability Index) caractérisant la « stabilité » d'une poudre, c'est-à-dire qu'il permet de déterminer si une poudre subit des modifications pendant l'écoulement.
- L'indice BFE (Basic Flowability Energy) est représentatif de l'écoulement libre de la poudre en milieu confiné à une vitesse en bout de pale donné.
- L'indice FRI (Flow Rate Index) a pour but de déterminer la sensibilité de la poudre à la vitesse d'écoulement pour différentes vitesses de rotation de la pale permettant ainsi de classer qualitativement la cohésion d'une poudre.
- L'énergie spécifique SE, contrairement aux autres indices, correspond à l'énergie mesurée lors de la remontée de la pale (Figure 14). Elle caractérise la cohésion de la poudre, mais dépend aussi de la taille, de la forme et de la rugosité [Freeman, 2007].

L'évaluation de ces indices sera détaillée dans le Chapitre 2.

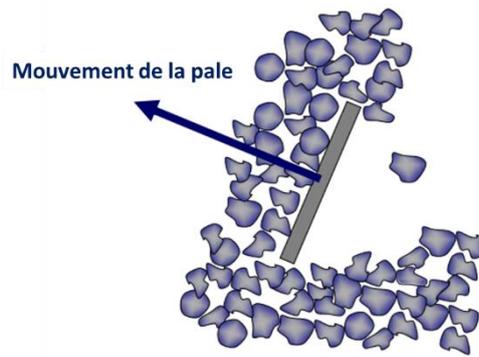


Figure 14 : Mouvement de la pale lors de la mesure de l'énergie spécifique (SE) lors du test VFR.

1.2.4 Cellules de cisaillement indirectes

Il existe deux types de cellules de cisaillement [Schulze, 2011] :

- Une cellule de cisaillement directe agit sur un plan de cisaillement défini par la géométrie de la cellule. On peut citer la cellule de cisaillement translationnel (Jenike) ou rotationnel (Schulze et FT4) qui seront décrites dans le paragraphe suivant.
- Une cellule de cisaillement indirecte déforme la poudre dans son ensemble. La rupture se fait aléatoirement et indépendamment de la géométrie du testeur. On peut citer la cellule uniaxiale et les cellules de cisaillement biaxial et triaxial.

Le test de compression uniaxiale comporte trois étapes successives (Figure 15) :

- compression : une charge de consolidation normale, notée σ_1 , est appliquée sur la poudre (introduite dans un cylindre),
- déchargement : la charge et le cylindre est retirée,
- rupture : une charge verticale croissante est appliquée sur la poudre jusqu'à rupture de celle-ci, cette charge étant notée σ_c .



Figure 15 : Test compression uniaxiale : consolidation-rupture.

Il existe différents types de testeur uniaxial, le principe est le même sauf que la direction d'application

de la contrainte de rupture et la géométrie varient d'une méthode à une autre. On peut citer le test monoaxial, le test de Johanson et le test de Gerritsen.

Dans le testeur biaxial (Figure 16), l'échantillon est soumis à des contraintes dans deux directions de l'espace. La poudre est entourée de quatre plaques amovibles qui la soutiennent. C'est grâce à ces plaques qu'on peut appliquer les contraintes de consolidation et par la suite les contraintes normales. Pour le test de cisaillement, une des deux contraintes est appliquée sur la poudre jusqu'à rupture de celle-ci. Ce testeur peut aussi être utilisé en tant que testeur de compression uniaxiale.

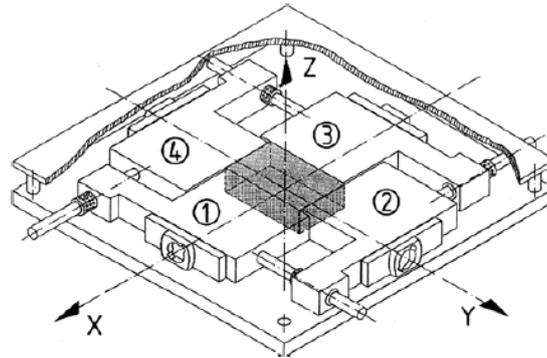


Figure 16 : Schéma d'une cellule de cisaillement biaxial [Schweddes, 1990].

Le testeur triaxial (Figure 17) est un testeur où les contraintes sont mesurées et appliquées dans les trois dimensions de l'espace. Il existe deux types de testeurs triaxiaux : le testeur triaxial normal et le testeur triaxial « vrai ».

Dans le testeur triaxial normal, l'échantillon est placé dans un cylindre vertical délimité par deux tampons. À l'horizontale, l'échantillon est soumis à une contrainte de consolidation due à la pression de l'eau. Les deux tampons amovibles vont se déplacer l'un vers l'autre jusqu'à rupture de la poudre (application des contraintes σ_1).

Dans le testeur triaxial « vrai », l'échantillon est entouré de six parois. On peut alors appliquer les contraintes dans les trois directions de l'espace en même temps et chaque paroi est indépendante.

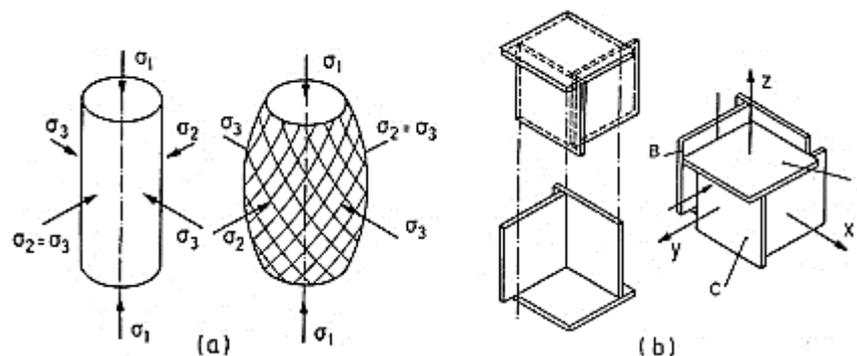


Figure 17 : Cellule de cisaillement triaxiale : (a) standard et (b) « vraie » [Schweddes, 1990].

Ce testeur présente des inconvénients ; par exemple, après rupture on ne peut plus effectuer d'autres mesures. De plus, seuls des tests à des contraintes élevées donnent des résultats fiables. Les tests demandent beaucoup de temps et sont coûteux et de ce fait très peu utilisés en industrie.

1.2.5 Cellules de cisaillement directes

Jenike [Jenike, 1964] a développé une méthode basée sur la mesure de la résistance au cisaillement du matériau. La cellule de cisaillement de Jenike mesure la variation de la contrainte de cisaillement nécessaire pour mettre en mouvement le lit de poudre consolidé à différentes contraintes normales. Bell [Bell, 1999] confirme la validité de cette méthode, reproductible pour différentes poudres.

1.2.5.1 La cellule de cisaillement de Jenike

La cellule de Jenike [Jenike, 1964] est dite translationnelle, car la contrainte de cisaillement effectue un mouvement de translation afin de rompre le lit de poudre. Elle est composée d'une base sur laquelle sont posés un anneau et un couvercle. La cellule est remplie de poudre jusqu'en haut de l'anneau (Figure 18). On applique une contrainte normale sur le couvercle afin de préconsolider la poudre. Puis on effectue l'essai en appliquant une contrainte normale sur le couvercle et un cisaillement par mouvement de translation au niveau de l'anneau.

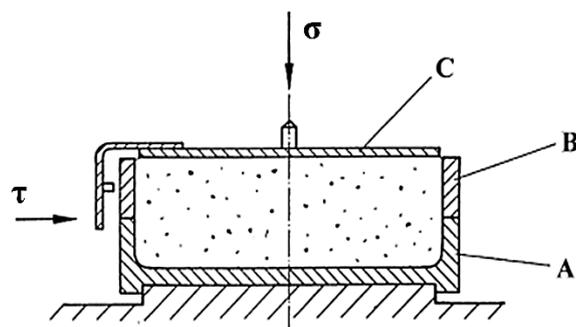


Figure 18 : La cellule de Jenike (A la base, B l'anneau et C le couvercle).

Lors d'un essai de cisaillement, on distingue donc deux étapes : l'étape de préconsolidation et l'étape de cisaillement.

Pour la reproductibilité des essais de cisaillement, il faut que la densité de la poudre soit constante : c'est l'état de densité critique. C'est pourquoi l'étape de préconsolidation est nécessaire avant chaque mesure de cisaillement. Elle permet de répéter les mesures sous les mêmes conditions et d'effacer l'historique de la poudre.

L'étape de préconsolidation (Figure 19) consiste à appliquer une contrainte normale connue (appelée σ_{pre}) sur la poudre, puis à cisailier celle-ci jusqu'à atteindre l'état de densité critique (ou encore appelé état de consolidation critique). Si la poudre est surconsolidée (A) (respectivement sousconsolidée (B)), lorsqu'elle se déplace elle va avoir tendance à se dilater (respectivement se compacter) jusqu'à atteindre

sa densité critique. La poudre consolidée (C) atteint directement son état de consolidation critique, le volume dans ce cas n'a pas varié.

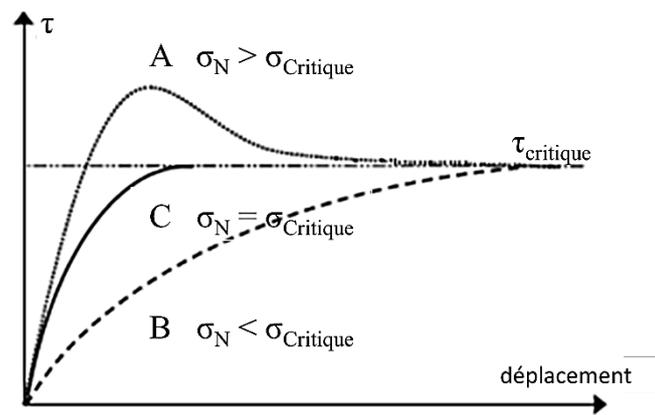


Figure 19 : Les différents états de consolidation d'une poudre : A surconsolidée, B sousconsolidée, C consolidée.

Par la suite vient l'étape de cisaillement, une contrainte normale σ inférieure à la contrainte normale de préconsolidation (σ_{pre}) est appliquée, puis une contrainte de cisaillement τ est appliquée jusqu'à rupture du lit de poudre (Figure 20). Plusieurs couples (τ, σ) sont obtenus permettant de tracer le lieu d'écoulement. Ce dernier représente la rupture du lit de poudre dans la zone de cisaillement ou encore la limite d'élasticité de la poudre. La même expérience est reproduite avec différentes contraintes normales, mais avec toujours le même état de préconsolidation avant chaque essai.

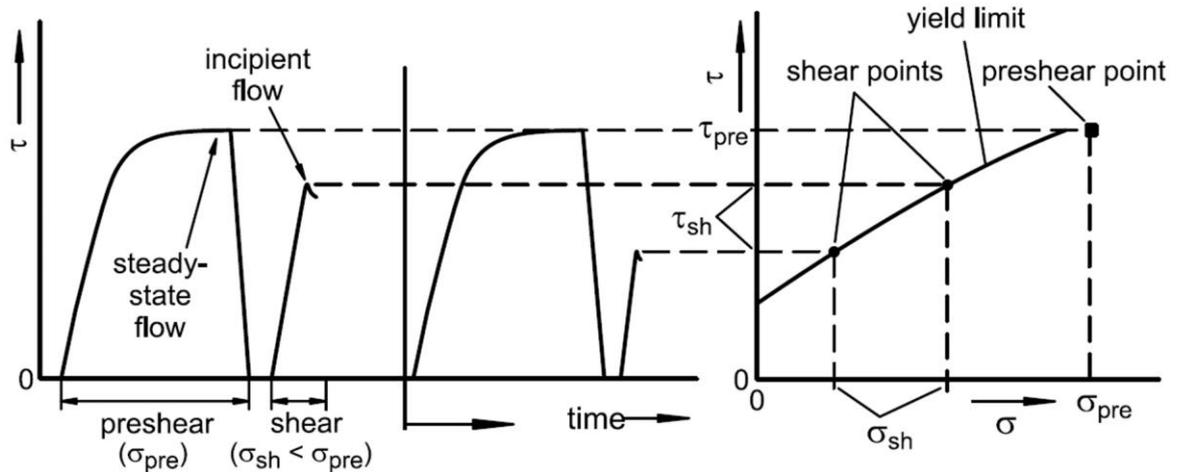


Figure 20 : Représentation du lieu d'écoulement [Schulze, 2011].

Analyse du lieu d'écoulement

Le lieu d'écoulement se présente sous forme linéaire ou légèrement arrondie en fonction du type de poudre. Ce lieu d'écoulement peut être déterminé par un critère de rupture mettant en avant la contrainte

de cisaillement τ en fonction de la contrainte de consolidation σ . Plusieurs auteurs ont proposé différents critères de rupture.

On peut en citer quelques-uns :

- Le critère de rupture de Mohr-Coulomb :

$$\tau = \mu \cdot \sigma + C$$

Équation 24

La contrainte tangentielle τ d'un matériau varie linéairement avec la contrainte normale σ appliquée à la surface de rupture. On détermine par la suite différents paramètres caractéristiques de la poudre étudiée (Figure 21) :

- La contrainte de cohésion (ou rupture), σ_c : elle caractérise la résistance de la poudre soumise à une compression simple. Elle est obtenue en traçant le petit cercle de Mohr : c'est le cercle passant par l'origine et tangent au lieu d'écoulement.
- La contrainte de consolidation majeure, σ_1 : elle caractérise la contrainte normale maximale au sein de la poudre confinée. Elle est obtenue en traçant le grand cercle de Mohr : passant par le point de précisaillement et tangent au lieu d'écoulement. Notons que les termes de préconsolidation et de précisaillement seront utilisés dans ce mémoire.
- L'ordonnée à l'origine ($\sigma=0$) est le point $\tau = C$ qui représente la cohésion de la poudre. Ce point correspond à la cohésion initiale de la poudre sans qu'aucune contrainte normale ne lui soit appliquée. Pour une poudre à écoulement libre, le lieu d'écoulement est une droite qui passe par l'origine du repère, c'est-à-dire que la cohésion est nulle.
- μ est le coefficient de friction interne : $\mu = \tan(\text{AIF})$. AIF est l'angle d'inclinaison du lieu d'écoulement avec l'horizontale, appelé aussi l'angle de frottement interne.
- L'angle de frottement interne effectif AIFE : il s'agit de l'angle entre l'axe des abscisses et la droite passant par l'origine du repère et tangente au grand cercle de Mohr.
- R_t la résistance à la traction est obtenue en traçant l'intersection entre le lieu d'écoulement et l'axe des abscisses.

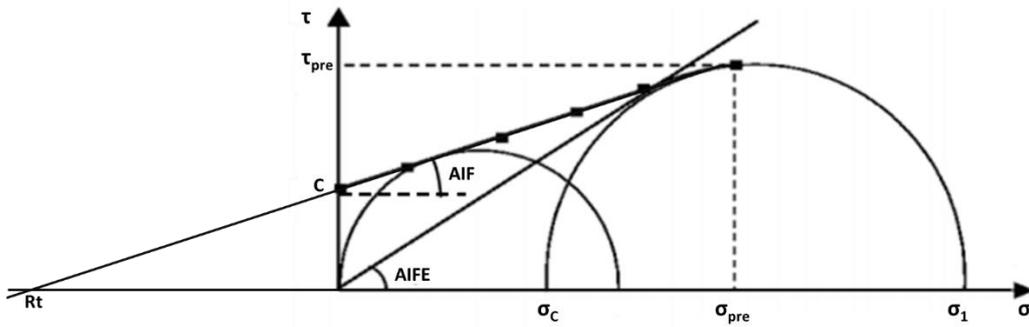


Figure 21 : Représentation des cercles de Mohr et du lieu d'écoulement [Schulze, 2011].

L'équation de Mohr-Coulomb ne prend pas en compte le couple de consolidation critique.

- Le critère de Warren-Spring :

Lorsque le lieu d'écoulement est courbé, on peut corréliser le critère de rupture au critère de Warren Spring [Ashton, 1965] :

$$\left(\frac{\tau}{C}\right)^n = \frac{Rt + \sigma}{Rt} \quad \text{Équation 25}$$

Où n représente l'indice de courbure sans dimension ($1 \leq n \leq 2$).

Rt est une grandeur constante quel que soit l'état de préconsolidation de la poudre. Contrairement au critère de Coulomb, Rt n'est pas surestimé dans ce cas. En supposant que le lieu d'écoulement est linéaire, par analogie avec le critère de Coulomb, Rt est équivalent à $(C/\tan AIF)$. Ainsi, le coefficient de friction interne ne dépend pas de la contrainte de préconsolidation, contrairement à la méthode de Mohr-Coulomb.

La fonction d'écoulement [Jenike, 1964] : Après avoir tracé plusieurs lieux d'écoulement (donc à des préconsolidations σ_{pre} différentes), on obtient plusieurs couples (σ_c, σ_1) . Pour chaque couple, on peut alors déterminer l'indice d'écoulement FI (Flowability Index) tel que :

$$FI = \frac{\sigma_1}{\sigma_c} \quad \text{Équation 26}$$

À partir des différents FI obtenus pour une poudre donnée, on peut ainsi déterminer une courbe représentant sa fonction d'écoulement FF en traçant σ_c en fonction de σ_1 . Selon Jenike [Jenike, 1964] on peut caractériser et classer la coulabilité d'une poudre grâce à sa fonction d'écoulement (Figure 22).

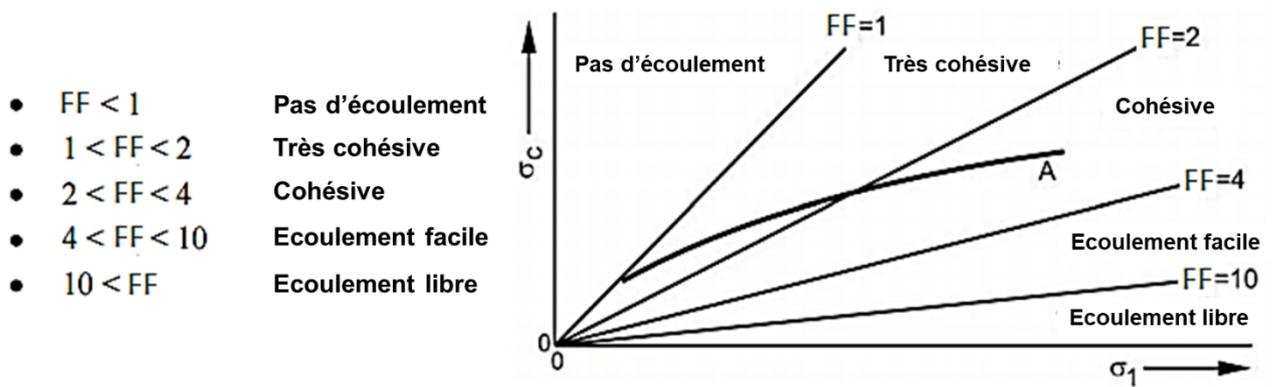


Figure 22 : Classification de l'écoulement selon Jenike (extrait de [Schulze, 2011]).

1.2.5.2 Cellules de cisaillement rotationnelles

À la différence de la cellule de Jenike, la géométrie pour la cellule de Schulze [Schulze, 2011] et pour la cellule du FT4 est circulaire [Freeman, 2009] (Figure 23). L'étape de précisaillement est identique à celle de Jenike sauf que le mouvement de cisaillement est rotationnel. La poudre est cisailée à une vitesse angulaire constante jusqu'à ce que la contrainte de cisaillement atteigne une valeur stable. La poudre est alors à l'état de consolidation critique. Une fois que cet état est atteint, le cisaillement est arrêté et une contrainte normale inférieure à celle du précisaillement est appliquée à la poudre. Un point dit de cisaillement ou « d'écoulement naissant » est ainsi obtenu. Ces deux étapes (précisaillement-cisaillement ou rupture) sont répétées pour différentes contraintes normales inférieures à celle du précisaillement.

Il est à noter qu'une intercomparaison entre ces deux cellules de cisaillement sera réalisée dans la suite de l'étude.

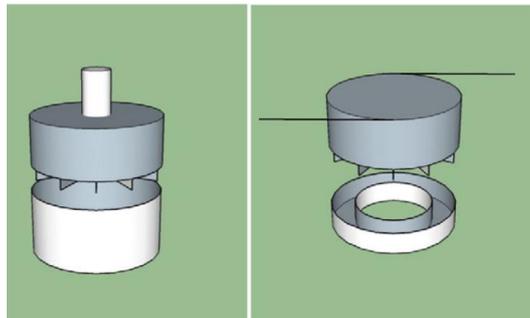


Figure 23 : Cellules de cisaillement rotationnel : FT4 (à gauche) et Schulze (à droite).

1.2.5.3 Analyse du cisaillement à l'échelle de la particule

1.2.5.3.1 Etat de rupture

Le tracé du lieu d'écoulement permet de déterminer les conditions de la rupture du lit de poudre. La Figure 24 représente le tracé d'un lieu d'écoulement avec les différentes contraintes appliquées sur le lit

de poudre lors de la rupture [Tomas, 2003]. On peut voir qu'il est nécessaire d'appliquer une contrainte de cisaillement C non nulle pour rompre le lit de poudre en absence de contrainte normale. Cette cohésion C est représentative de la force tangentielle nécessaire pour rompre les forces d'interactions attractives (VdW) qui sont représentées par des flèches normales aux particules sur la Figure 24. Pour cisailer le lit de poudre sous contrainte nulle (mais préalablement consolidé) il faut par conséquent appliquer une force tangentielle supérieure à ces forces de résistances (normales).

De plus lorsqu'on trace le lieu d'écoulement jusqu'à l'intersection avec l'axe des abscisses : on détermine la contrainte à la traction consolidée R_t de la poudre soumise à une contrainte de préconsolidation donnée. Cette contrainte normale, de sens opposé aux forces d'attractions, correspond à la contrainte de traction nécessaire pour rompre les forces d'attraction entre deux particules. Pour une même poudre, elle varie donc en fonction de la contrainte de préconsolidation et donc de l'état de consolidation de la poudre.

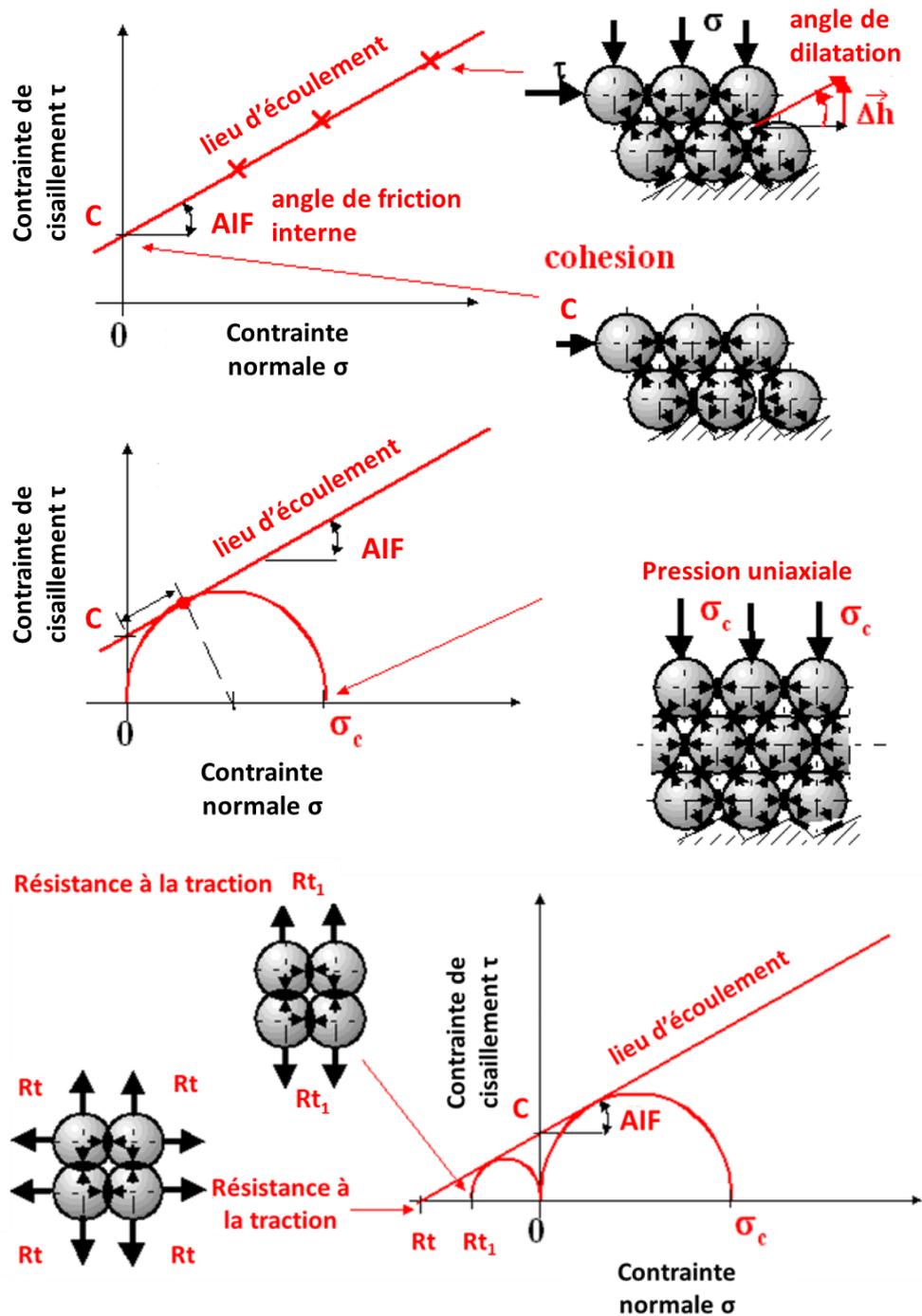


Figure 24 : Schématisation des forces interparticulaires en fonction des différents paramètres caractérisant le lieu d'écoulement représentant la rupture du lit de poudre [Tomas, 2003].

1.2.5.3.2 Etat stationnaire

L'interaction directe entre les particules peut être modifiée en fonction de l'ampleur de la force de contact entre les particules pouvant entraîner une déformation irréversible du point ou de la surface de contact. Pour mieux comprendre les interactions entre les particules en absence de déformation, il est

nécessaire de définir le lieu d'écoulement qui représente le comportement de la poudre sans que les particules la formant ne subissent de déformation.

Le lieu d'écoulement stationnaire est une caractéristique d'un matériau donné enveloppant tous les cercles de Mohr pour un écoulement en régime permanent. Dans cet état la poudre ne se dilate plus ($dV = 0$). On détermine le coefficient de friction stationnaire (ou encore appelé coefficient de frottement dynamique) qui est représentatif du frottement entre les grains après rupture du lit de poudre. À partir de ce coefficient on peut déterminer l'angle de frottement interne à l'état stationnaire AIFS. Le lieu d'écoulement stationnaire peut ainsi être tracé, il est tangent au grand cercle de Mohr et forme un angle AIFS avec l'axe des abscisses. Cette droite coupe l'axe des abscisses au point Rt_0 qui représente la résistance à la traction entre les particules non consolidées (Figure 25) : on suppose donc que Rt_0 représente les forces d'interaction attractives entre les particules sans déformation de leur surface.

Connaissant la résistance à la traction Rt_0 des poudres ayant un diamètre caractéristique dp sans aucun effet de déformation de contact avec les particules, et connaissant la porosité initiale à la compaction ε_0 ainsi que le nombre de coordination (nombre de points de contact entre les particules) Np , la force de cohésion FH_0 peut être calculée en utilisant l'Équation 27 proposée par Molerus [Molerus, 1978] :

$$FH_0 = \frac{\pi}{1-\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{Np} \cdot Rt_0 \cdot dp^2 \quad \text{Équation 27}$$

La porosité initiale du lit de poudre peut être déterminée par la relation :

$$\varepsilon_0 = 1 - \frac{\rho_{app}}{\rho_p} \quad \text{Équation 28}$$

Avec :

ρ_{app} la masse volumique apparente du lit de poudre ($g \cdot cm^{-3}$),

ρ_p la masse volumique de la particule (la densité des granulés est équivalente à 5) ($g \cdot cm^{-3}$).

La distribution inhomogène de la contrainte, de la porosité, de la taille de particule ainsi que de la morphologie des granulés limite la validité du modèle. Le nombre de coordination d'une particule est notamment difficile à déterminer. Dans la littérature une relation permet d'évaluer empiriquement le nombre de coordination Np en fonction de la porosité du lit de poudre [Valverde, 1998- Condotta, 2005] :

- Pour une porosité comprise entre 0,25 et 0,5 :

$$Np = \frac{\pi}{\varepsilon} \quad \text{Équation 29}$$

- Pour une porosité comprise entre 0,6 et 0,72 :

$$Np = \frac{\pi}{2\varepsilon^{1/2}} \quad \text{Équation 30}$$

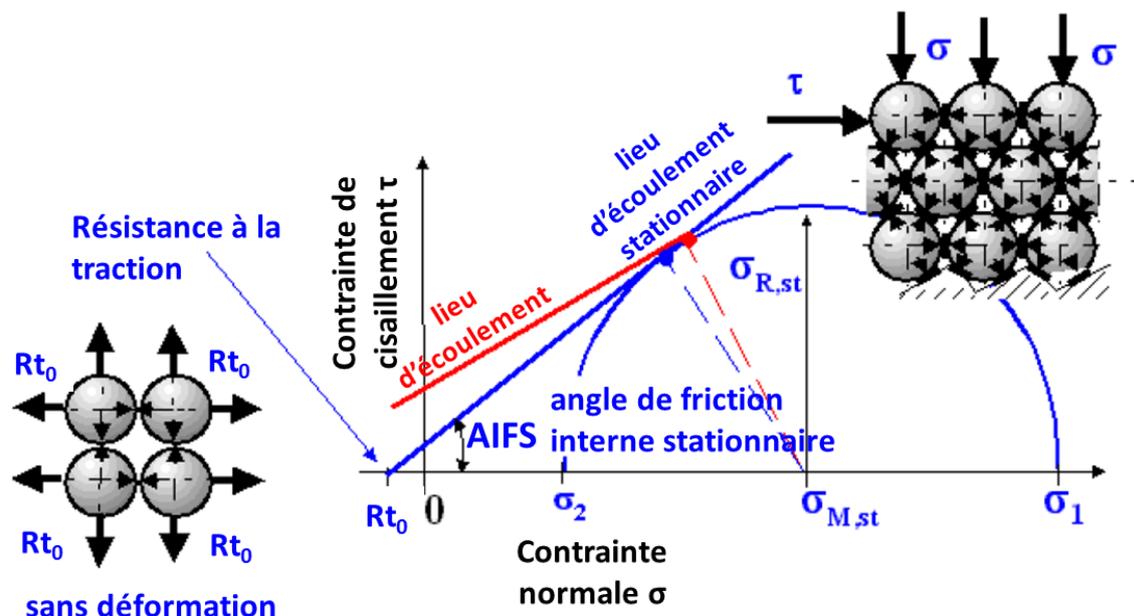


Figure 25 : Schématisation des forces interparticulaires en fonction des différents paramètres caractérisant le lieu d'écoulement stationnaire [Tomas, 2003].

1.2.5.3.3 Dilatation et interlocking

La Figure 26 [Tomas, 2004] montre l'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction du déplacement de la cellule de cisaillement. Deux états peuvent être tracés : le lieu d'écoulement de rupture et le lieu d'écoulement stationnaire. Le lieu d'écoulement de rupture représente la force nécessaire à rompre le lit de poudre tandis que le lieu d'écoulement stationnaire correspond à celle nécessaire pour continuer à cisailer la poudre après sa rupture [Condotta, 2005].

Lors du test de cisaillement (Figure 26), deux types de déplacements sont observés : un premier, élastique, qui est représenté par la droite croissante, suivi d'un comportement plastique de la poudre permettant d'atteindre un état stationnaire de la poudre. Quand la poudre présente un comportement élastique, elle peut retrouver son état d'origine. A partir d'une certaine contrainte de cisaillement, la poudre adopte un comportement plastique, c'est-à-dire qu'elle ne peut plus revenir à son état initial.

Au niveau du lieu d'écoulement de rupture, la présence du pic représente la dilatation ($dV > 0$) entraînant la rupture de la poudre et la naissance de l'écoulement induit par une déformation du lit de poudre (état plastique). Après la mise en écoulement, la poudre va se stabiliser jusqu'à atteindre un état stationnaire représenté par le plateau.

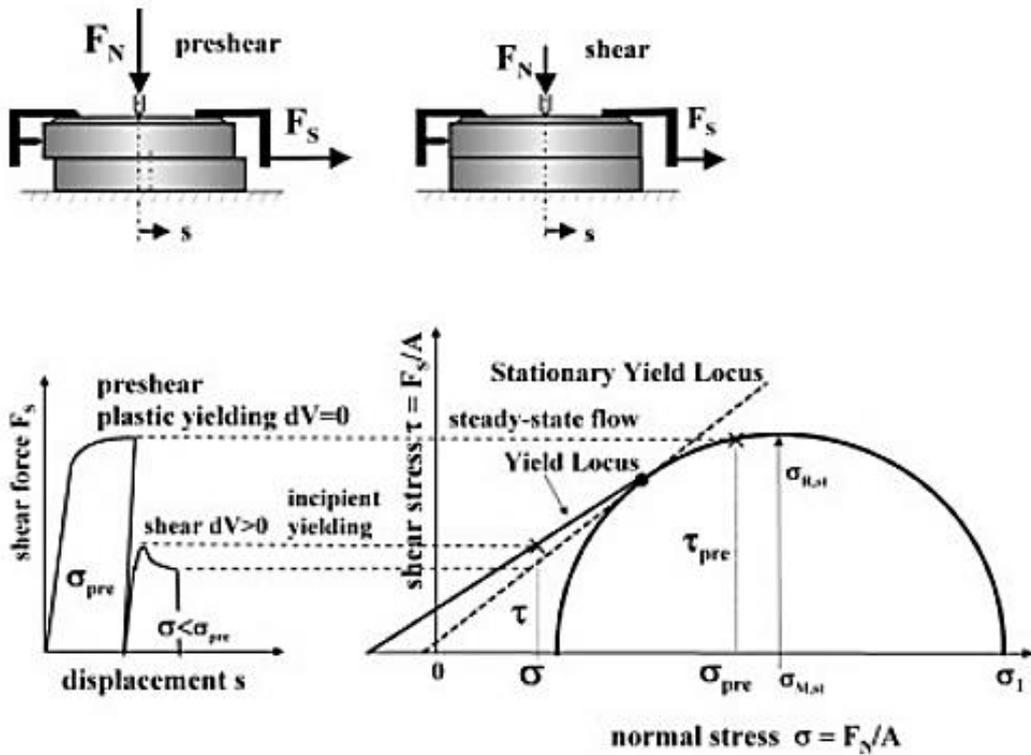


Figure 26 : Cellule de cisaillement : Variation de la contrainte de cisaillement en fonction du déplacement de la cellule : lieu d'écoulement de rupture et stationnaire.

Reynolds [Reynolds, 1885] a permis de mettre en évidence ce phénomène de dilatation : un milieu surconsolidé ne peut se déformer qu'en se dilatant (Figure 27).

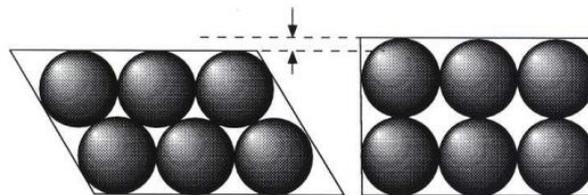


Figure 27 : Principe de dilatance de Reynolds.

Le rapport de la contrainte de cisaillement sur la contrainte normale (τ / σ) en fonction du déplacement de la cellule de cisaillement permet de déterminer deux paramètres : le coefficient de friction μ et le coefficient de dilatation (dy / dx) [Taylor, 1948- Juliano, 2006] avec x et y correspondant respectivement à la contrainte normale σ et de cisaillement τ (voir Figure 28) :

$$\left(\frac{\tau}{\sigma}\right) = \mu + \left(\frac{dy}{dx}\right) \quad \text{Équation 31}$$

Le coefficient de friction μ au sein de la poudre est obtenu lorsque la poudre atteint son régime d'équilibre, ce coefficient est supposé constant. Le coefficient de dilatation (dy / dx) permet de quantifier

le phénomène d'interlocking entre les particules [Taylor, 1948]. Il met en évidence l'imbrication à l'échelle macroscopique, c'est-à-dire à l'échelle du granulé. Il représente la force nécessaire à désenchevêtrer les grains pour ainsi permettre leur mise en mouvement. Une représentation schématique de ces paramètres est présentée sur la Figure 28.

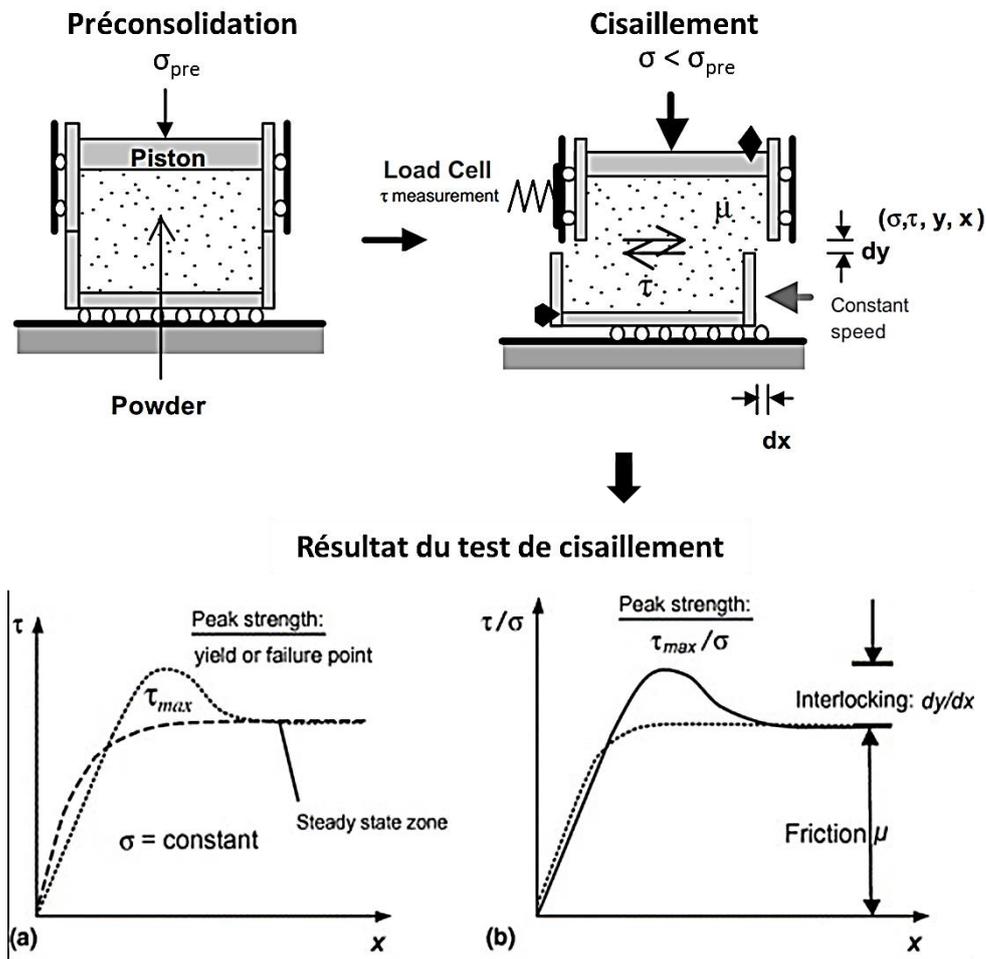


Figure 28 : Essais de cisaillement : phénomènes d'interlocking et de friction [Schofield, 1998- Juliano, 2006].

1.2.5.3.4 Coefficient de déformation du contact élastique-plastique

Tomas [Tomas, 2003] propose une relation entre la déformation de contact des particules et la force normale. Elle prend en compte l'équilibre au niveau du contact entre l'attraction et la répulsion élastique et plastique et est basée sur l'analyse de Rumpf et Molerus. Elle est présentée par l'Équation 32 et est basée sur la théorie du contact hertzien, tout en développant la déformation élastique et plastique subie lors des contacts de particules pendant la consolidation.

$$FH = (1 + \kappa) \cdot FH_0 + \kappa F_N \quad \text{Équation 32}$$

Avec κ le coefficient de déformation du contact élastique – plastique entre les particules et FH_0 la force de cohésion pour une poudre non consolidée.

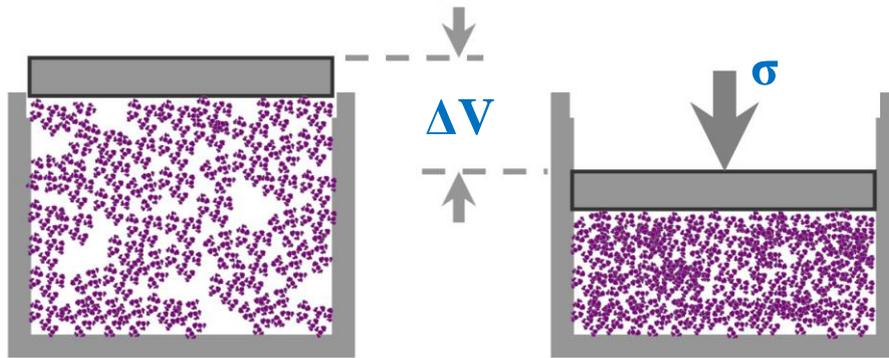
Ce coefficient décrit l'influence de la déformation de contact caractérisant la rigidité (ou la douceur) de contact des particules et est donc donné par la pente de la relation linéaire entre la force d'adhésion FH et la force normale FN. Ainsi, les théories développées par Molerus [Molerus, 1978] et Tomas [Tomas, 2009] permettent de caractériser et de faire le lien entre les propriétés rhéologiques des poudres et le comportement au niveau microscopique de la surface de contact en utilisant le coefficient de déformation élastique-plastique (κ).

$$\kappa = \frac{\tan AIFS}{\tan AIF} - 1 \quad \text{Équation 33}$$

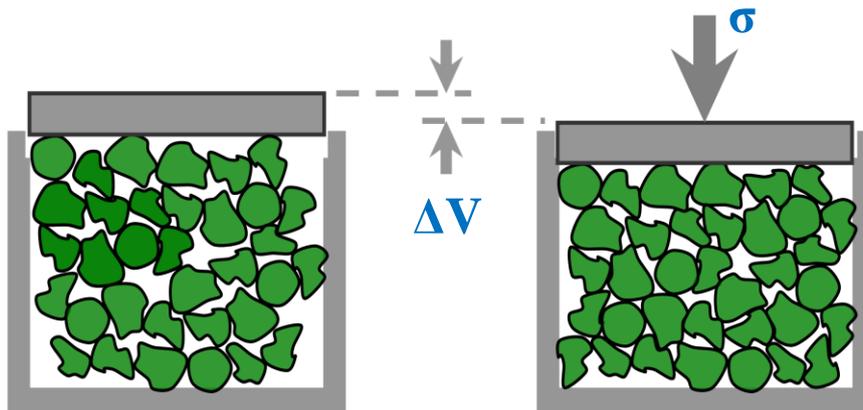
1.2.6 Test de compressibilité

Le test de compressibilité (ou compaction) permet d'évaluer l'aptitude à la consolidation d'un matériau granulaire [Turki, 2008]. Le principe est d'appliquer à un lit de poudre une contrainte normale de compression, σ , et de mesurer la réduction du volume apparent du lit de poudre, ΔV . Cette méthode est basée sur l'influence des forces interparticulaires sur la masse volumique en vrac d'un solide divisé (Figure 29) :

- un assemblage lâche de particules cohésives possède généralement une porosité de lit élevée, avec des « poches d'air » piégées dans la structure cohésive formée par la poudre. De façon générale, ces matériaux présentent donc une forte compressibilité (Figure 29a) ;
- une poudre non cohésive (écoulement libre) possède généralement une porosité de lit inférieure. Le lit de particules oppose une certaine « rigidité » à la compaction de la poudre. De façon générale, ces matériaux présentent donc une faible compressibilité (Figure 29b).



(a) Poudre cohésive



(b) Poudre à écoulement libre

Figure 29 : Compaction d'une poudre cohésive (a) et d'une poudre à écoulement libre (b).

1.2.7 Le testeur de poudre Sevilla

Le principe de ce testeur est décrit dans la Figure 30 [Zafar, 2015]. Un flux gazeux est appliqué en allant du bas vers le haut afin de supprimer l'historique de la poudre (dus à un transport ou à des mouvements de tassement, etc.). Puis un flux de gaz est appliqué du haut vers le bas afin d'exercer une force similaire à une contrainte de préconsolidation sur le lit de poudre. Ensuite, un flux croissant est réappliqué du bas vers le haut jusqu'à mise en fluidisation de la poudre (Figure 30). Le débit de gaz entrainant la fluidisation permet de déterminer la contrainte de rupture du lit de poudre.

Une poudre est fluidisée lorsque la perte de charge qu'elle génère est équivalente au poids par unité de surface. Pour des poudres cohésives on constate qu'il faut appliquer transitoirement une contrainte σ_T (Figure 30) supérieure en raison des forces de cohésion entre les particules.

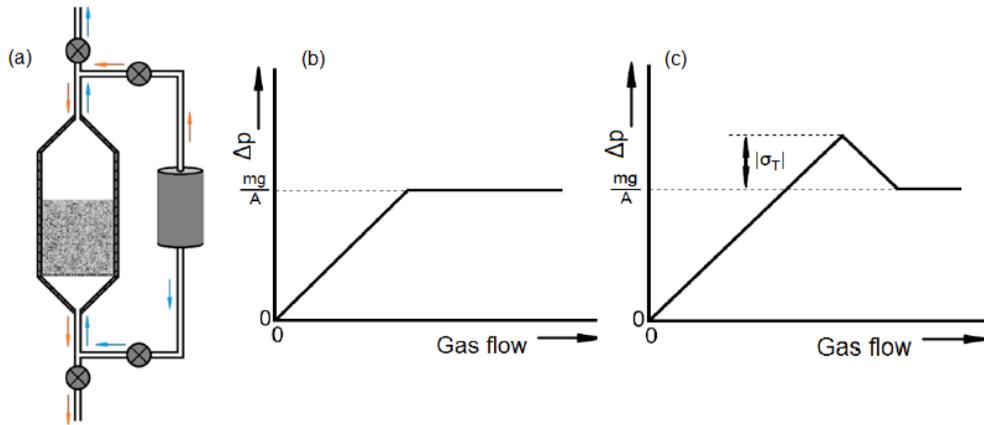


Figure 30 : (a) Schéma du testeur de poudre Sevilla. (b) Poudre à écoulement libre. (c) Poudre cohésive [Zafar, 2015].

La contrainte de rupture est définie par :

$$\sigma_T = \frac{m \cdot g}{A} - \Delta P \quad \text{Équation 34}$$

Avec :

A la surface horizontale du lit de poudre (m^2),

m la masse du lit de poudre (g),

g l'intensité de pesanteur ($m \cdot s^{-2}$),

ΔP la différence de pression (Pa).

Cette méthode présente des inconvénients : afin d'avoir des résultats significatifs il faut que la poudre soit fluidisable et par ailleurs le temps de manipulation est long.

1.2.8 Analyseur de friction granulaire (ou Granular Friction Analyzer GFA)

Le GFA [Bek, 2016] est un appareil constitué d'un tube cylindrique vertical permettant d'accueillir la poudre. Trois capteurs sont placés au niveau du tube, permettant de mesurer la pression qu'exerce la poudre sur la paroi. Un piston vertical est placé à l'entrée du tube, permettant d'appliquer une compression uniaxiale sur la poudre. Le principe est donc de mesurer l'évolution de la pression transmise par la poudre sur la paroi, en fonction de la contrainte normale et de la hauteur (Figure 31a).

La friction interne du milieu granulaire est déterminée par la distribution de la pression appliquée sur le lit de poudre. Pour un fluide, la pression appliquée est uniforme sur tout le cylindre alors que pour un milieu granulaire la pression varie de la surface vers l'intérieur du lit de poudre sur une partie du lit de poudre puis devient constante (Figure 31b).

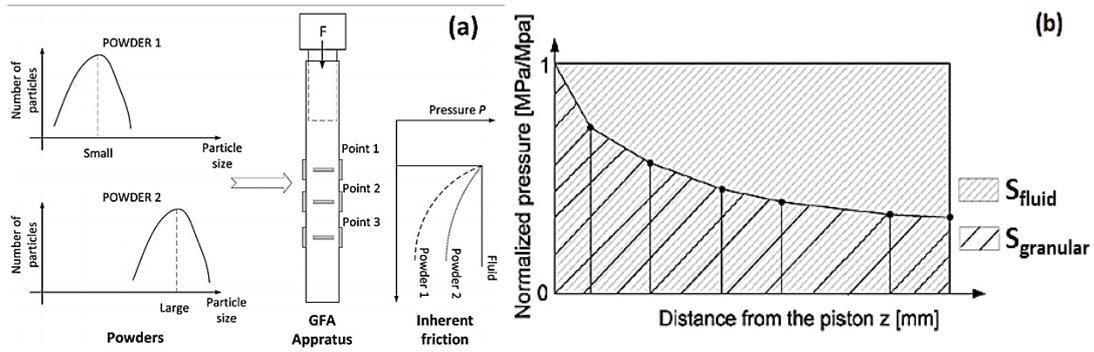


Figure 31: Principe du GFA.

L'indice GFA permet de mesurer la friction entre les particules, donc de caractériser l'écoulement de la poudre. Plus il est grand plus la poudre s'écoule facilement. Il prend pour valeur maximale 1 (pour un fluide newtonien).

$$\text{Indice GFA} = \frac{\text{Surface}_{\text{granulaire}}}{\text{Surface}_{\text{fluide}}} \quad \text{Équation 35}$$

1.2.9 Synthèse

Ces différentes méthodes permettent donc de caractériser l'écoulement, mais aussi la mise en écoulement d'un milieu granulaire complexe. Pour caractériser l'écoulement, il est nécessaire que la méthode utilisée permette de reproduire les contraintes appliquées au système. Il n'existe pas une méthode standard et universelle permettant de caractériser l'écoulement d'une poudre [Juliano, 2006]. Les différentes méthodes sont utilisées avec des protocoles pouvant varier en fonction du produit. Différentes études ont mis en relation les propriétés rhéologiques et les propriétés physico-chimiques, ceci est abordé dans la partie suivante.

1.3 LIEN ENTRE LES CARACTERISTIQUES PHYSICO-CHIMIQUES ET LES PROPRIETES RHEOLOGIQUES

Les caractéristiques physico-chimiques des poudres influencent leur rhéologie. Les caractéristiques dont l'influence est significative sont essentiellement la taille moyenne et la forme des particules ainsi que la distribution granulométrique, mais aussi l'énergie de surface. Ces paramètres propres à la poudre sont des paramètres de premier ordre. Il existe des paramètres de second ordre influençant la rhéologie tels que la température, l'humidité, l'ajout de lubrifiant, etc. Divers travaux ont été effectués sur ces sujets et pour différents types de poudres. Nous allons nous intéresser à ces études et aux différentes corrélations qui ont été identifiées.

1.3.1 Influence de la taille et de la forme des particules

La taille des particules (et donc la distribution granulométrique d'une poudre) est l'un des paramètres importants pouvant jouer sur la coulabilité. Plusieurs études ont été réalisées afin de démontrer

l'influence de la taille [Kurz, 1975- Teunou, 1999- Shinohara, 2002- Bruni, 2006- Fu, 2012- Boshini, 2015- Chirone, 2016].

Fu [Fu, 2012] a étudié trois types de poudres de lactose InLac230, SpherocLac 100 et FlowLac : de même forme avec InLac230 et SpherocLac 100 (différentes de FlowLac qui est la plus sphérique) ; de même taille avec FlowLac100 et SpherocLac 100 (différentes de InLac qui est la plus petite).

Des mesures effectuées avec le rhéomètre à poudre FT4 (Freeman Technology) ont permis de déterminer l'énergie spécifique (représentative de la cohésion de la poudre non confinée), mais aussi la compressibilité de la poudre. Par ailleurs, des tests de cisaillement ont été effectués. Les particules sphériques et de grande taille (FlowLac) ont une énergie spécifique et une compressibilité faible, elles s'écoulent donc facilement. Au contraire, les particules non sphériques et de petite taille (InLac) ont une plus grande énergie spécifique et une plus forte compressibilité correspondant donc à une forte cohésion. L'irrégularité de la forme entraîne la formation de forces frictionnelles et la petite taille favorise les forces de cohésion. Ainsi pour un meilleur écoulement, les grains doivent être sphériques et de grande taille.

Une comparaison entre l'indice d'Hausner et l'angle de repos dynamique [Geldart, 2006] a été faite pour différentes distributions granulométriques. D'après Geldart lorsque la taille des particules augmente, le rapport d'Hausner diminue ce qui s'explique par une diminution de la cohésion. Dans l'étude réalisée, trois poudres sont analysées : une poudre fine cohésive de 7 μm , une poudre de Fluid Cracking Catalyst (FCC) sphérique et poreuse de 79 μm et une poudre d'oxyde d'aluminium trihydratée Fire Retardant Filler (FRF) anguleuse et non poreuse de 63 μm . Deux mélanges sont réalisés : le mélange FCC (FCC - poudre fine) et le mélange FRF (FRF - poudre fine). Pour les deux types de poudres, les résultats montrent que plus il y a de grosses particules, plus le rapport d'Hausner diminue, et donc plus elles s'écoulent facilement. Moins une particule est anguleuse, mieux elle s'écoule également.

Bodhimage [Bodhimage, 2006] a comparé différentes poudres de tailles, de distributions granulométriques et de formes différentes. Ces deux paramètres influencent la compressibilité. Lors du tassement il y a une réorganisation des particules. Les grosses particules vont créer du vide, qui sera comblé par la migration des fines particules vers le bas. Les particules allongées et/ou irrégulières vont s'emboîter entre elles entraînant une augmentation de la cohésion et donc de la friction. Plus les poudres sont compressibles, plus leur coulabilité est faible.

Shinohara et Golman [Shinohara, 2002] ont étudié des mélanges de billes de verre sphériques (masse volumique des particules équivalente à 2500 kg/m^3) de tailles différentes : GB1 de taille moyenne 116 μm et GB2 de taille moyenne 196 μm . Les mesures d'angle de friction interne sont obtenues par analyse des résultats avec la cellule de Schulze. Cet angle permet de caractériser les frottements entre les particules. On observe que pour les grosses particules le lieu d'écoulement est supérieur à celui des petites particules, de même pour l'angle de friction interne. Si on mélange une certaine fraction de petites particules avec les grosses on constate une augmentation de la pente caractéristique du lieu d'écoulement et, en conséquence, de l'angle de friction interne. Ce dernier point peut s'expliquer par le cisaillement au niveau des rugosités. Pour les grosses particules, la force de cisaillement est assez élevée lorsque la rugosité de la surface des particules est élevée (Figure 32). En fonction de la fraction de petites particules dans le mélange, le milieu granulaire se comporte différemment. Pour ce type de poudre, on peut voir

que le frottement entre les particules de différentes tailles devient constant lorsque la fraction de grosses particules est supérieure à 25% dans le mélange. Plus il y a de grosses particules, plus la pente croit et plus la fonction d'écoulement croit ce qui traduit une bonne coulabilité de la poudre. Ce phénomène dépend de la porosité du mélange. La porosité est minimale quand la proportion de grosses particules est inférieure à un seuil de 25 %.

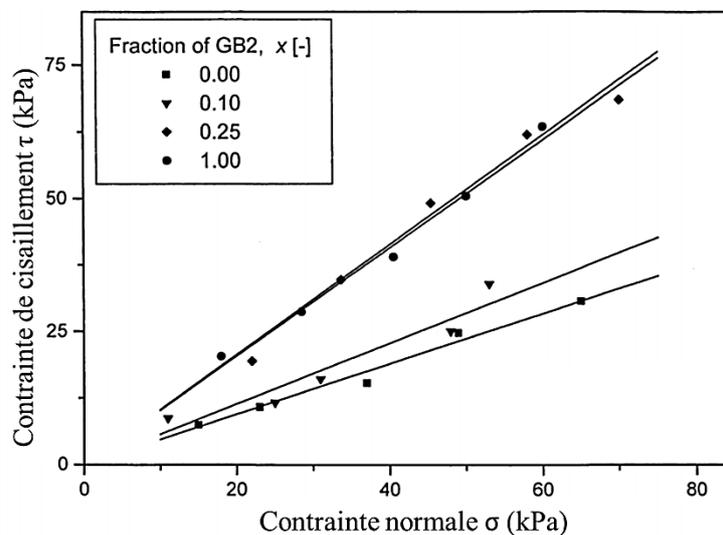


Figure 32 : Evolution du lieu d'écoulement en fonction pour différents mélanges granulométriques (extrait de [Shinohara, 2002]).

Jan [Jan, 2016] a également signalé l'effet de la forme et de l'état de la surface des particules sur l'aptitude à l'écoulement. Il a montré que les particules de forme circulaire présentaient une mise en écoulement et un écoulement facile.

D'autres études sur la taille des particules ont été réalisées sur différents milieux granulaires tel que celle de Fitzpatrick [Fitzpatrick, 2004] sur des poudres alimentaires, Lee [Lee, 2015] sur le soja noir ou encore Liu [Liu, 2015] sur le charbon. Tous ont conclu sur le fait que plus il y a de fines, plus la surface de contact entre les particules est grande, ce qui entraîne une augmentation de la force de cohésion entre les particules et ainsi une mauvaise coulabilité du milieu.

Lumay [Lumay, 2012] a réalisé une étude sur cinq types de farines présentant toutes une distribution bimodale (un pic vers 20 μm et un autre vers 100 μm). Deux farines présentent des formes très différentes : la Francine fluide et la Francine complète. Les influences de la taille, de la distribution granulométrique et de la forme sur les propriétés d'écoulement ont été observées. Les mesures d'angles de repos statique et dynamique ont été réalisées ainsi que la détermination du rapport d'Hausner.

- La cohésion de la poudre augmente pour des particules inférieures à 50 μm . Ce phénomène est dû à la formation d'agrégats entre les petites particules. Plus le diamètre d_{10} est grand plus l'écoulement s'améliore. Cela permet d'en déduire que les plus petites particules se regroupent entre elles pour former des liaisons attractives nuisant à l'écoulement. C'est pourquoi la caractérisation de leur état physique est un paramètre important pour la compréhension de

l'écoulement. Pour les grosses particules (diamètre > 50 µm), la forme des particules a un impact significatif sur la cohésion de la poudre, plus la forme est sphérique plus la cohésion diminue.

- La mesure de l'élongation des grains (rapport de la longueur sur la largeur) permet de mettre en évidence la liberté de mouvement des particules entre elles. Plus les grains sont longs, plus la mobilité des grains est limitée par l'encombrement stérique entraînant une mauvaise coulabilité.

L'ajout d'une certaine quantité de fines particules permet dans cette étude d'améliorer la coulabilité. Deux explications sont avancées : les fines particules recouvrent les grosses, augmentant la distance entre les particules, et donc entraînant une baisse des forces interparticulaires. L'autre explication est que les fines se comportent comme des sphères diminuant donc les forces de friction entre les particules rugueuses (effet de roulement). La forme des fines particules peut influencer le comportement du mélange de poudres.

Plusieurs études portées sur les poudres pharmaceutiques ont aussi pu identifier l'amélioration des propriétés rhéologiques de la poudre avec l'ajout d'une faible quantité de fines [Molerus, 1978 – Elbicki, 1998]. Bien que les fines aient un comportement rhéologique médiocre à cause des forces d'interactions de Van der Waals, leur ajout permet à faible quantité l'amélioration des propriétés rhéologiques. D'autres études ont mis en évidence un seuil critique de fines après lequel la poudre devient cohésive et a des mauvaises propriétés d'écoulement [Tasirin, 2000]. Des études sur un mélange binaire de poudres pharmaceutiques [Kaerger, 2004- Soppela, 2010] ont conclu que la présence de petites particules améliore les propriétés rhéologiques de la poudre. Les fines, les petites particules, commandent principalement les caractéristiques physiques de la poudre et sont donc essentiellement responsables des propriétés rhéologiques d'une poudre. D'autres études [Molerus, 1978 – Elbicki, 1998- Valverde, 2000] ont aussi mis en évidence l'amélioration de la coulabilité de la poudre avec l'augmentation de la proportion de fines.

La cohésion de la poudre influence la fonction d'écoulement. Celle-ci dépend fortement du taux de fines, mais également de la contrainte de consolidation appliquée sur le lit de poudre. L'augmentation du taux de fines, induisant une poudre plus cohésive, correspond à une diminution de l'indice d'écoulement. L'évolution de la cohésion dépend fortement des forces de types Van der Waals. Les forces de Van der Waals sont connues pour surmonter les forces gravitationnelles des particules inférieures à environ 100 µm [Li, 2004]. Ainsi, pour les grosses particules (> 100 µm), la gravité est généralement supérieure aux forces interparticulaires attractives ce qui facilite la mise en écoulement. Lorsqu'on effectue un mélange de ces deux classes, les petites particules vont pouvoir adhérer facilement aux grosses et former des liaisons de type Van der Waals entre elles, induisant une forte cohésion du lit de poudre. Plus le taux de fines augmente au sein d'une même poudre, plus celle-ci sera cohésive et aura une mise en écoulement et un écoulement difficiles [Capece, 2015].

Lors du test dynamique VFR (cf. Chapitre 1, § 1.2.3) sur les différentes poudres, l'énergie nécessaire à déplacer la poudre (à l'écoulement) est mesurée. L'évolution de cette énergie mesurée peut être interprétée de différentes manières. Une faible énergie peut être représentative d'une poudre avec un meilleur écoulement [Mangal, 2016]. Alors que dans d'autres cas, une énergie importante correspond à un écoulement plus favorable de la poudre et donc une poudre faiblement cohésive [Leturia, 2014].

Ces différentes études ont permis de mettre en avant l'impact de la granulométrie, essentiellement les fines, et de la morphologie des particules sur la cohésion de la poudre responsable de son comportement rhéologique. La notion de « fines » est spécifique à chaque étude mais une taille inférieure à 100 µm est souvent retenue [Castellanos, 2005- Liu, 2015].

1.3.2 Influence de l'humidité et de la température

1.3.2.1 Influence de l'humidité

D'une façon générale, les conditions de fabrication et de stockage, et plus particulièrement la température et l'humidité relative (HR), sont des paramètres fondamentaux pour la mise en œuvre des poudres [Tita-Goldstein, 2013].

Emery [Emery, 2009] a réalisé une étude sur des composants pharmaceutiques tels que l'aspartame et l'Hydroxy-Propyl-Methyl-Cellulose (HPMC). La teneur en eau de ces différents composants n'évolue pas de la même manière en fonction du taux d'humidité relative et du type de poudre. Lors de la mesure de la densité tassée et de l'angle de repos, on observe que l'indice de Carr, l'angle de repos et l'angle de repos dynamique sont insensibles à l'humidité pour l'HPMC contrairement à l'aspartame. Les essais de cisaillement donnent des résultats pertinents contrairement à la mesure de l'indice de Carr et de l'angle de repos. On peut noter que l'effet de l'humidité sur l'indice d'écoulement n'est pas le même pour l'HPMC et l'aspartame. L'augmentation de l'humidité dans la poudre dégrade l'écoulement de l'HPMC et au contraire augmente celui de l'aspartame. Emery [Emery, 2009] explique cette observation comme un effet de lubrification sur la surface des grains : les aspérités sont recouvertes par une couche liquide.

L'influence de la taille des particules dépend aussi de l'humidité au sein d'une poudre. En fonction du type de poudre et de l'humidité relative dans l'air, on constate que la teneur en eau au sein de certaines poudres augmente avec l'humidité relative. De plus, il faut moins d'eau pour entourer des grosses particules à faible surface spécifique et plus si les particules sont fines. Pour un même matériau et pour une même humidité relative, les petites particules vont alors beaucoup plus se charger en eau que les grosses particules, ce qui peut entraîner une mauvaise coulabilité [Stoklosa, 2012].

1.3.2.2 Influence de la température

Une étude de Ripp [Ripp, 2010] a été faite sur des poudres de lactose en cellule de cisaillement. Pour des températures comprises entre 20 et 80°C la fonction d'écoulement est la même pour la poudre de lactose. Alors que pour une température de 120°C, l'écoulement est facilité. Cette même étude de Ripp [Ripp, 2010] a également été menée sur le café à 25°C et 50°C. On constate que la poudre a une bonne coulabilité pour les hautes températures (50°C).

Chirone [Chirone, 2016] a réalisé une étude sur des échantillons de différentes tailles granulométriques d'une poudre céramique. La température a très peu d'influence sur la poudre céramique. On peut observer une très faible variation de la fonction d'écoulement en fonction de la température. Contrairement au changement de taille : on passe d'une poudre très cohésive (20-38 µm) à une poudre qui s'écoule librement pour des particules supérieures à 88 µm. La température n'a donc pas d'influence significative sur les poudres céramiques.

1.3.3 Influence de l'énergie de surface

Lapcik [Lapcik, 2015] a étudié trois poudres de lait : du lait écrémé (environ 15 μm), du lactose (80 μm) et du lactose déminéralisé (80 μm). Les trois présentent une morphologie sphérique et ont la même surface spécifique ($0,6 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$). L'énergie de surface est mesurée par Chromatographie Gazeuse Inverse. Rappelons que l'énergie de surface totale est la somme de l'énergie de surface dispersive et polarisable. L'énergie de surface dispersive prédomine pour toutes les poudres, ceci confirme bien que les forces de London (Van der Waals) sont prédominantes. Plus il y a de fines, plus l'énergie de surface est grande. Le lactose déminéralisé présente une grande énergie de surface ($175 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$) par rapport au lait écrémé ($120 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$) et au lactose ($50 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$). Après analyse de cisaillement à l'aide du FT4 (température 23°C et humidité de l'air 43%), il est mis en évidence que plus l'énergie surfacique de la particule est grande, plus la poudre est cohésive.

Plusieurs autres études ont permis d'observer l'influence de l'énergie de surface dans un mélange. Si on dispose de deux matériaux d'énergies surfaciques différentes, l'attraction des particules entre elles est plus grande induisant le recouvrement des fines sur les grosses particules [Rowe, 1990].

La lubrification de la poudre avec un agent lubrifiant, tel que le stéarate de Magnésium (MgSt), a un effet sur l'énergie de surface [Swaminathan, 2006]. L'énergie de surface a été mesurée par CGI. La poudre de cellulose microcristalline (CMM) a une énergie de surface de $67 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$. Un mélange de 5% de MgSt, dont l'énergie de surface est égale à $41 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$, avec le CMM a été réalisé. Le mélange MgSt-CMM voit son énergie de surface diminuée par rapport à la CMM seule, passant de $67 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$ à $49 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$. Le lubrifiant a donc recouvert les sites de haute énergie à la surface du CMM. La même étude a été réalisée en utilisant à la place du CMM le lactose dont l'énergie de surface est de $41 \text{ mJ} \cdot \text{m}^{-2}$. Le lactose et le MgSt ont une énergie de surface proche et lors du mélange de lactose et de 5% de MgSt il n'y a pas de changement de l'énergie de surface.

L'énergie de surface va donc influencer l'organisation des différents grains dans un mélange de poudres et ainsi modifier l'écoulement de celui-ci. La mesure de l'énergie de surface d'une poudre peut être essentielle pour la compréhension des phénomènes microscopiques influençant l'état macroscopique.

1.3.4 Influence sur le remplissage

Lors de l'écoulement à travers une trémie ou un silo, la formation d'une arche au niveau de l'orifice bloque l'écoulement de la poudre et impacte le remplissage. Ce phénomène peut être causé par un emboîtement des particules entre elles (interlocking), ceci est donc essentiellement dû à la morphologie des particules : plus une particule est sphérique, meilleur est le remplissage [Janda, 2008]. La formation d'une arche peut aussi être causée par la forte cohésion de la poudre [Schulze, 2011] due à la faible taille des particules.

Plusieurs auteurs [Flemming, 1995] ont recherché la taille de particules à ne pas dépasser pour éviter le blocage de la poudre au niveau de l'ouverture du moule. La taille maximale recommandée est de $1/3$ de celle du diamètre d'ouverture pour assurer un remplissage reproductible et uniforme.

La qualité du remplissage des moules de presse dépend des caractéristiques rhéologiques de la poudre,

qui elles-mêmes dépendent de caractéristiques physico-chimiques de la poudre. Certaines études [Freeman, 2008- Wu, 2012] ont mis en évidence la nécessité d'avoir de bonnes propriétés d'écoulement pour obtenir un remplissage uniforme et reproductible.

Les travaux de Freeman [Freeman, 2009] ont mis en évidence les propriétés physiques que doit présenter une poudre afin d'avoir un remplissage optimal des moules de presses (Figure 33) : une faible cohésion (diminution des forces d'interactions attractives), une forte perméabilité (permettant à l'air de s'échapper facilement du moule) et une faible friction et/ou enchevêtrement (interlocking) lorsque les particules se déplacent les unes par rapport aux autres.

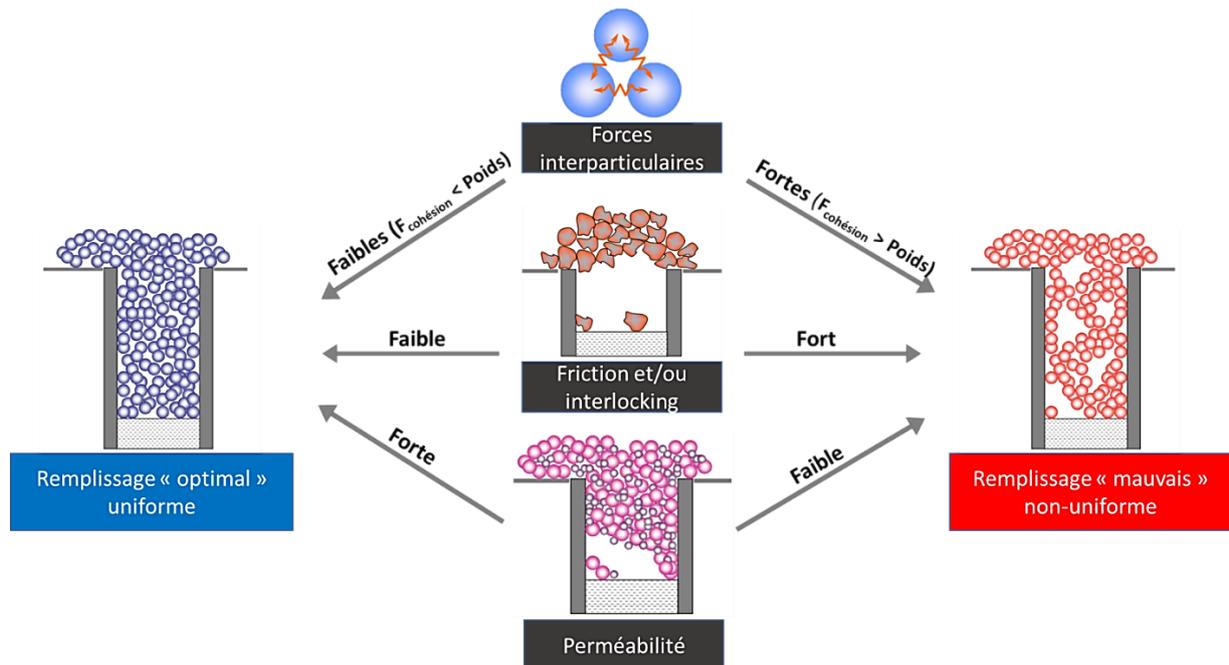


Figure 33 : Conditions de remplissage des moules de presses [Freeman, 2009].

1.4 CONCLUSION

Ce chapitre a présenté un état de l'art concernant :

- les principales caractéristiques physico-chimiques d'une poudre ainsi que leur mode d'évaluation (distribution granulométrique, forme des grains, densités, propriétés de surface, etc.),
- les propriétés rhéologiques d'une poudre et leurs mesures (méthodes permettant de caractériser l'écoulement et la mise en écoulement),
- les liens identifiés dans la littérature entre caractéristiques physico-chimiques et propriétés rhéologiques.

Les différentes études décrites ici ont mis en évidence l'impact primordial de la morphologie et de la granulométrie. Plus une poudre est constituée de fines, plus elle est cohésive. De plus il existe dans certains cas la présence d'un seuil à partir duquel le comportement rhéologique ne varie plus. Au niveau

de la morphologie, on différencie la forme globale des particules de la morphologie de leur surface, représentative de la rugosité. Ces études ont montré que plus une poudre est constituée de particules sphériques, mieux elle s'écoule du fait d'une diminution des forces de résistance telles que les imbrications. Au niveau de la morphologie de surface, la présence de particules rugueuses dégrade la coulabilité du fait de la présence des forces de frottement interparticulaires. La granulométrie et la morphologie peuvent influencer conjointement les propriétés rhéologiques d'une poudre. Dans certains cas, l'une prédomine sur l'autre en fonction de la nature de la poudre étudiée. Les études sur l'énergie de surface ont permis de mettre en évidence l'impact de la nature de la poudre sur les liaisons interparticulaires influençant la coulabilité. L'humidité et la température sont des paramètres extrinsèques à la poudre, mais peuvent influencer fortement la coulabilité d'une poudre. Leur connaissance lors de l'étude est primordiale pour pouvoir les contrôler dans le but qu'ils n'affectent pas la coulabilité et que cette dernière ne soit dépendante que des caractéristiques physiques intrinsèques de la poudre pour pouvoir répondre à la problématique industrielle.

Dans le procédé actuellement envisagé pour la fabrication du combustible, on réalise un cobroyage des poudres de PuO_2 et d' UO_2 . Ceci conduit à l'obtention d'un mélange broyé qui n'a pas les propriétés adaptées pour un remplissage reproductible des moules de presses annulaires, rendu nécessaire par l'absence de rectification. Comme évoqué en introduction, il s'agit donc d'identifier une opération de préparation de la poudre, intermédiaire et située entre le broyage et la mise en forme, qui permette de modifier ses caractéristiques physico-chimiques afin d'en améliorer l'écoulement.

La poudre d' UO_2 présente des caractéristiques physico-chimiques très spécifiques, par exemple sa densité théorique très élevée (voisine de 10,96). La recherche bibliographique qui a été menée a fait apparaître le manque d'informations sur des études rhéologiques concernant la poudre d' UO_2 . Par ailleurs, les équipements disponibles au Laboratoire UO_2 apparaissent bien adaptés pour évaluer les principales caractéristiques physico-chimiques identifiées des poudres influençant significativement leurs propriétés rhéologiques : la distribution granulométrique et la morphologie des agglomérats constituent des paramètres de premier ordre pour les poudres d' UO_2 . Ces deux paramètres seront étudiés dans la suite des travaux. On cherchera à identifier l'influence de la proportion de fines (particules inférieures à 100 μm) sur les propriétés rhéologiques des poudres d' UO_2 et la quantité de fines acceptable pour répondre à un remplissage uniforme et reproductible. Le second paramètre significatif qui sera étudié est la modification de l'état de surface des particules. On cherchera à déterminer lequel de ces deux paramètres est facile à modifier au sein d'un milieu radioactif et qui a aussi le plus fort impact sur les propriétés rhéologiques des poudres d' UO_2 .

Nous allons maintenant décrire les différentes techniques de caractérisation mises en œuvre dans le cadre de la thèse, ainsi que les équipements associés.

CHAPITRE II : MATERIELS ET METHODES

2.1	Équipements de caractérisation physique	48
2.1.1	Granulomètre voie sèche	48
2.1.2	Observation de la morphologie des particules	49
2.2	Équipements de mesures rhéologiques	49
2.2.1	Tests de mise en écoulement : passage d'un état statique à un état dynamique	50
2.2.2	Mesure de densité et compressibilité	54
2.2.3	Tests d'écoulement : régime dynamique	56
2.3	Étude préliminaire.....	59
2.3.1	Contraintes de manipulation	59
2.3.2	Intercomparaison des cellules de cisaillement : FT4 et Schulze	59
2.3.3	Influence de l'humidité.....	65
2.3.4	Protocole et enchainement des caractérisations rhéologiques des poudres d'UO ₂	67
2.4	Préparation et caractérisation des granulés	68
2.4.1	Granulation mécanique	68
2.4.2	Concassage et tamisage : FREWITT	70
2.5	Conclusion	72

Chapitre II : Matériels et méthodes

Ce chapitre présente d'abord les principales méthodes mises en œuvre au Laboratoire UO₂ pour déterminer les caractéristiques physiques, mais aussi les propriétés rhéologiques de poudres d'UO₂. Des études préliminaires sur poudres d'UO₂ sont ensuite présentées. Enfin, un protocole de fabrication de granulés est mis en place pour la réalisation d'une étude à effets séparés.

2.1 ÉQUIPEMENTS DE CARACTERISATION PHYSIQUE

2.1.1 Granulomètre voie sèche

La granulométrie de la poudre est mesurée avec un granulomètre laser voie sèche de marque Malvern, modèle Mastersizer 3000. Cet équipement est placé en Boîte à Gants (BAG) pour pouvoir réaliser les mesures sur la poudre d'UO₂ (Figure 34). Il est à noter que cette technique est sensible au volume des particules et permet donc de caractériser la distribution granulométrique des particules en pourcentage volumique.

Le principe de cet appareil est le suivant : l'échantillon à étudier est préalablement dispersé dans un courant d'air à une pression donnée puis traverse une cellule éclairée par un faisceau laser. Un phénomène de diffraction du faisceau se produit par interaction avec les particules en suspension. En utilisant la théorie de Mie, la distribution granulométrique des particules est obtenue à partir de l'image de diffraction. En considérant les particules sphériques, le diamètre médian volumique et divers diamètres moyens peuvent ainsi être déterminés. Toutes les mesures sont faites à une pression de dispersion de 0,1 bar afin de ne pas détruire les agglomérats.



Figure 34 : Granulomètre voie sèche Mastersizer 3000 en BAG.

L'inconvénient de cette méthode est qu'on ne peut pas observer les fines particules de taille submicronique. Celles-ci ont en effet tendance à se réagglomérer avant de traverser le faisceau laser. L'appareil étant placé en BAG, l'aspiration qu'il génère nécessite une gestion de la pression de la BAG pendant les mesures. La poudre analysée n'est pas récupérable pour d'autres caractérisations car elle est envoyée dans un pot décanteur.

2.1.2 Observation de la morphologie des particules

La morphologie des grains est déterminée par l'acquisition d'images à différentes échelles. Pour cela un Microscope Electronique à Balayage (MEB) Philips XL30 est utilisé pour des photos à différents grossissements. Le MEB permet une évaluation qualitative de l'état de surface des particules, mais ne donne pas une mesure statistique précise de leur rugosité en raison de la distribution de leur taille, de la disparité de leurs morphologies et de la disposition des particules (les particules sont enchevêtrées).

2.2 ÉQUIPEMENTS DE MESURES RHEOLOGIQUES

Dans le cadre de cette thèse, les tests de mesures rhéologiques seront partagés en deux catégories : le régime quasi-statique et le régime dynamique. Le premier comporte ceux qui permettent de comprendre le passage de la poudre d'un état statique à un état dynamique : ce sont les tests de mise en écoulement. Le second comporte les tests qui caractérisent le comportement de la poudre en régime dynamique permettant de mesurer les propriétés de la poudre en mouvement : ils sont appelés tests d'écoulement.

2.2.1 Tests de mise en écoulement : passage d'un état statique à un état dynamique

2.2.1.1 Cellule de cisaillement FT4

Une grande partie des mesures a été réalisée à l'aide du rhéomètre à poudre FT4 de Freeman Technology (Figure 37). Le rhéomètre FT4 peut réaliser différents types de mesures. Dans cette partie on détaillera uniquement la cellule de cisaillement ; les autres fonctionnalités seront décrites plus loin (cf. Chapitre 1, § 1.2.3 et Chapitre 2, § 2.2.3.2).

La cellule de cisaillement du FT4 peut être utilisée dans deux géométries différentes : l'une de 48 mm de diamètre et l'autre de 24 mm de diamètre. Différents récipients permettent d'accueillir la poudre. Pour la cellule de 48 mm de diamètre, on dispose d'un récipient de 85 mL. Pour la cellule de 24 mm de diamètre on dispose de deux récipients : 1 mL et 10 mL. Le rhéomètre FT4 en mode cisaillement propose donc 3 volumes de poudres (Figure 35) : 85 mL, 10 mL et 1 mL.

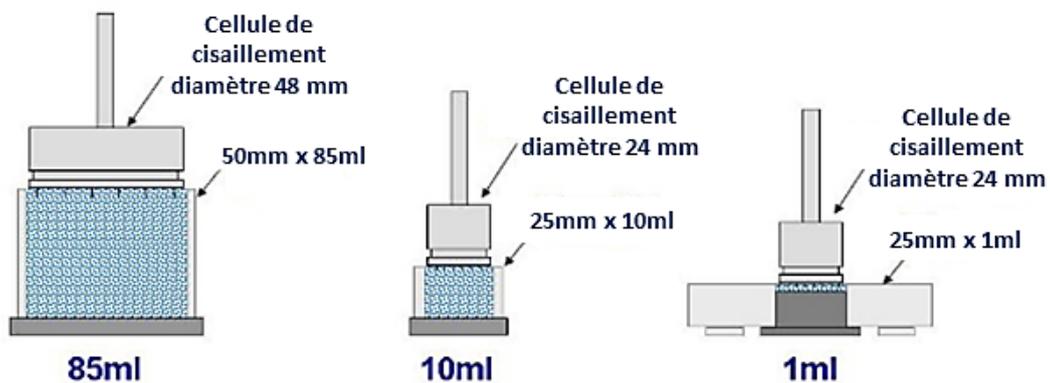


Figure 35 : Différentes configurations de la cellule de cisaillement du FT4.

Lors du test de cisaillement on différencie deux forces (Figure 36) : la force normale appliquée et la force tangentielle mesurée. En divisant ces forces par la surface du lit de poudre, on obtient respectivement la contrainte normale σ et la contrainte tangentielle τ (ou de cisaillement).

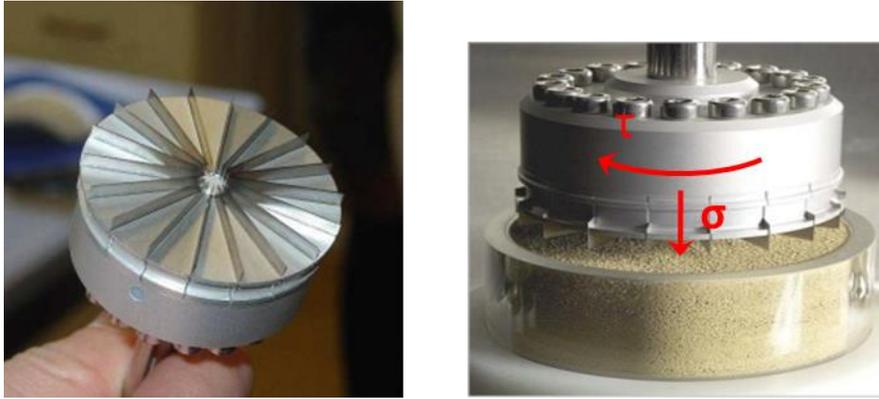


Figure 36 : Cellule de cisaillement du FT4 [Freeman, 2009].

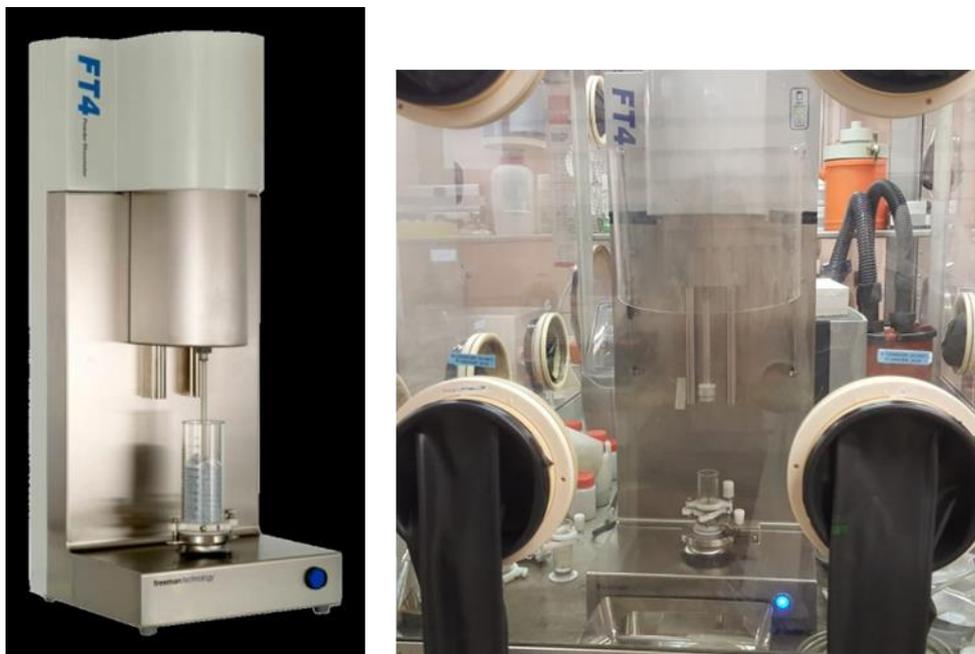


Figure 37 : FT4 (image Freeman Technology) et photographie de l'équipement en BAG

Un essai de cisaillement peut être décrit comme suit (Figure 39) : le récipient est taré puis rempli délicatement de poudre. Suit systématiquement en premier temps une étape de conditionnement utilisant la pale afin de conditionner la poudre (Figure 38) : elle implique le déplacement de la lame dans l'échantillon pour brasser doucement le lit de poudre, pendant un nombre de cycles défini par l'utilisateur, avant de la retirer lentement. Un cycle consiste en un mouvement vers l'intérieur et vers l'extérieur de la lame dans le lit de poudre avec un mouvement de rotation constant. Afin d'éviter que la lame ne touche la base du récipient durant le conditionnement, la direction du mouvement de la lame est inversée dès qu'elle se trouve à moins de 1 mm du fond. Durant la descente, la pale aura un angle de 5° afin de minimiser un éventuel effet de compaction de la poudre. De même, lors de sa remontée, la pale présentera un angle de -5° afin de soulever puis de laisser retomber la poudre doucement. Cette

étape de conditionnement permet de supprimer l'histoire de la poudre et d'obtenir une poudre uniforme et peu compacte, dans un état pouvant être facilement reproduit [Freeman, 2007]. Dans la présente étude, l'étape de conditionnement comporte trois cycles successifs.

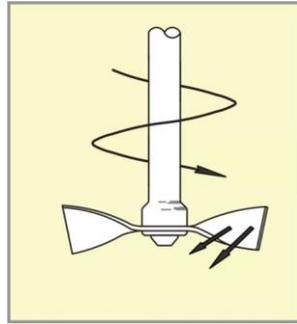


Figure 38 : Mouvement de la pale lors du conditionnement [Freeman, 2007].

Après l'étape de conditionnement, la pale est remplacée par un piston poreux qui va comprimer la poudre jusqu'à une contrainte normale équivalente à la contrainte de préconsolidation définie en début de test, comme décrit dans le Chapitre 1, § 1.2.5. Le piston est poreux afin de permettre à l'air contenu dans la poudre de s'échapper uniformément sur la surface du lit de poudre durant la compression. Une fois la poudre consolidée à la contrainte normale visée, le piston poreux est remplacé par la cellule de cisaillement et un arasement de la poudre est réalisé grâce à un mécanisme permettant d'aplanir la surface avant les mesures de cisaillement.

La cellule de cisaillement descend jusqu'à insérer les ailettes dans le lit de poudre puis applique une contrainte normale sur celui-ci. Elle effectue alors une rotation lente induisant une contrainte de cisaillement croissante. Le lit de poudre s'oppose à la rotation de la cellule de cisaillement, ce qui entraîne l'augmentation de la contrainte de cisaillement jusqu'à ce qu'il y ait rupture du lit de poudre. La cellule de cisaillement arrête sa rotation à cette valeur maximale de la contrainte de cisaillement. Cette contrainte de cisaillement critique correspond donc à la rupture du lit de poudre pour une contrainte normale donnée. Le protocole du test de cisaillement est similaire pour les essais de pré-cisaillement et ceux de cisaillement (cf. Chapitre 1, § 1.2.5). Ce test est normalisé [ASTM-D7891-15, 2015].

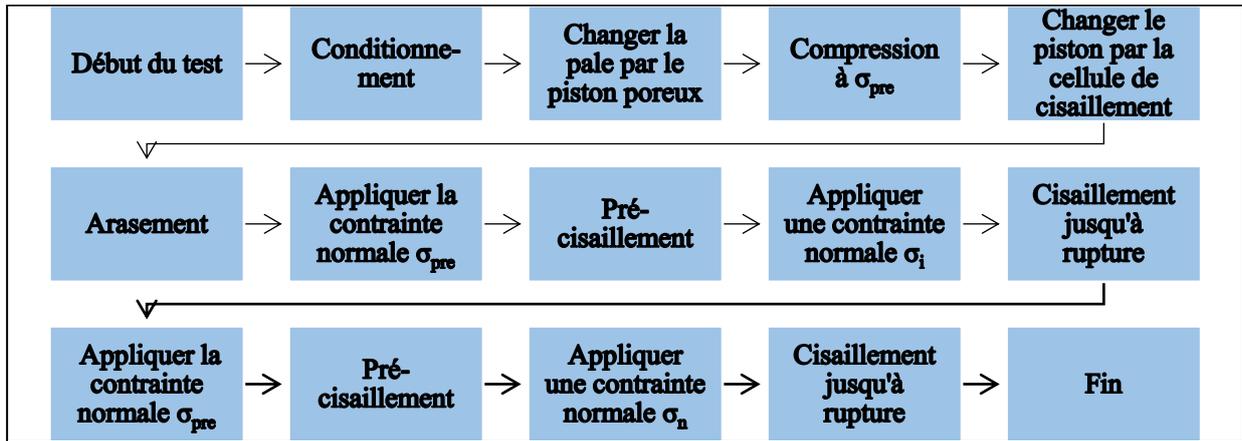


Figure 39 : Synoptique d'un test de mesure de cisaillement au FT4 (avec σ_{pre} la contrainte de préconsolidation pour l'étape de précisaillement).

2.2.1.2 Cellule de cisaillement de Schulze

La cellule de Schulze (Figure 41) présente une géométrie différente de celle du FT4. Elle est de forme annulaire et la cellule utilisée accueille un volume de poudre de 30 mL.

La Figure 40 présente le fonctionnement de la cellule de Schulze suivant la norme ASTM D6773 [ASTM-D6773-16, 2008]. Une force normale, F_N est exercée sur la tige (3), au centre de la cellule de cisaillement, la force est transmise à la poudre à travers le couvercle appliquant ainsi la contrainte normale sur toute la poudre. Une forme annulaire de la cellule a été choisie pour éviter le gradient de cisaillement à la surface conduisant à un cisaillement quasi-nul au centre. Le cisaillement de l'échantillon est réalisé en faisant tourner la base (5) à une vitesse angulaire w , tandis que le couvercle de la cellule de cisaillement est bloqué par deux tiges horizontales (4). Chaque tige horizontale est fixée à une poutre de charge, afin que les forces F_1 et F_2 agissant sur les tiges puissent être mesurées. Le déplacement rotationnel de la base par rapport à la cellule de cisaillement crée ainsi une déformation du lit de poudre par cisaillement : une contrainte de cisaillement τ est alors déterminée par l'intermédiaire des forces exercées sur les tiges horizontales ($F_1 + F_2$). La partie inférieure du contenant est striée afin d'éviter le phénomène de glissement de la poudre lors du cisaillement. Cette cellule de cisaillement est adaptée pour des poudres ayant une distribution granulométrique de 0 à 1 mm.

Les avantages de cette morphologie annulaire seront présentés dans une comparaison avec la cellule de cisaillement du FT4.

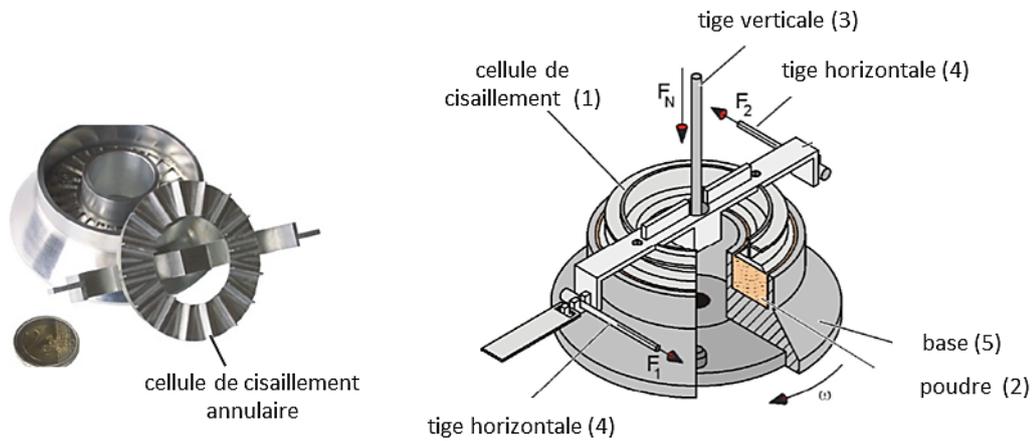


Figure 40 : Cellule de cisaillement de Schulze [Schulze, 2011].



Figure 41 : Cellule de Schulze et photographie de l'équipement en BAG.

2.2.2 Mesure de densité et compressibilité

2.2.2.1 Voluméomètre

La mesure de densité se fait par l'intermédiaire d'un voluméomètre (SAV 2003 Stampf Volumeter). On mesure d'abord la masse volumique apparente en vrac, c'est-à-dire que la poudre est dans un état dit aéré. Pour cela on verse doucement un volume V_1 égal à 50 mL de poudre dans une éprouvette puis on relève la masse de poudre introduite. L'éprouvette est ensuite placée sur le voluméomètre et suite à des chocs successifs verticaux appliqués par l'appareil, la poudre va se tasser jusqu'à atteindre une organisation compacte : on obtient ainsi un volume V_2 . Ce réarrangement de la poudre est dû à

l'évacuation de l'air interstitiel. L'utilisation d'un voluménoètre permet ce passage d'une densité aérée à une densité tassée en suivant un protocole normalisé : 2400 tassements successifs sont effectués suivant la norme AFNOR NF ISO 9161 [AFNOR, 2006].



Figure 42 : Voluménoètre.

On détermine ainsi :

$$\text{la masse volumique aérée } \rho_a = \frac{m}{V_1} \quad \text{Équation 36}$$

$$\text{la masse volumique tassée } \rho_t = \frac{m}{V_2} \quad \text{Équation 37}$$

Avec :

m : masse de poudre (en g),

V_1 : volume occupé par la poudre non tassée (en cm^3),

V_2 : volume occupé par la poudre après tassement par 2400 coups (en cm^3).

À partir de la mesure des densités aérée et tassée, deux indices peuvent être calculés : l'indice de Carr et le rapport d'Hausner.

$$\text{Indice de Carr (\%)} = 100 \times \left(1 - \frac{\text{masse volumique aérée}}{\text{masse volumique tassée}} \right) \quad \text{Équation 38}$$

$$\text{Rapport d'Hausner} = \frac{\text{masse volumique tassée}}{\text{masse volumique aérée}} \quad \text{Équation 39}$$

2.2.2.2 Compressibilité FT4

Le rhéomètre FT4 peut aussi être utilisé en mode compression où l'on mesure dans ce cas la compressibilité de la poudre sous contrainte (cf. Chapitre 1, § 1.2.6).

La poudre est versée dans une cellule cylindrique de 25 mm de diamètre et d'un volume de 10 mL. Un piston de compression poreux de 23,5 mm de diamètre est appliqué sur la poudre. La variation de la hauteur de la colonne de poudre sous contrainte est mesurée, elle représente le pourcentage de

compressibilité. Les essais sont réalisés pour des contraintes allant de 1 kPa à 15 kPa.

$$\text{Compressibilité(\%)} = 100 \cdot \frac{\text{masse volumique après compression}}{\text{masse volumique aérée (initiale)}} \quad \text{Équation 40}$$

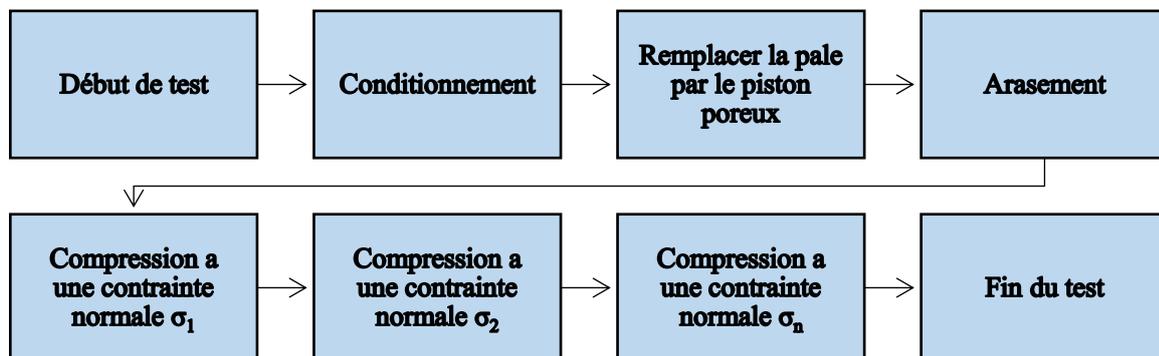


Figure 43 : Protocole du test de compressibilité FT4.

2.2.3 Tests d'écoulement : régime dynamique

Le rhéomètre FT4 de Freeman Technology a pour but de mesurer les différentes propriétés d'écoulement des poudres, y compris en régime dynamique.

Rappelons que préalablement à tous les tests (dynamiques et cisaillement) réalisés, l'opération de conditionnement de la poudre est effectuée (cf. Chapitre 2, § 2.2.1.1). Il a pour but d'homogénéiser la poudre et d'effacer son historique afin de partir d'un état initial identique à chaque début de test.

2.2.3.1 Test de perméabilité

La mesure de perméabilité permet d'évaluer la capacité d'une poudre à laisser passer l'air, à différentes contraintes de consolidation, pour une vitesse constante. Pour le test, on dispose d'un récipient de 25 mm de diamètre (volume de 10 mL), d'une base d'aération poreuse reliée au module d'aération, d'un piston poreux de 24 mm de diamètre et d'une pale de 23,5 mm de diamètre pour le conditionnement. Après le conditionnement préliminaire de la poudre, une contrainte normale variant entre 1 et 15 kPa est appliquée au sommet de la colonne de poudre. Une vitesse d'écoulement d'air (q) constante de $2 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ traverse le lit de poudre en continu. On mesure alors la chute de pression (ΔP) dans le lit de poudre en fonction de la contrainte normale appliquée (σ) (Figure 44).

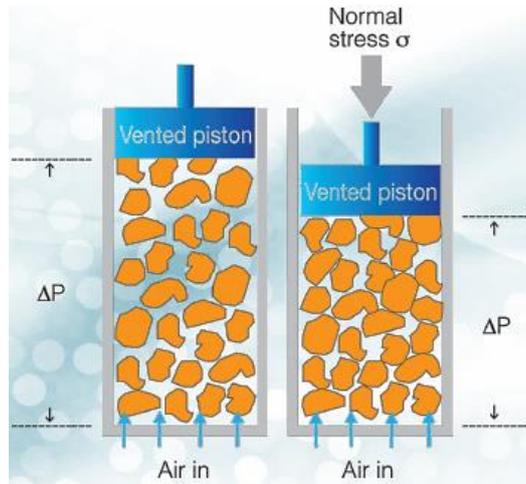


Figure 44 : Schéma de principe du test de perméabilité FT4 [Freeman, 2007].

La perméabilité du lit de poudre k peut ainsi être calculée à partir de la perte de charge (ΔP) pour des contraintes normales allant de 1 à 15 kPa :

$$k = \frac{q \cdot \mu \cdot L}{\Delta P} \quad \text{Équation 41}$$

Avec :

k la perméabilité (cm^2),

q la vitesse du flux d'air ($\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$),

μ la viscosité de l'air ($\text{Pa} \cdot \text{s}$),

L la hauteur du lit de poudre (cm),

ΔP la chute de pression à travers le lit de poudre (Pa).

2.2.3.2 Mesures dynamiques : Variable Flow Rate VFR (Rhéomètre FT4)

Lors de l'utilisation du rhéomètre FT4 pour le test VFR (décrit dans le Chapitre 1, § 1.2.3), le récipient de 25 mL et la pale de 25 mm de diamètre sont utilisés. Le protocole de base proposé par Freeman Technology (Figure 45) consiste à effectuer 7 tests à une même vitesse en bout de pale ($100 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$), suivis de 4 tests à différentes vitesses : $100 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$, $70 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$, $40 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ et $10 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$. Au total, 11 tests successifs sont donc effectués. Les différents indices sont obtenus comme suit :

- Le SI est le rapport de l'énergie du test n° 7 à $100 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$ sur l'énergie du test n° 1 à $100 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$.
On distingue trois cas :
 - o $SI = 1$ la poudre est stable : elle n'est pas affectée par l'écoulement,

- $SI < 1$ la poudre est instable : ceci peut être causé par la désaération, l'agglomération, la ségrégation, l'humidité et/ou les forces électrostatiques,
 - $SI > 1$ la poudre est instable : la cause peut être l'attrition, la désagglomération et/ou l'ajout d'additif.
- L'indice BFE est l'énergie d'écoulement pendant la descente de la pale lors du test n° 7 à 100 mm.s^{-1} . Pour une meilleure comparaison des poudres entre elles, le NBFEE peut être utilisé : c'est le rapport entre le BFE et la masse de la poudre.
 - Le FRI est le rapport entre l'énergie du test n° 11 à 10 mm.s^{-1} sur le test n° 8 à 100 mm.s^{-1} . En fonction de la valeur du FRI on peut classer la poudre [Freeman, 2007] :
 - pour $FRI > 3$: la poudre est cohésive,
 - pour $1,5 < FRI < 3$: la plupart des poudres se trouvent dans cette gamme qui correspond à une cohésion modérée,
 - pour $FRI = 1$: la poudre est non cohésive et composée de grosses particules,
 - pour $FRI < 1$: on est dans un état pseudo-plastique (voire newtonien), observé essentiellement lors d'ajout de lubrifiant.
 - Le SE correspond à l'énergie mesurée lors de la remontée de la pale. Ainsi on distingue 3 cas :
 - $SE < 5 \text{ mJ.g}^{-1}$: faible cohésion
 - $5 \text{ mJ.g}^{-1} < SE < 10 \text{ mJ.g}^{-1}$: moyenne cohésion
 - $SE > 10 \text{ mJ.g}^{-1}$: forte cohésion

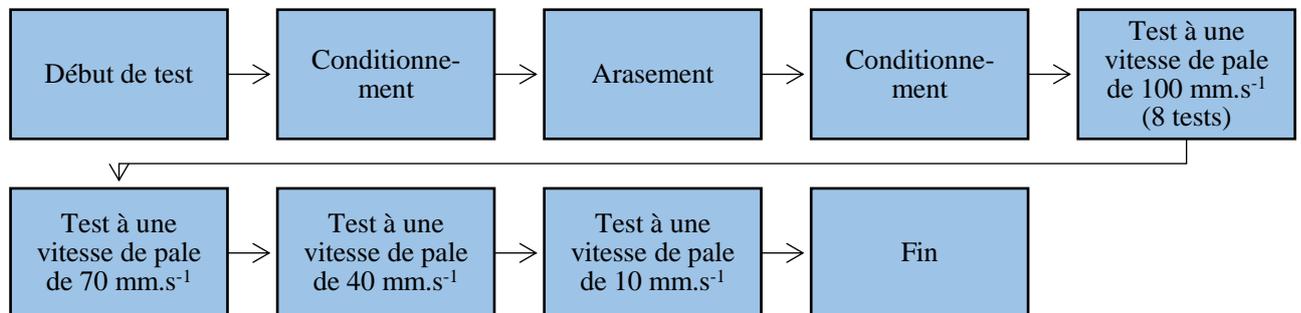


Figure 45 : Protocole de mesure d'un test VFR (FT4).

Remarque : Cette mesure d'énergie est dépendante du volume du récipient choisi. Les valeurs de BFE et de SE obtenues, c'est-à-dire la mesure des énergies d'écoulements, pour un volume de 85 mL ne seront pas similaires à celles obtenues à partir d'un volume de 10 mL.

2.3 ETUDE PRELIMINAIRE

Différents paramètres extrinsèques à la poudre peuvent influencer son comportement rhéologique ce qui justifie de réaliser une étude préliminaire permettant de comprendre l'influence de ces facteurs externes. On pourra ainsi mettre en place un protocole d'études des caractéristiques physiques de la poudre d' UO_2 en fonction de ses propriétés rhéologiques tout en contrôlant les paramètres environnementaux et les équipements de mesures.

2.3.1 Contraintes de manipulation

Dans cette thèse, toutes les expériences se feront sur des poudres nucléaires (UO_2). Les travaux seront alors réalisés en milieu contaminant et il est donc nécessaire de prendre en compte les contraintes de manipulations et de gérer le risque radiologique. A cela s'ajoute la nécessité de gérer précisément la matière nucléaire, qui fait l'objet d'un suivi comptable. Les différents équipements sont placés en Boîte à Gants (BàG). Les BàG sont des enceintes étanches ventilées permettant de travailler sur des poudres contaminantes. L'observation et la manipulation des tests se font à travers une paroi transparente et l'utilisation de gants. De plus, au sein de ces BàG, il est difficile de manipuler et de réaliser les tests ainsi que la maintenance des appareils. Pour un même échantillon l'enchaînement de mesures et donc l'utilisation de différents équipements nécessite de transférer la matière entre les Boîtes à Gants. Il faut donc prendre des précautions lors des manipulations des poudres. De plus, lors de la manipulation de la poudre, des poussières sont produites et peuvent s'accumuler dans des zones difficiles d'accès en BàG. Ainsi, il est préférable de diminuer la quantité de poudre à caractériser. Ce point répond aussi à la problématique pour laquelle on cherche à diminuer la quantité de poudres plutonifères à caractériser in fine. En conséquence, ces contraintes de manipulation guideront les choix des techniques de caractérisation, selon les deux axes suivants :

- Favoriser des méthodes de caractérisation requérant une quantité minimale de poudre ;
- Favoriser des dispositifs expérimentaux polyvalents, permettant de réaliser plusieurs tests, en minimisant les déplacements et manipulations de la poudre.

2.3.2 Intercomparaison des cellules de cisaillement : FT4 et Schulze

Comme nous l'avons vu plus haut, on dispose au sein du laboratoire de quatre cellules de cisaillement de volumes différents (Figure 46) : on dispose pour le FT4 de trois volumes de cellule : 1, 10 et 85 mL et d'une cellule de Schulze de 30 mL. Une étude comparative a été effectuée avec deux poudres d' UO_2 afin d'observer l'impact du volume de la cellule sur la qualité des résultats.

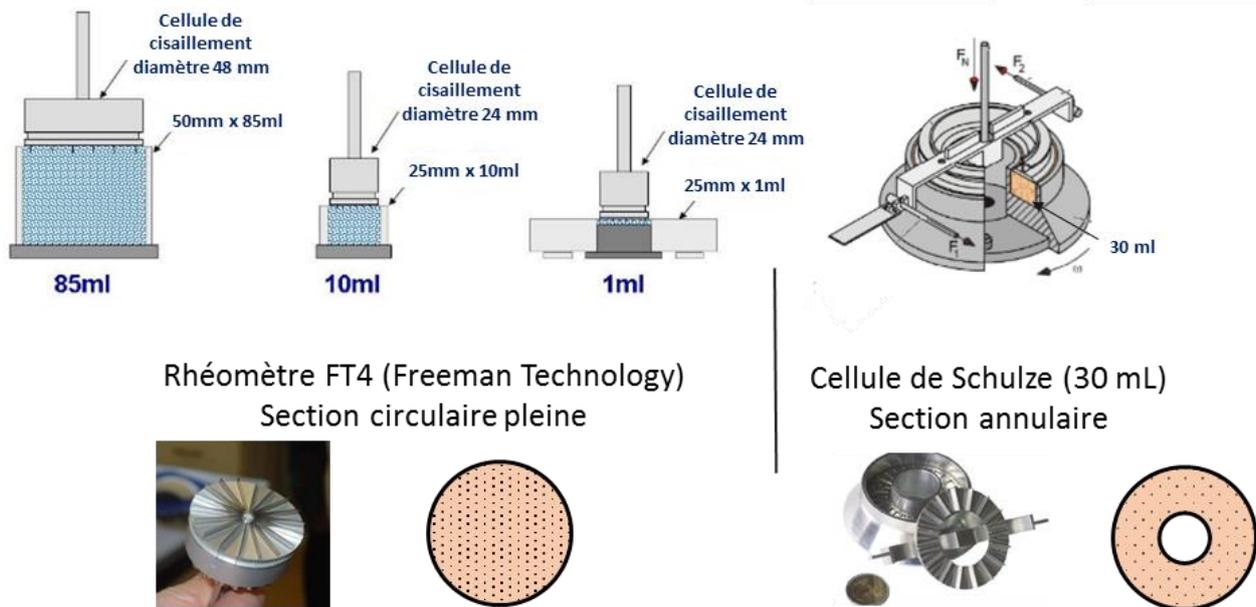


Figure 46 : Récapitulatif des différents volumes et géométries des cellules de cisaillement FT4 et Schulze.

2.3.2.1 Préparation et déroulement du test de cisaillement en fonction de la géométrie de la cellule de cisaillement

Une différence significative entre ces deux cellules de cisaillement est leur géométrie. La cellule de Schulze présente une géométrie annulaire alors que les cellules du FT4 ont une forme circulaire pleine. Grâce à sa géométrie annulaire, la cellule de Schulze effectue un mouvement de cisaillement de manière presque uniforme sur la surface du lit de poudre tandis que le rhéomètre FT4 a un mouvement de cisaillement non identique sur toute la surface. En effet, on peut observer un gradient de la contrainte de cisaillement à la surface : lorsque l'on se rapproche du centre, la contrainte de cisaillement peut être considérée comme nulle. Ceci conduit à supposer que l'état de cisaillement critique n'est donc pas complètement atteint pour le FT4 induisant une contrainte de cisaillement critique plus faible.

Compte-tenu de la quantité limitée de poudre pour réaliser toutes les mesures sur un même échantillon, il est nécessaire d'établir un protocole pour l'enchaînement des mesures afin que chacune d'elles ne perturbe pas la mesure suivante. Ainsi, pour un échantillon donné, la poudre subira les tests avec les contraintes de préconsolidation par ordre croissant : 3, 6, 9 puis 15 kPa. La réutilisation d'un nouvel échantillon pour chaque contrainte de préconsolidation est réductrice.

Au niveau de la préparation d'échantillon (Figure 47) avec la cellule de Schulze, l'arasement est effectué sur une poudre aérée qui n'a pas été préalablement consolidée. Puis lors du premier test de cisaillement, cette poudre est préconsolidée à une contrainte de préconsolidation donnée. Puis lors du test suivant, une contrainte de préconsolidation plus élevée sera appliquée sur la poudre sauf qu'en début de test la poudre récupérée du précédent test ne remplit pas entièrement la cellule. Il faut donc compléter sur la poudre ayant subi une précédente préconsolidation avec de la poudre initiale, c'est-à-dire de la poudre aérée qui n'a subi aucune contrainte. Pour une séquence de tests de cisaillement (une contrainte de préconsolidation de 3, 6, 9 puis 15 kPa), la masse de poudre augmente avec l'augmentation de la

contrainte de préconsolidation. Alors que pour le FT4, une même quantité de poudre est utilisée pour toute la séquence de tests de cisaillement.

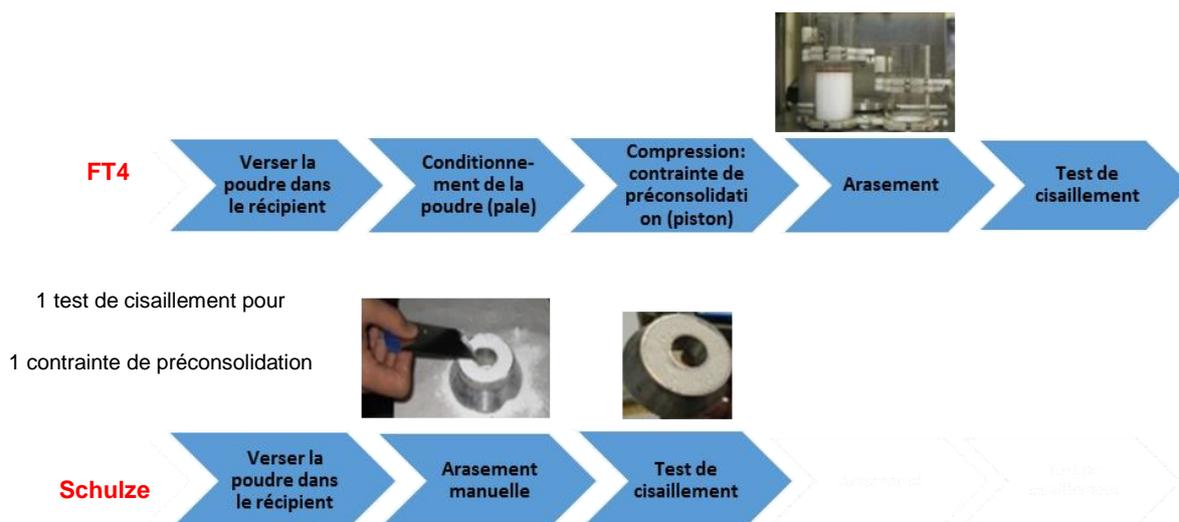


Figure 47 : Comparaison de la préparation des tests pour chaque cellule de cisaillement (FT4 et Schulze).

Par ailleurs, le remplissage de la cellule de Schulze est très délicat. La poudre doit être déposée délicatement dans la cellule en évitant toute ségrégation ou discontinuité de la surface du lit de poudre. Il faut dans un premier temps sur-remplir la cellule en prenant garde de ne pas tasser la poudre. Il faut ensuite araser le surplus de poudre avec une spatule (Figure 48), sans tasser la poudre. L'angle entre le couteau et le plan d'arasage doit être de 30° pour minimiser le tassement de la poudre durant cette opération.



Figure 48 : Cellule de Schulze : arasement manuel.

Une fois la cellule préparée, elle est disposée sur le banc. Il faut ensuite placer délicatement le couvercle en essayant de le centrer au maximum sur l'embase. Pour cela, on utilise une barre permettant de supprimer un degré de liberté. Cette opération est l'une des plus délicates et des plus difficiles à réaliser en BAG. Les bords des gants touchent facilement la poudre arasée et avec les gants il est très difficile de centrer le couvercle. Si on touche la poudre, la surface est alors déformée ce qui conduit à recommencer toute l'étape de préparation. L'opération d'arasement avec le FT4 est par contre plus

facile à réaliser en BAG (Figure 49).



Figure 49 : Cellule de cisaillement FT4 : arasement [Freeman, 2007].

Au niveau du test de cisaillement (Figure 50), la cellule de Schulze n'effectue qu'un cycle de précisaillement (ou préconsolidation) avant le premier point de cisaillement, on estime que la poudre a atteint un état critique au bout d'un cycle. Le FT4 effectue quant à lui plusieurs cycles de précisaillement avant le premier point de cisaillement pour que la poudre ait atteint un état critique. Le nombre de cycles dépend de la différence entre les contraintes de précisaillement qui doit être inférieure à 1%. Ceci peut conduire au niveau du FT4 à la formation d'un plan de rupture prédéfini au sein du lit de poudre, ce qui entrainera une diminution de la résistance du lit de poudre durant le test de cisaillement, sous-estimant ainsi la contrainte de mise en écoulement des poudres.

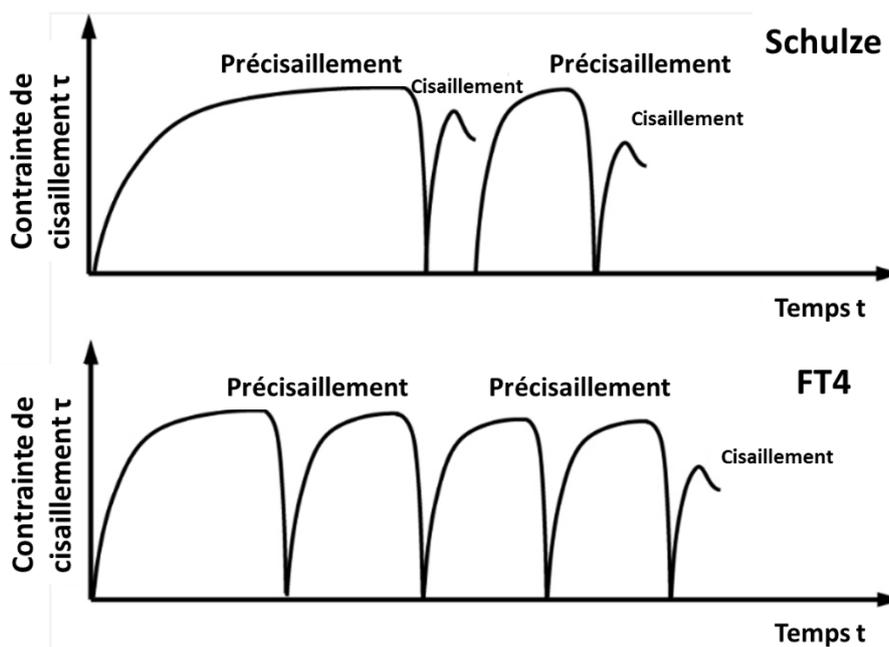


Figure 50 : Comparaison des tests de cisaillements pour la cellule de Schulze par rapport à celle du FT4 [Freeman, 2007- Schulze, 2011].

Les deux cellules de cisaillement sont automatisées et ont leur propre logiciel pour la réalisation des tests : les protocoles de test sont intégrés et peuvent être modifiés par les utilisateurs. Notons aussi que le FT4 va jusqu'à un maximum de 5 points lors d'un test de cisaillement à la différence de la cellule de Schulze qui peut aller jusqu'à plus d'une dizaine de points de cisaillement.

La cellule de Schulze peut être supposée plus précise que la cellule de cisaillement du FT4. Cependant, dans toute notre étude, les résultats obtenus sont destinés à comparer qualitativement les poudres entre elles. De plus, on cherche à minimiser la quantité des échantillons de poudre car en industrie les mesures seront faites sur des poudres radiologiquement très pénalisantes. Ainsi, le FT4 apparaît comme un bon compromis entre la qualité des résultats et la quantité de poudre mise en œuvre.

2.3.2.2 Résultats obtenus en fonction de la géométrie de la cellule de cisaillement

On dispose au sein du laboratoire de deux poudres d' UO_2 , la poudre obtenue par voie sèche (nommée P.A) et la poudre obtenue par voie humide (appelée P.B), qui sont connues pour avoir deux comportements rhéologiques très différents. Ces deux poudres s'opposent sur plusieurs caractéristiques physiques qui ne seront pas toutes analysées dans cette partie. L'influence de chacun de ces paramètres sera en revanche vérifiée dans les chapitres suivants. Ces deux poudres serviront de références pour comparer les résultats obtenus avec les différentes configurations de cellules de cisaillement : la cellule de Schulze de 30 mL, la cellule de 1 mL du FT4, celle de 10 mL et celle de 85 mL. Les barres d'erreurs correspondent au calcul de l'écart-type, avec trois mesures effectuées pour chaque poudre et pour chaque cellule.

La Figure 51 montre que pour une poudre donnée (P.A ou P.B), il existe une similarité aux niveaux de la cohésion, de l'angle de frottement interne et de la fonction d'écoulement entre la cellule de Schulze de 30 mL et les cellules de 10 mL et 85 mL du FT4. La cellule de 1 mL présente par contre des résultats très différents ce qui peut s'expliquer par le faible volume de poudre engagé. Un phénomène a été observé lors d'un essai d'1 mL : lors de la remontée de la cellule de cisaillement la majorité de la poudre est restée coincée entre les ailettes découvrant le fond du récipient. On peut supposer que le cisaillement ne s'est pas fait entre deux couches de la poudre, mais entre la poudre et le fond du contenant. Les effets de bords sont très présents pour un volume d'1 mL. La cellule de 1 mL semble donc moins adaptée pour la mesure des propriétés rhéologiques des poudres d' UO_2 .

On considère que plus le volume de l'échantillon prélevé est grand, plus la surface de cisaillement est grande, plus les résultats de caractérisation sont représentatifs de l'ensemble de la poudre. Concernant les cellules de cisaillement du FT4, le volume de 85 mL présente donc un meilleur échantillonnage car la surface de cisaillement est plus importante. Cependant sur la base des conclusions de cette pré-étude, la cellule de 10 mL du FT4 donne des résultats similaires à la cellule de 85 mL du FT4 et à la cellule de Schulze. Elle sera donc utilisée pour le reste des mesures de cisaillement. Elle présente en effet le meilleur compromis entre la qualité des résultats et la minimisation du volume de poudre d' UO_2 engagé. De plus, au niveau du travail en BAG, à la différence de la cellule de Schulze, le FT4 présente l'avantage d'avoir un caractère automatisé aussi bien au niveau de la procédure de préparation de l'échantillon qu'au lancement du test de cisaillement permettant ainsi une intervention minimale de l'opérateur. De plus, le FT4 est aussi un rhéomètre qui nous permet de réaliser d'autres types de tests rhéologiques, diminuant ainsi les transferts de matières nucléaires entre les différentes BAG et minimisant le risque de contamination.

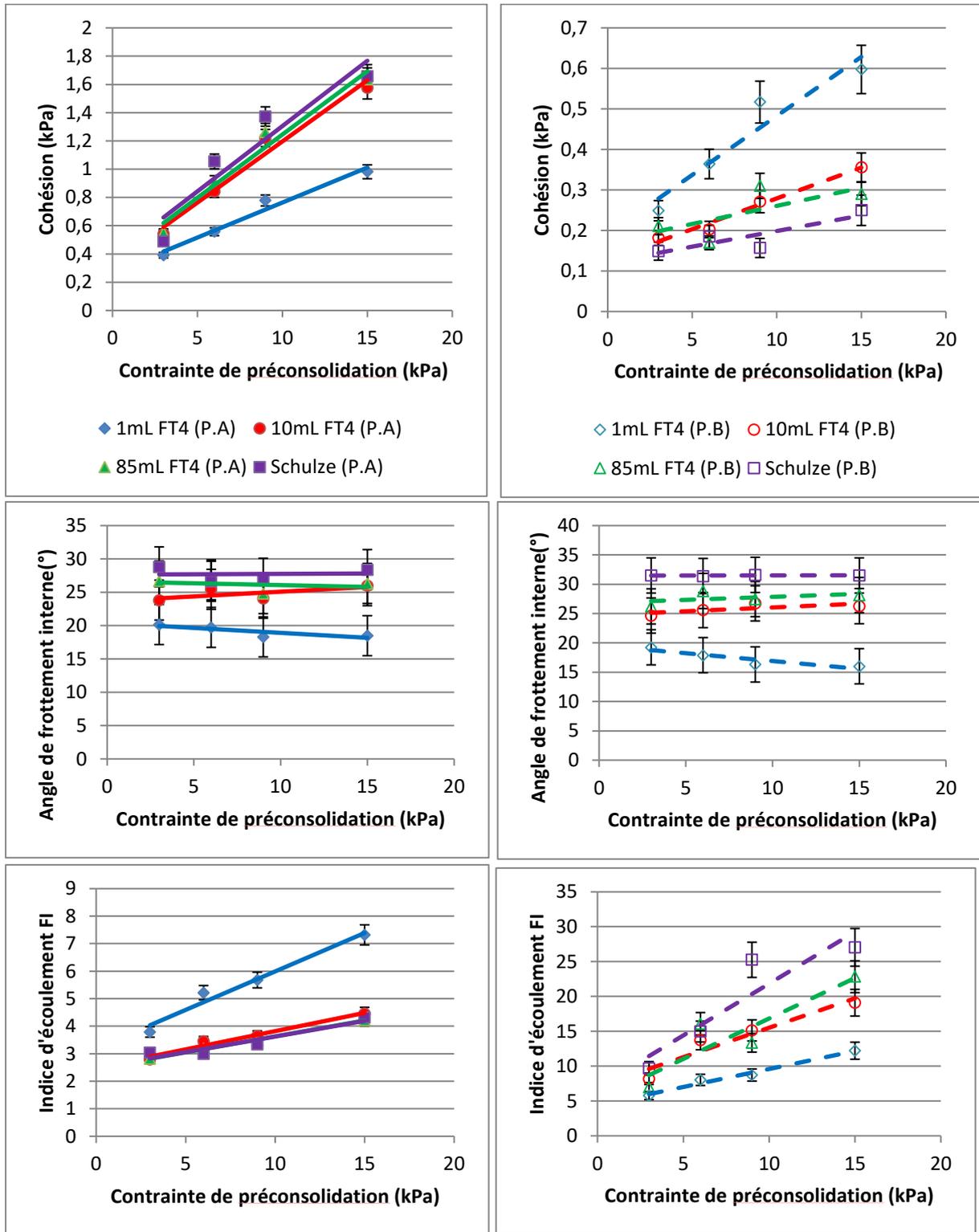


Figure 51 : Mesures de cisaillement : détermination de la cohésion, de l'angle de frottement interne et de l'indice d'écoulement pour deux poudres UO_2 de référence (P.A : poudre UO_2 Voie Sèche et P.B : poudre UO_2 Voie Humide).

2.3.3 Influence de l'humidité

L'étude de l'influence de l'humidité ambiante sur les poudres d'intérêt a pour but de mesurer d'une part l'évolution de la masse des échantillons sous humidité contrôlée (masse corrélée à la quantité d'eau adsorbée sur les échantillons) et d'autre part en étudiant l'influence de l'humidité sur les propriétés d'écoulement des poudres (cf. Chapitre 1, § 1.3.2.1).

Les caractérisations rhéologiques sur les poudres conditionnées devraient être réalisées dans un temps restreint afin de réduire au maximum les contacts de la poudre avec l'air ambiant et les variations d'humidité associées car les tests rhéologiques ne peuvent pas se faire à une humidité contrôlée.

2.3.3.1 Humidité contrôlée

Dans un premier temps le paramètre « humidité » a été étudié selon un protocole simple de mise sous humidité contrôlée dans des enceintes fermées. Des sels ont été utilisés pour contrôler l'humidité souhaitée. Pour cela la limite de solubilité de chaque sel a été relevée puis calculée pour correspondre à un volume de 500 mL d'eau. Ils ont ensuite été transférés dans les enceintes fermées et l'eau distillée ajoutée progressivement.

Au sein du laboratoire et donc de la BAG, le taux d'humidité varie entre 40 et 60%. Afin de suivre l'influence du paramètre externe « humidité », la poudre P.A est étudiée sous deux atmosphères contrôlées : air humidifié à 10 et 80% d'humidité relative. Les différents sels utilisés, et leurs limites de solubilité dans l'eau, pour obtenir les humidités relatives (HR) souhaitées sont :

- 11% : LiCl, 820 g.L⁻¹,
- 75% : NaCl, 360 g.L⁻¹,

Les échantillons de poudres sont pesés et déposés dans une coupelle en aluminium ($m_{\text{éch.}} \approx 2\text{g}$, pour avoir un lit de poudre de quelques millimètres d'épaisseur) puis placés dans les enceintes fermées (Figure 52). L'humidité relative des enceintes et la température sont constamment mesurées par sonde et relevées à chaque pesée. Chaque échantillon, pour chaque humidité relative contrôlée, est pesé 1 fois/jour puis toutes les deux semaines. L'évolution de la masse en fonction du nombre de jours est ensuite tracée pour visualiser l'évolution (Figure 53).



Figure 52 : Enceinte fermée sous humidité relative contrôlée avec coupelles en aluminium.

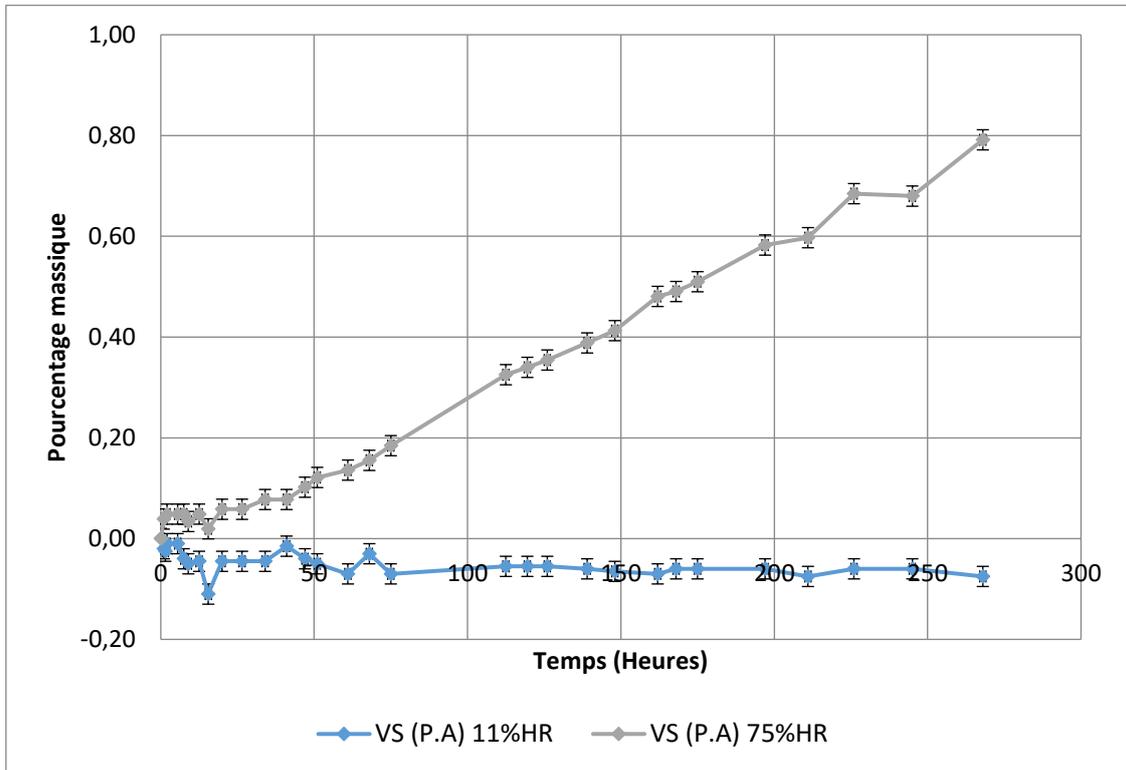


Figure 53 : Influence de l'humidité (11% et 75%HR) sur la poudre d'UO₂ Voie Sèche (P.A) en fonction du temps.

2.3.3.2 Influence de l'humidité sur l'écoulement

L'aptitude à l'écoulement a été évaluée sur la poudre d'UO₂ VS au moyen de la cellule de cisaillement de 10 mL du rhéomètre FT4 pour les deux humidités relatives de 11 et 75%. À cet effet, deux échantillons de poudre sont laissés pendant douze jours dans les enceintes fermées puis sont étudiés par test de cisaillement (à J₀). Ils ont ensuite été laissés une journée (correspondant à un délai moyen de contrôle d'une poudre en cours de fabrication) dans la BAG puis à nouveau analysés (J₀+1). Le Tableau 2 résume les valeurs moyennes de cohésion des échantillons à J₀ et J₀+1 pour les deux humidités considérées.

Tableau 2 : Aptitude à l'écoulement de la poudre d'UO₂ obtenue par voie sèche à 11 et 75 % HR.

Poudre	J ₀		J ₀ +1	
	Cohésion C (kPa) [+/-0,2]	FI [+/-0,5]	Cohésion C (kPa) [+/-0,2]	FI [+/-0,5]
UO ₂ VS – 11 % HR	1,5	4,6	1,7	4,5
UO ₂ VS – 75 % HR	1,7	4,3	1,6	4,6

Il semble que l'historique d'humidité ambiante subi par la poudre influe peu sur les propriétés d'écoulement. Les valeurs de cohésion et de fonction d'écoulement sont identiques pour les quatre échantillons. Il faut cependant considérer ces résultats avec précautions car il est possible que la variation de l'humidité pendant les mesures induise un biais dans les résultats (remise à l'équilibre avec l'atmosphère trop rapide par rapport à la durée de mesure). L'humidité au sein de nos BAG varie entre 40 et 60%. Cette variabilité ne sera pas considérée comme un paramètre influent pour la suite.

Notons que des tests complémentaires seraient cependant nécessaires pour statuer sur l'influence de l'humidité sur les propriétés d'écoulement des poudres d'UO₂.

2.3.4 Protocole et enchaînement des caractérisations rhéologiques des poudres d'UO₂

Comme évoqué précédemment, il faut limiter la quantité de matière nucléaire mise en jeu dans les caractérisations, particulièrement dans une optique de contrôles industriels sur de la poudre MOX. C'est pourquoi une étude d'optimisation de la séquence d'enchaînement des différents tests de mesures rhéologiques est nécessaire. Pour cela les tests ont été définis en fonction des contraintes appliquées sur la poudre.

Pour rappel on considère deux types de régimes : le régime quasi-statique et le régime dynamique. Le régime quasi-statique est le passage de la poudre d'un état statique à un état dynamique, c'est-à-dire la mise en écoulement de la poudre. Le régime dynamique va quant à lui permettre de mesurer les propriétés de la poudre en mouvement.

- Le test de cisaillement a été effectué à différentes contraintes de préconsolidation : 3, 6, 9 et 15 kPa. Pour un même échantillon, les tests de cisaillement sont effectués par ordre croissant des contraintes de préconsolidation.

Validation : afin de mettre en évidence une éventuelle modification de la poudre pour les 4 précédents tests de cisaillement, après le test de 15 kPa, on effectue un test à 3 kPa qui est comparé avec le premier test à 3 kPa. Un test de granulométrie voie sèche à 0,1 bar est également réalisé avant et après chaque séquence de tests de cisaillement (Figure 54).

- Il sera montré au Chapitre 3 que les tests de compressibilité, de perméabilité et de cisaillement ne sont pas destructifs, contrairement au test VFR. Ainsi, il a été décidé de suivre la séquence de test présentée en Figure 54. Le test de compressibilité sera utilisé pour suivre toute évolution ou modification de la poudre au cours des tests. Des mesures de granulométrie voie sèche à 0,1 bar ont aussi été effectuées en complément avant et après VFR.

Notons que les mesures de densités aérée et tassée sont réalisées avec le volumétre. Ce test demandant une quantité relativement importante de poudre, il n'a été réalisé que dans le cadre l'étude de l'influence de la granulométrie.

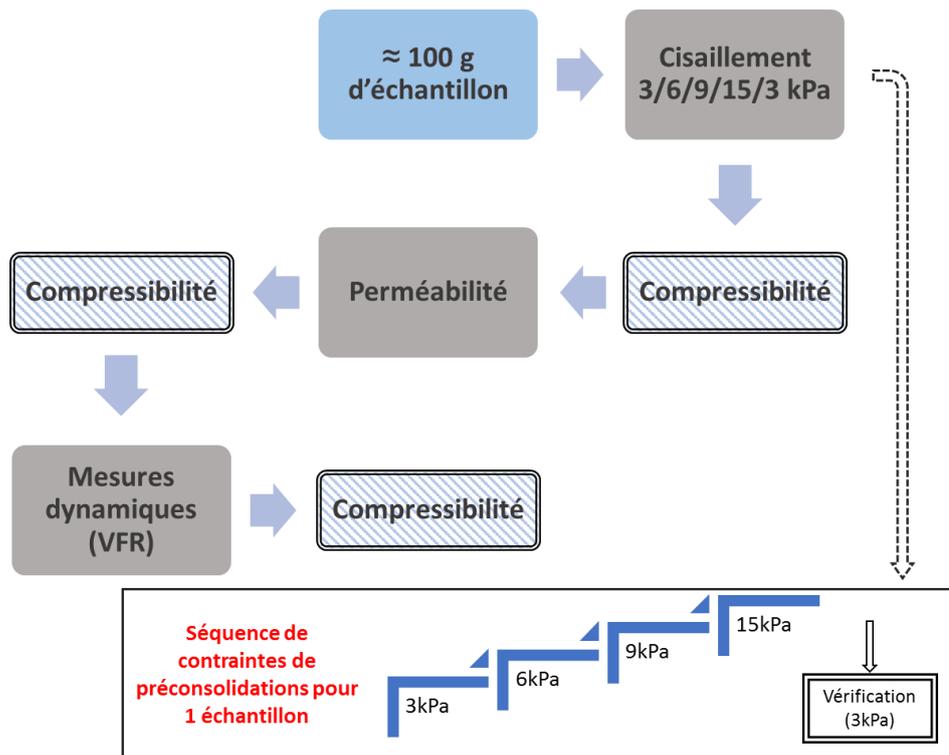


Figure 54 : Protocole de mesures rhéologiques pour la caractérisation des poudres d'UO₂.

2.4 PREPARATION ET CARACTERISATION DES GRANULES

2.4.1 Granulation mécanique

Les poudres d'UO₂ brutes présentent différentes caractéristiques physiques. Il est difficile d'observer séparément l'impact de chacune de ces caractéristiques. Afin d'effectuer une étude à effets séparés, et ainsi isoler et contrôler un seul paramètre pour déterminer son influence sur les propriétés rhéologiques de la poudre, il a été choisi de travailler sur des granulés. Ces granulés sont faits à façon en fonction du paramètre étudié. La fabrication de granulés reproductibles est une étape longue et tout particulièrement avec l'UO₂, qui doit être manipulé en BAG. La méthode de préparation de ces granulés est la suivante : en BAG, un manchon en latex est rempli d'environ 200 g de poudre d'UO₂ obtenue par voie sèche qui est ensuite tassée progressivement par vibrations. Après nettoyage et fermeture par un bouchon en caoutchouc, le manchon est sorti de la BAG puis inséré dans l'enceinte d'une presse isostatique. L'intérêt de ce type de presse est d'appliquer la pression sur l'objet à compacter dans toutes les directions et en chaque point du manchon (Figure 55). Sous l'action de la pression, le manchon et le bouchon se déforment et la poudre est compactée à la pression choisie (réglable entre 50 et 600 MPa) pour obtenir un barreau d'UO₂ compact.

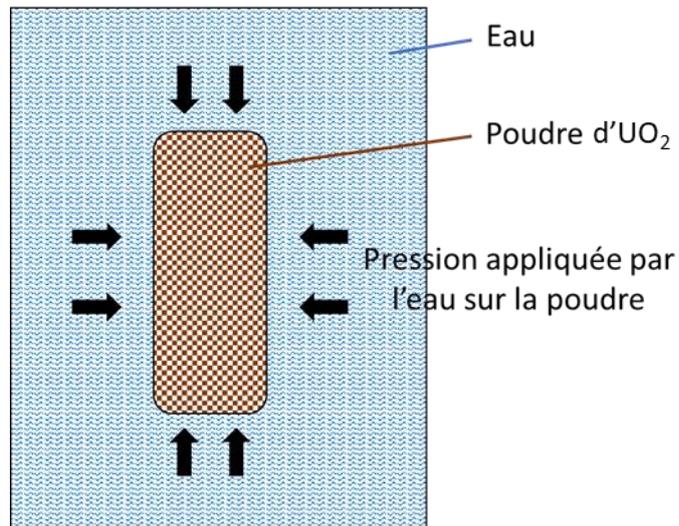


Figure 55 : Principe de la presse isostatique : granulation.

Afin de déterminer la pression de compaction à appliquer avec la presse hydrostatique, nous avons préalablement fabriqué, au moyen d'une presse uniaxiale double effet, des comprimés crus à différentes pressions (Figure 56) : 70, 90, 110, 130 et 150 MPa dont on a ensuite calculé la densité (définie dans le cas présent à la compacité) selon la formule :

$$\text{Densité de comprimé} = \frac{m}{V} \cdot \frac{100}{10,96} (\%MVTh) \quad \text{Équation 42}$$

Avec :

m masse (en g),

V volume du comprimé (en cm³),

10,96 équivalent à la densité théorique de l'UO₂.

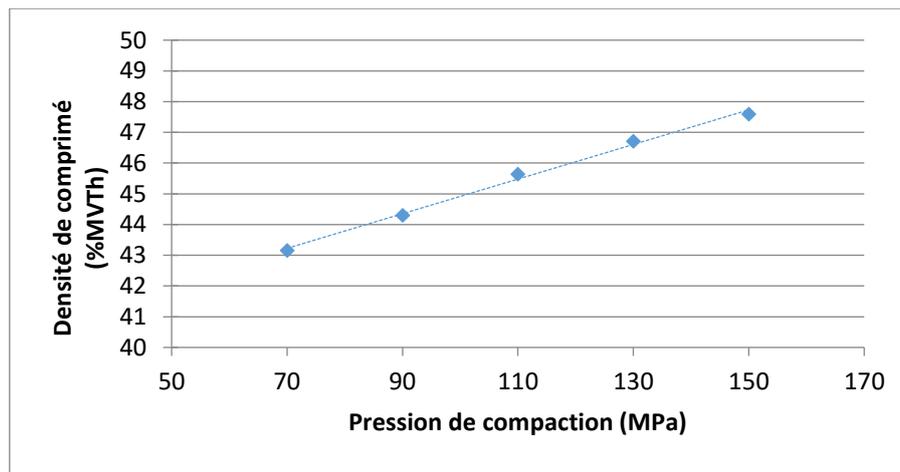


Figure 56 : Densité du comprimé en fonction de la pression de compaction.

La pression retenue est égale à 150 MPa car elle nous permet d'obtenir des granulés suffisamment denses (environ 47 %MVTh) pour pouvoir en modifier la forme ou la taille sans qu'ils ne se détruisent trop facilement. En cas de mise en forme ultérieure (fabrication des pastilles d' UO_2 (Figure 57)) à une valeur classique d'environ 450 MPa, des granulés de ce type seront aisément détruits sans induire un effet mémoire sur la microstructure (c'est-à-dire sans garder la forme initiale des granulés) après frittage. Pour la fabrication des granulés, la pression appliquée dans la presse isostatique sera donc égale à 150 MPa.

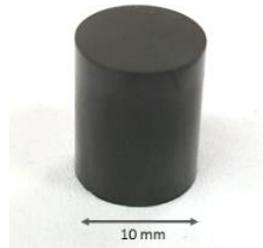


Figure 57 : Comprimé cru d' UO_2 .

2.4.2 Concassage et tamisage : FREWITT

Dans un premier temps le barreau de poudre compacté dans la presse isostatique est concassé grossièrement dans un mortier en BAG.

La deuxième étape consiste à forcer les morceaux concassés à travers la maille d'un tamis dans un granulateur de marque FREWITT (Figure 58). Le choix de l'ouverture de la maille permet de réduire la taille des granulés à la valeur visée. Les morceaux concassés sont versés dans l'entonnoir d'entrée, d'où ils tombent sur le rotor fonctionnant en mode oscillant et dont les couteaux vont forcer le passage à travers le tamis. La vitesse de rotation du rotor oscillant préconisée par le constructeur est de $23 \text{ tr} \cdot \text{min}^{-1}$.

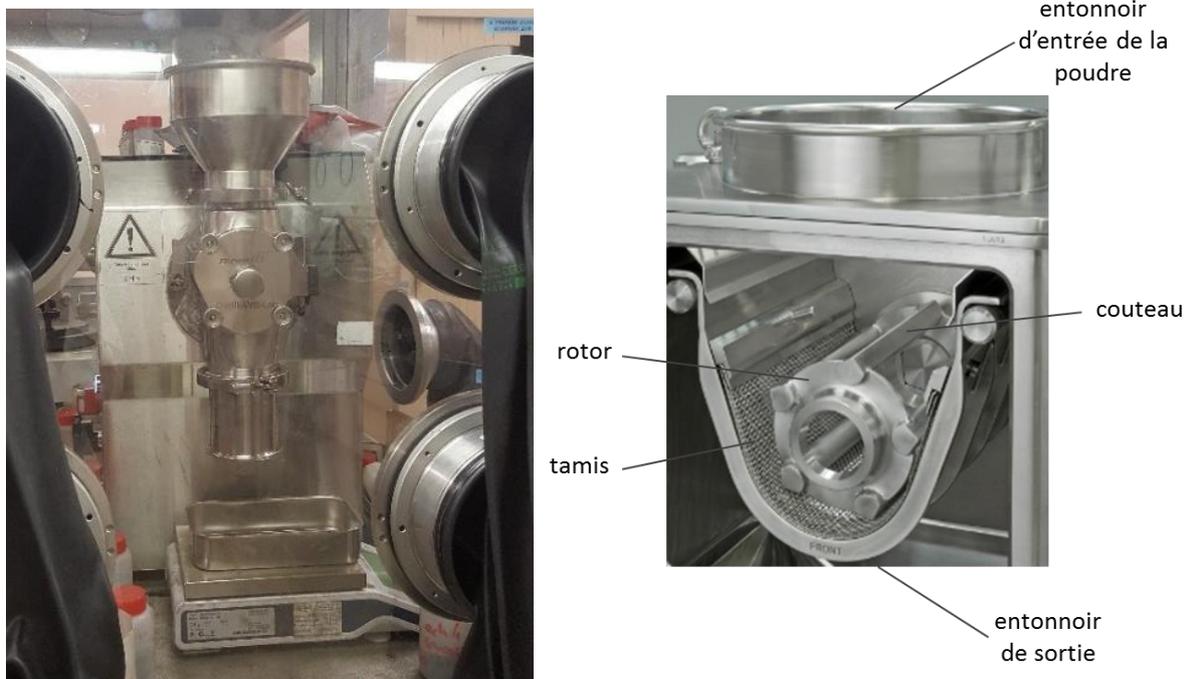


Figure 58 : Frewitt (en BAG à gauche)

La troisième étape est le passage au Frewitt à travers un tamis de maille 1 mm afin de diminuer et d'homogénéiser la taille du granulé.

La quatrième étape est un second passage de la poudre à travers le Frewitt avec un tamis de maille 400 μm .

La cinquième étape est un passage de la poudre à travers un tamis de maille 250 μm au Frewitt. La maille de 250 μm a été choisie car une étude préliminaire a permis de constater que la poudre traversant une maille X μm au Frewitt, aura une taille de particule maximale d'environ X + 300 μm . La gamme de taille des particules de 0 à 500-600 μm correspond à celle observée sur de la poudre d' UO_2 en sortie de Frewitt.

La poudre ainsi obtenue est constituée de granules. Un test de validation a été utilisé afin de vérifier la reproductibilité du procédé de fabrication des granules (en sortie du Frewitt et avant la caractérisation rhéologique). Ce test correspond à un tamisage à 100 μm : deux classes granulométriques de granules sont obtenues (supérieurs à 100 μm et inférieurs à 100 μm , appelés fines). Ce tamisage a été répété sur cinq échantillons de 200 g obtenus à la sortie du protocole de fabrication (Figure 59). Après chaque tamisage, environ 30% (+/- 3%) de fines est récupéré, ce qui indique une faible variabilité.

Le protocole de fabrication de granules d' UO_2 (Figure 59) est donc suffisamment fiable et reproductible pour réaliser l'étude à effets séparés.

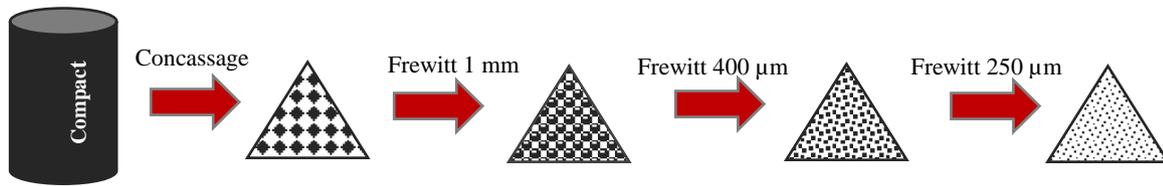


Figure 59 : Protocole de fabrication de granulés d' UO_2 .

2.5 CONCLUSION

Les cellules de cisaillement de 10 mL et 85 mL du FT4 ainsi que la cellule de Schulze de 30 mL conduisent à des résultats similaires, contrairement à la cellule de cisaillement de 1 mL du FT4. La cellule de cisaillement de 10 mL présente un bon compromis entre la quantité de matière utilisée et la qualité des résultats pour la suite de notre étude.

Par ailleurs l'étude préliminaire a permis de négliger l'impact de l'humidité sur nos mesures rhéologiques, mais aussi de mettre en place un protocole de mesures rhéologiques. Ce protocole prend en compte la modification que peut apporter chaque type de test sur la poudre, à savoir s'il est destructif ou non. En fonction de l'influence que peut avoir chaque test, un enchainement a été défini afin de pouvoir réaliser les différentes mesures sur un même échantillon de poudre. Des points de contrôle intermédiaires ont été mis en place afin de suivre et contrôler l'évolution de la poudre.

Enfin, pour réaliser une étude à effets séparés, il a été nécessaire de pouvoir contrôler les caractéristiques physiques de la poudre d' UO_2 . C'est pourquoi une recherche a été réalisée sur la fabrication de granulés reproductibles. À partir de ces granulés, il est alors possible de réaliser des modifications à façon pour étudier l'impact de la granulométrie sur les propriétés rhéologiques de la poudre d' UO_2 dans le Chapitre 3, mais aussi l'impact de la morphologie dans le Chapitre 4.

CHAPITRE III : INFLUENCE DE LA GRANULOMETRIE SUR LES PROPRIETES RHEOLOGIQUES

3.1	Préparation de poudres à différents taux de fines.	74
3.2	Mesures des propriétés de mise en écoulement	77
3.2.1	Densité aérée, densité tassée et compressibilité	77
3.2.2	Test de cisaillement	80
3.3	Mesure des propriétés d'écoulement	85
3.3.1	Test de perméabilité.....	85
3.3.2	Tests dynamiques : Variable Flow Rate (VFR).....	88
3.4	Conclusion	91

Chapitre III : Influence de la granulométrie sur les propriétés rhéologiques

Ce chapitre décrit l'influence de la proportion de particules fines ($< 100 \mu\text{m}$) sur les mélanges de poudre d' UO_2 . Les différentes propriétés rhéologiques de poudres UO_2 sont comparées directement en fonction de la quantité de fines dans le mélange de poudres. Cela est nécessaire pour comprendre ce comportement rhéologique de la poudre lors de la fabrication de combustibles nucléaires par métallurgie des poudres, en particulier lors du remplissage de moules. Pour réaliser cette étude, des granulés d' UO_2 ont été fabriqués de manière reproductible, puis différents mélanges de classes granulométriques ont été réalisés en faisant varier les proportions des fines.

3.1 PREPARATION DE POUDRES A DIFFERENTS TAUX DE FINES.

On définit les fines comme les particules dont le diamètre est inférieur à $100 \mu\text{m}$. Elles ont été isolées par tamisage à faible amplitude puis rajoutées à la population de grosses particules (de taille $> 100 \mu\text{m}$) pour obtenir plusieurs mélanges de proportions connues. Afin de définir la durée optimale de tamisage et d'observer la répétabilité de celui-ci, des lots de 200 g ont été versés dans une colonne vibrante de tamis. Des pesées du refus de chacun des tamis ont été réalisées toutes les 5 minutes. La stabilité de la masse de fines est atteinte à partir de 30 minutes de tamisage. Ceci a conduit à retenir une durée de tamisage de 35 minutes pour l'obtention des populations de référence (fines particules / grosses particules). Sur un lot de 200 g, la masse de fines récupérée est d'environ 30% massique (Figure 60).

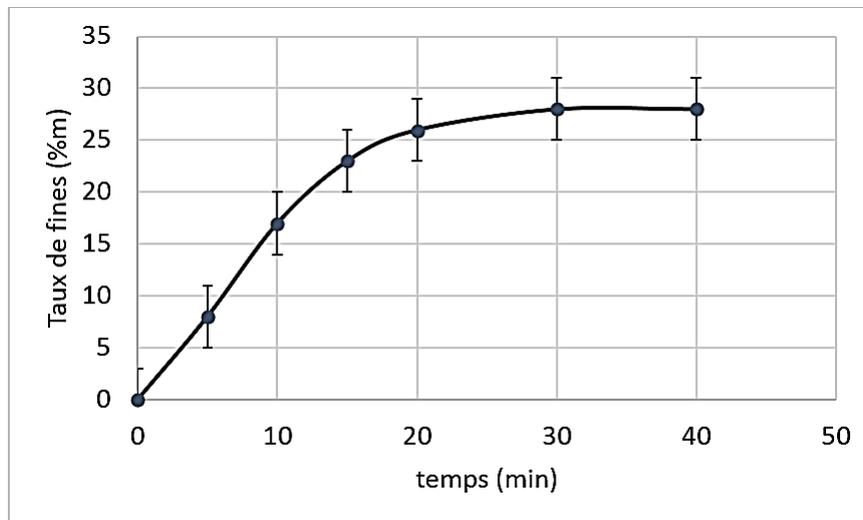


Figure 60 : Évolution du taux de fines (pourcentage massique) en fonction du temps lors du tamisage d'un lot de poudre.

Cinq types de lot (mélanges) ont été préparés avec différentes quantités de fines : 0, 10, 30, 50 et 100% massique. Les mélanges ont été obtenus par brassage doux en utilisant un mélangeur tridimensionnel

(Turbula) pendant 10 minutes à une vitesse de 23 tr.min⁻¹. Pour chaque lots de poudres, trois échantillons ont pu être préparés.

Les distributions granulométriques des lots ont été mesurées par granulométrie laser en voie sèche. Chaque échantillon est mesuré trois fois avec des prises d'essais à différentes hauteurs (Figure 61). Les résultats présentés dans la figure suivante donnent la moyenne pour les 3 sous-échantillons (Tableau 3, Figure 62).

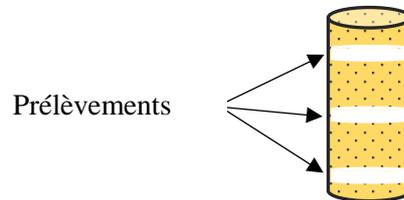


Figure 61 : Zones des prélèvements pour les 3 mesures de la granulométrie.

Il existe différents diamètres caractéristiques pour décrire les distributions granulométriques (cf. Chapitre 1, § 1.1.1), ; nous avons choisi d'utiliser ici le diamètre volumique médian $Dv(50)$ complété par la largeur de la distribution granulométrique, appelée aussi span.

On définit le span selon l'expression :

$$\text{span} = \frac{Dv_{90} - Dv_{10}}{Dv_{50}} \quad \text{Équation 43}$$

Plus le span est grand plus la distribution est étendue.

Pour chaque type de mesure (mesure de cohésion, énergie d'écoulement, etc.), l'écart-type est déterminé sur la base des trois mesures pour chaque échantillon. L'écart-type représente la manière dont les valeurs sont dispersées par rapport à la valeur moyenne.

$$\text{Ecart-type} = \sqrt{\frac{\sum (x - \bar{x})^2}{N - 1}} \quad \text{Équation 44}$$

Où x la valeur de la mesure, \bar{x} la valeur moyenne et N le nombre de mesures pour une même poudre.

Tableau 3 : Diamètres caractéristiques en fonction de la teneur en fines (écart-type de $D_v \approx 20 \mu\text{m}$).

Poudre	Taux de fines (%m)	$D_v(10)$ (μm)	$D_v(50)$ (μm)	$D_v(90)$ (μm)	Span
A0	0	210	360	570	1.0
B10	10	120	310	540	1.4
C30	30	60	280	530	1.7
D50	50	40	160	480	2.8
E100	100	20	70	140	1.7

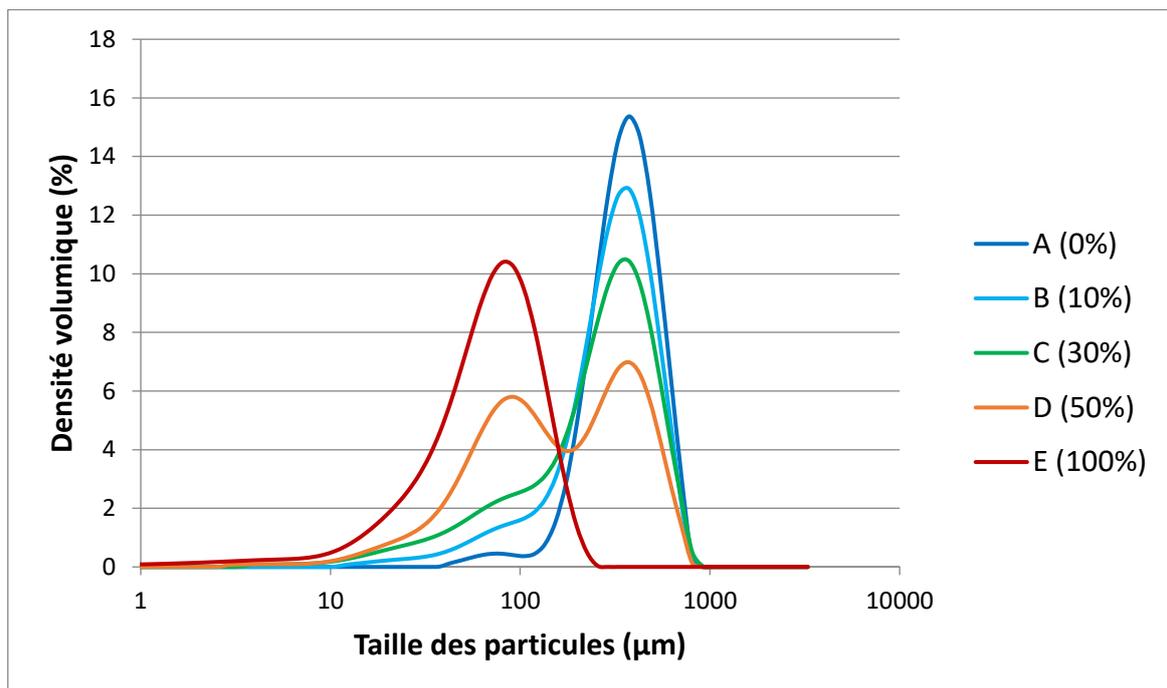


Figure 62 : Distributions granulométriques des différents lots (Granulomètre laser voie sèche) avec Δ Densité volumique = 1%.

Le span permet de mieux cerner les caractéristiques du mélange considéré. Dans notre cas, on peut voir que si le span est de l'ordre de 1,5 la distribution ne présente qu'une classe granulométrique prédominante. Et lorsqu'il est de l'ordre de 3, cela révèle une distribution bimodale : c'est le cas du mélange constitué de 50 %m de grosses particules et 50 %m de fines particules.

A partir des analyses granulométriques obtenues avec le granulomètre voie sèche, si l'on trace la fraction cumulée à 100 μm de chaque poudre en fonction du taux de fines, on observe une évolution linéaire de la densité volumique cumulée (Figure 63). Dans le granulomètre, la dispersion des agglomérats est partielle mais également les fines peuvent aussi adhérer aux particules les plus grosses, ce qui conduit à

sous-estimer la détermination de la quantité de fines. Cette mesure granulométrique fournit ainsi une mesure approximative de la quantité de fines mais qui est bien corrélée à la quantité attendue.

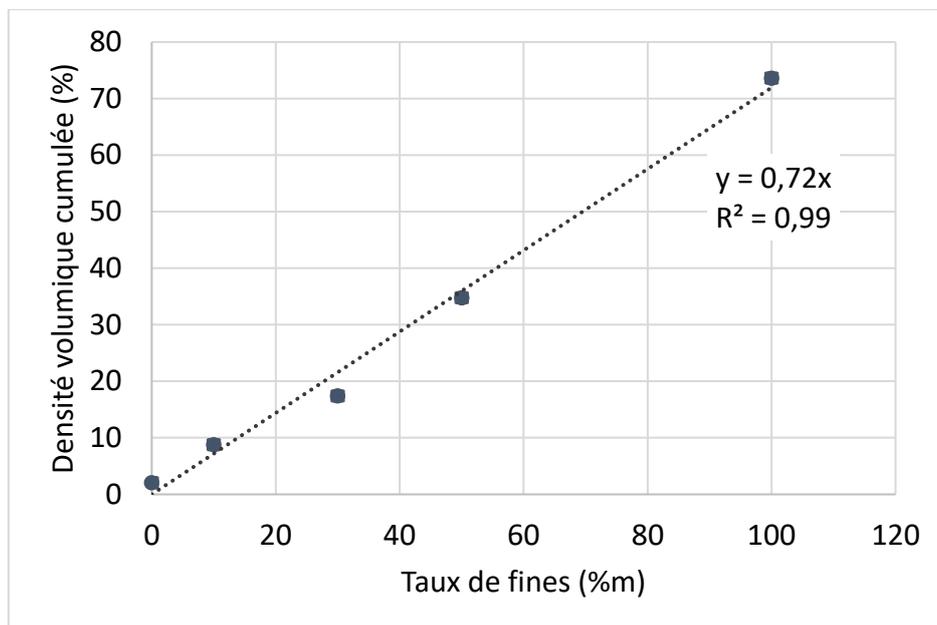


Figure 63 : Évolution de la densité volumique cumulée en fonction du taux de fines pour les particules inférieures à 100 µm.

Une fois la mesure granulométrique effectuée, les mesures de propriétés rhéologiques vont permettre de comprendre l'influence des fines sur le comportement de la poudre. On différencie les deux états : la mise en écoulement et l'écoulement.

3.2 MESURES DES PROPRIETES DE MISE EN ECOULEMENT

La mesure de densité et l'étude de compressibilité sont des facteurs importants pour caractériser la mise en écoulement de la poudre. Ces tests permettent d'obtenir une idée de l'arrangement des particules entre elles et par conséquent de comprendre le comportement de la poudre.

3.2.1 Densité aérée, densité tassée et compressibilité

Le test de densité (volumétre) est utilisé pour caractériser le réarrangement libre des grains, sans application de contrainte (cf. Chapitre 2, § 2.2.2.1). Pour l'essai de compressibilité, au contraire, le réarrangement des grains est réalisé en appliquant une contrainte normale (cf. Chapitre 2, § 2.2.2.2). Si ces deux tests ne permettent pas de mesurer directement les propriétés d'écoulement, ils nous fournissent cependant une prédiction qualitative du comportement de la poudre lors de sa mise en écoulement et de son écoulement [Cain, 2002]. Les résultats sont donnés dans le Tableau 4.

La mesure de la densité aérée peut également être déterminée avec le rhéomètre FT4. Cette mesure est nommée Conditioned Bulk Density, CBD (Tableau 4) et dépend très faiblement de l'opérateur. Les résultats du volumétre sont quant à eux susceptibles d'être affectés par l'opération initiale de remplissage d'une éprouvette graduée avec la poudre, plus sensible à l'effet opérateur. Cependant comme le montre le Tableau 4, les deux méthodes donnent des valeurs de densité aérée similaires. Cela nous amène à penser que l'effet opérateur est faible lors du versement de la poudre dans le récipient du FT4. La mesure du CBD sera donc celle retenue pour la mesure de la densité aérée du lit de poudre.

Tableau 4 : Mesures de densité et compressibilité (FT4)

Volumétre					FT4		
Poudre	Taux de fines (%m)	Densité aérée [+/-0,3]	Densité tassée [+/-0,3]	Indice de Carr (%) [+/-10]	CBD (g.cm ⁻³) [+/- 0,2]	Densité à 15 kPa (g.cm ⁻³) [+/-0,2]	Compressibilité à 15 kPa (%) [+/- 0,8]
A0	0	2,8	3,3	18	2,7	2,9	5,6
B10	10	2,7	3,3	22	2,8	2,9	7,0
C30	30	2,5	3,3	32	2,4	2,6	9,8
D50	50	2,5	3,4	40	2,3	2,6	15,0
E100	100	2,1	2,9	38	2,1	2,5	21,3

La Figure 64 montre que la compressibilité (FT4) croît avec le taux de fines pour une consolidation donnée. La compressibilité, exprimée en pourcentage, représente le rapport entre le volume après compression de la poudre et le volume à l'état initial. La compression du lit de poudre étant réalisée par un piston poreux, nous pouvons supposer une dépendance de la quantité d'air piégé dans le lit de poudre initial en fonction de la teneur en fines. L'augmentation du taux de fines entraîne une augmentation de la compressibilité à partir de 1 kPa, d'autant plus forte que la contrainte de consolidation augmente. Ceci permet de rendre compte de la quantité d'air piégée au sein du lit de poudre en fonction du taux de fines dans le mélange et ainsi de déterminer la difficulté à évacuer l'air du lit de poudre lors de la compression.

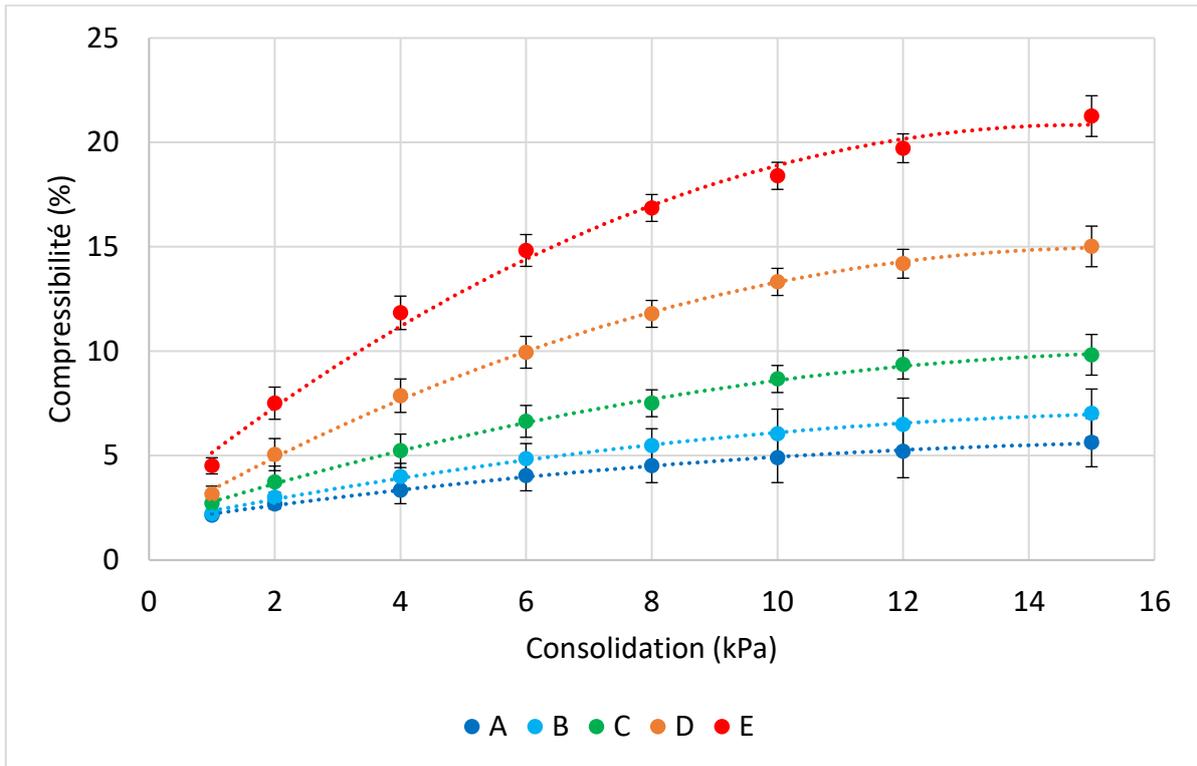


Figure 64 : Compressibilité en fonction de la consolidation (rhéomètre FT4).

La coulabilité prédite qualitativement à partir de l'indice de Carr semble diminuer lorsque la teneur en fines augmente. Une corrélation linéaire peut être observée entre la compressibilité et l'indice de Carr en fonction de la quantité de fines (Figure 65). L'indice de Carr est représentatif du réarrangement sans application de contraintes sur le lit de poudre à la différence de la compressibilité. Cependant, cette dernière à 15 kPa suit la même tendance que l'indice de Carr. Pour des raisons de sécurité concernant le travail avec des poudres d' UO_2 , il sera plus simple d'utiliser un seul appareil présentant un protocole facile et rapide à réaliser, tel que la compressibilité.

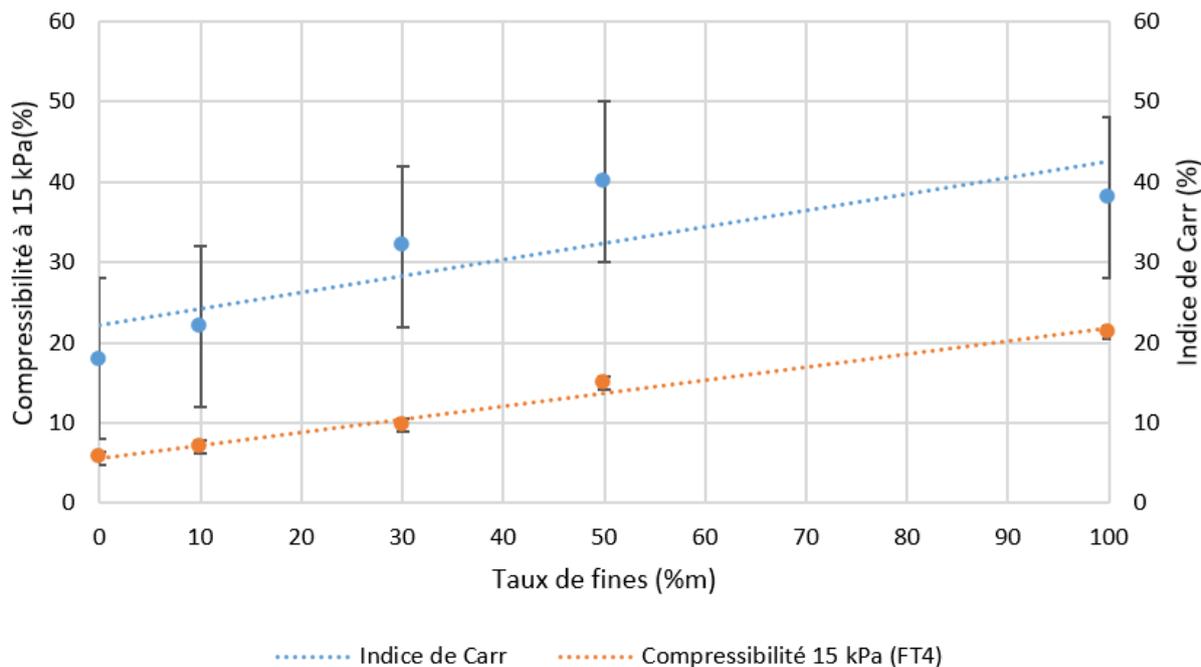


Figure 65 : Variation de l'indice de Carr et de la compressibilité (15 kPa au FT4) en fonction du taux de fines.

Le test de compressibilité a été effectué trois fois consécutivement sur chaque échantillon (et sur trois échantillons pour une même poudre) afin de vérifier s'il en modifiait ou non les caractéristiques et les résultats sont similaires. Le test de compressibilité peut donc être considéré comme non destructif. Par ailleurs, un test de granulométrie, réalisé avant et après compressibilité de la poudre, permet de justifier que les granules ont une certaine solidité mécanique et ne sont pas friables à 15 kPa. L'évolution de la compressibilité est donc provoquée par un réarrangement forcé des granules entre eux en occupant les espaces intergranulaires. Ce test simple et rapide sera utilisé avant et après chaque test en régime dynamique. En raison de sa sensibilité aux fines, il nous permet donc de suivre l'évolution du comportement de la poudre lors de la caractérisation de son écoulement et de détecter une éventuelle modification de la poudre (rupture d'agglomérats, etc.).

3.2.2 Test de cisaillement

Le cisaillement permet de caractériser le comportement rhéologique complexe de la poudre pendant sa transition d'un état statique à un état dynamique, par exemple lors de l'ouverture du fond d'une trémie [Wei, 2017].

3.2.2.1 Fonction d'écoulement

Les lieux d'écoulement ont été déterminés avec la cellule de cisaillement de 10 mL du FT4 pour les différents lots de granules d' UO_2 de classes granulométriques différentes. Les résultats pour les lots A0 (avec 0% de fines) et E100 (avec 100% de fines) sont présentés dans la Figure 66 pour les différentes contraintes de préconsolidation : 3/ 6/ 9/ 15 kPa.

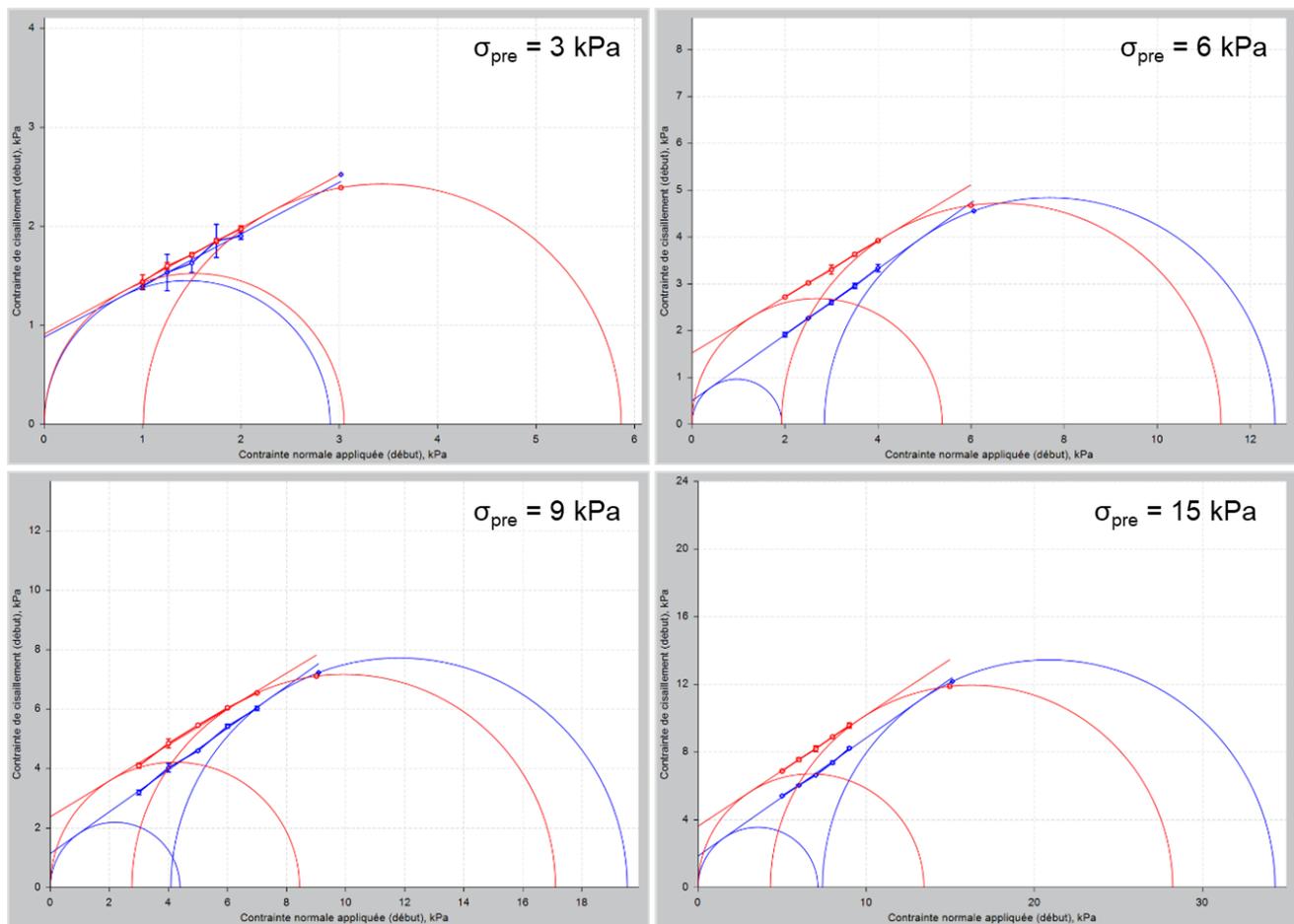


Figure 66 : Tracé des lieux d'écoulements et des cercles de Mohr pour les lots A0 (0% de fines en bleu) et E100 (100% de fines en rouge) pour les différentes contraintes de préconsolidation 3, 6, 9 et 15 kPa.

Les résultats du test de cisaillement ont été utilisés pour tracer les fonctions d'écoulement pour chaque lot (Figure 67) [Geldart, 2009]. Les lots A et B, constitués respectivement de 0 et 10 %m de fines, présentent des fonctions d'écoulement similaires. Quelques difficultés ont été rencontrées pour la mesure du cisaillement à une contrainte de préconsolidation à 3 kPa, pour les poudres contenant 0 et 10 %m de fines. Les tests de cisaillement aux petites contraintes de préconsolidation (3 kPa) présentent un lieu d'écoulement qui peut passer en dessous de la contrainte de préconsolidation. Dans ce cas le grand cercle de Mohr ne peut donc être tracé et par conséquent la contrainte de consolidation majeure ne peut pas être déterminée. Pour les poudres contenant plus de 30 %m de fines, les mesures de cisaillement à faibles contraintes (3 kPa) sont exploitables. Les contraintes mesurées pour les poudres présentent un écart-type maximisé d'environ +/- 10% basé sur au moins trois tests.

La Figure 67 représente la fonction d'écoulement des différentes poudres. Les résultats de l'indice d'écoulement pour une contrainte de préconsolidation de 15 kPa sont présentés dans la Figure 68. On constate que les lieux d'écoulement pour 30, 50 et 100 %m de fines sont très proches, de même pour les poudres contenant 0 et 10 %m pour des contraintes de préconsolidation de 6, 9 et 15 kPa. Les poudres présentant des lieux d'écoulement proches, leurs fonctions d'écoulement sont similaires. Sur la Figure

67 et la Figure 68, deux zones coexistent : l'une constituée des poudres contenant de 0 et 10 %m de fines et l'autre regroupant les poudres composées de 30, 50 et 100 %m de fines.

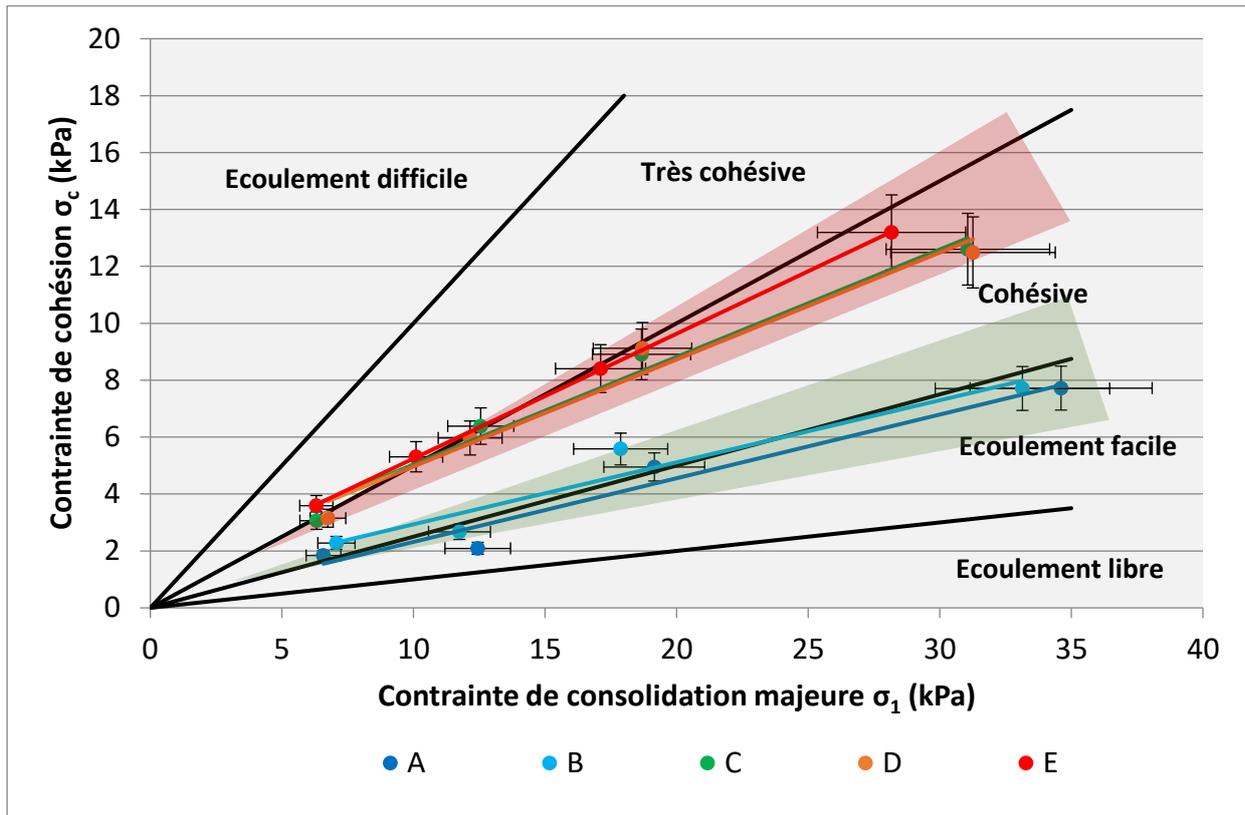


Figure 67 : Fonctions d'écoulement pour les différents lots (A 0% fines, B 10% fines, C 30% fines, D 50% fines et E 100% fines).

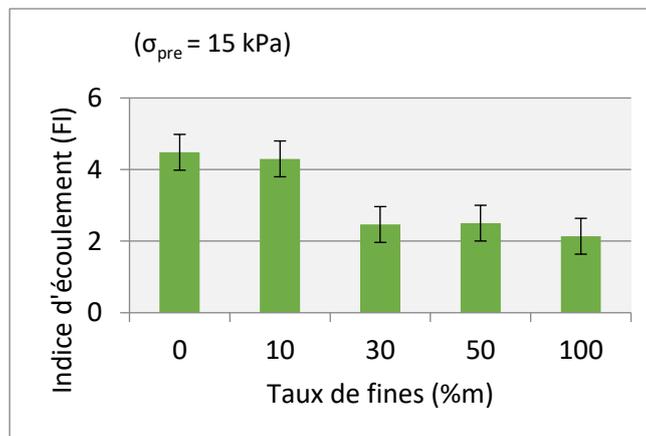


Figure 68 : Variation de l'indice d'écoulement en fonction de la quantité de fines (contrainte de préconsolidation de 15 kPa).

D'autres paramètres sont mesurés avec le test de cisaillement : la cohésion de la poudre qui est obtenue lorsque l'on trace l'ordonnée à l'origine du lieu d'écoulement, et l'angle de frottement interne

représentant le frottement des particules entre elles (cf. Chapitre 1, § 1.2.5). Nous verrons par la suite comment ces deux paramètres influencent la mise en écoulement lorsqu'on joue sur le taux de fines.

Tableau 5 : Récapitulatif des résultats des tests de cisaillement obtenus pour les poudres A0, B10, C30, D50 et E100.

Contrainte de préconsolidation	Poudre	Cohésion (kPa) [+/-10%]	σ_c (kPa) [+/-10%]	σ_1 (kPa) [+/-10%]	FI [+/- 0,5]	AIF (°) [+/-3°]
3 kPa	A0	0,6	2,7	6,7	2,5	32
	B10	0,6	2,3	7,1	3,1	31
	C30	0,9	3,2	6,3	2,0	33
	D50	0,8	3,2	6,7	2,1	35
	E100	1,0	3,3	6,0	1,8	28
6 kPa	A0	0,7	1,9	12,6	6,6	35
	B10	0,9	3,2	12,5	3,9	32
	C30	1,7	6,3	12,3	2,0	34
	D50	1,7	6,6	12,4	1,9	35
	E100	1,5	5,4	11,4	2,1	31
9 kPa	A0	2,6	9,3	18,5	2,0	32
	B10	2,3	8,6	19,5	2,3	33
	C30	1,1	4,4	19,6	4,5	35
	D50	1,4	5,3	18,8	3,5	34
	E100	2,4	8,4	17,1	2,0	31
15 kPa	A0	1,9	7,4	35,0	4,7	34
	B10	1,7	6,3	32,0	5,1	36
	C30	3,3	13,2	30,9	2,3	37
	D50	2,9	11,8	31,1	2,6	38
	E100	3,6	13,4	28,2	2,1	33

3.2.2.2 Angle de frottement interne

L'angle de frottement interne AIF, se situant entre le lieu d'écoulement et l'abscisse, a été déterminé pour toutes les poudres (Figure 69). On constate que quels que soient le taux de fines et la contrainte de préconsolidation, les lieux d'écoulement sont pratiquement parallèles ce qui traduit un angle de frottement identique pour toutes les poudres. Cette constance de l'angle de frottement interne entre les particules peut s'expliquer par un paramètre commun à toutes les poudres considérées dans cette étude : l'état de surface des granules. On peut faire l'hypothèse que vis à vis du frottement interparticulaire, le paramètre prépondérant n'est pas la taille des particules mais leur état surface. Cette hypothèse sera vérifiée plus loin dans l'étude.

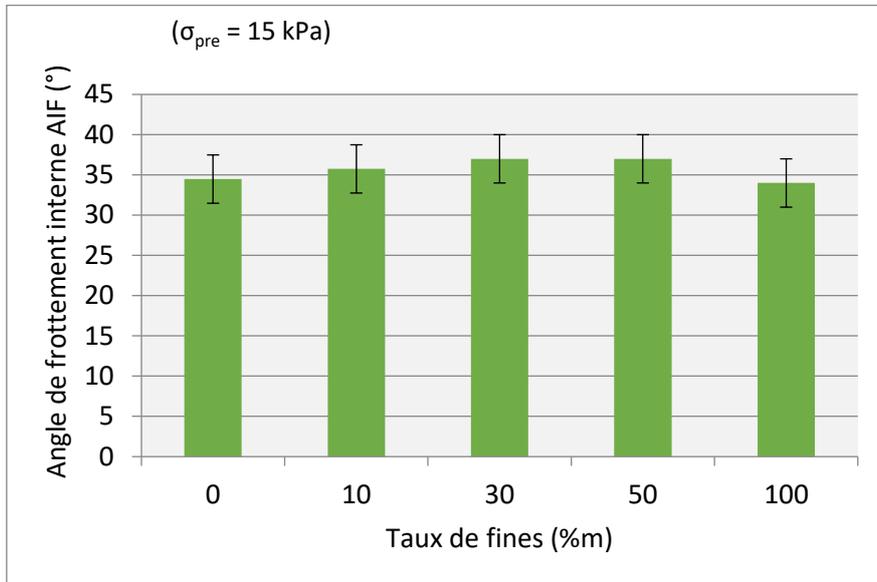


Figure 69 : Angle de frottement interne en fonction du taux de fines dans la poudre (contrainte de préconsolidation de 15 kPa).

3.2.2.3 Cohésion

La cohésion est un résultat des essais de cisaillement. Dans le tracé du lieu d'écoulement, la cohésion correspond à l'ordonnée à l'origine. La Figure 70 présente l'évolution de la cohésion de la poudre en fonction de la quantité de fines. On observe deux paliers : le premier à une valeur faible pour les poudres contenant de 0 et 10 %m de fines et le second, à une valeur plus élevée, pour les poudres contenant entre 30 et 100 %m de fines.

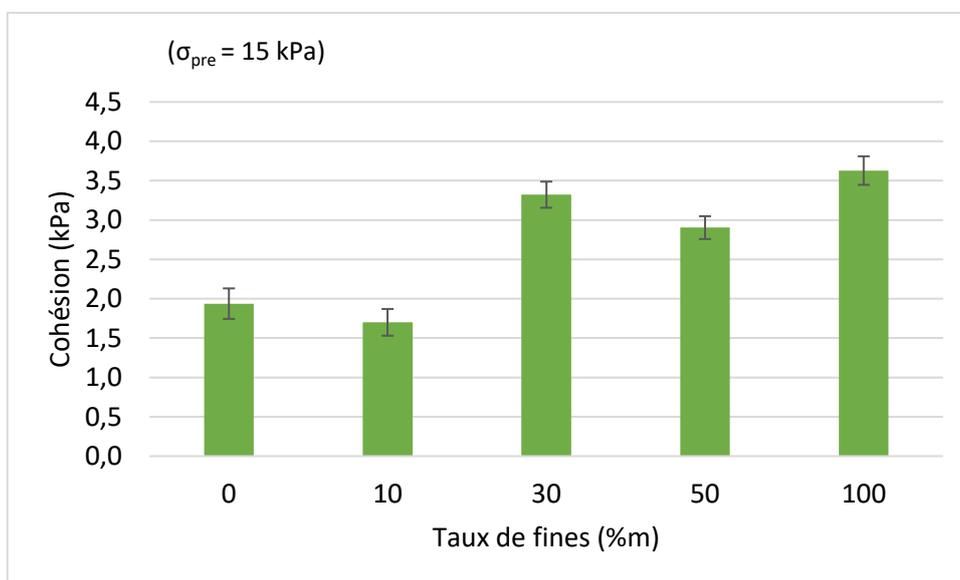


Figure 70 : Variation de la cohésion en fonction des différents taux de fines (contrainte de préconsolidation de 15 kPa)

Ainsi, pour prédire la cohésion d'une poudre, il est essentiel de prendre en compte la contrainte de préconsolidation qui lui est appliquée. Le critère de cohésion permet d'expliquer les phénomènes présents au sein de la poudre mais pas de différencier les poudres ayant un taux de fines inférieur à 10 %m ou supérieur à 30 %m.

Pour le régime de mise en écoulement, deux domaines peuvent être définis, correspondant à des valeurs de cohésion significativement différentes : l'un regroupe les poudres non-cohésives contenant 0 et 10 %m de fines et l'autre les poudres cohésives (30, 50 et 100 %m de fines).

Si les tests de mise en écoulement permettent ainsi de comprendre la « naissance » de l'écoulement, la question du comportement dynamique qui s'ensuit demeure, c'est l'objet de l'étude de l'écoulement.

3.3 MESURE DES PROPRIETES D'ECOULEMENT

La mesure des propriétés d'écoulement de la poudre a pour but de comprendre le comportement rhéologique de la poudre dans un état dynamique. Celui-ci est caractérisé par le test de perméabilité, mais aussi par les mesures dynamiques réalisées avec le rhéomètre FT4.

3.3.1 Test de perméabilité

Dans le procédé, l'air emprisonné dans le moule doit être évacué au travers de la poudre lors du remplissage. Rappelons que pour obtenir un bon remplissage, les particules doivent avoir des propriétés d'écoulement permettant à l'air de s'évacuer facilement. Le test de perméabilité est utilisé pour caractériser la capacité de remplissage car il indique avec quelle facilité l'air emprisonné dans le moule peut traverser le lit de poudre pour assurer un écoulement régulier et donc un bon remplissage.

Pour un flux d'air faible et constant de 2 mm.s^{-1} durant tout l'essai, en appliquant une charge croissante, la perte de charge mesurée (Figure 71) permet de déterminer la perméabilité de la poudre. Sur la Figure 72, la perméabilité k (déterminée avec l'Équation 41) est tracée en fonction de la contrainte de consolidation appliquée sur le lit de poudre.

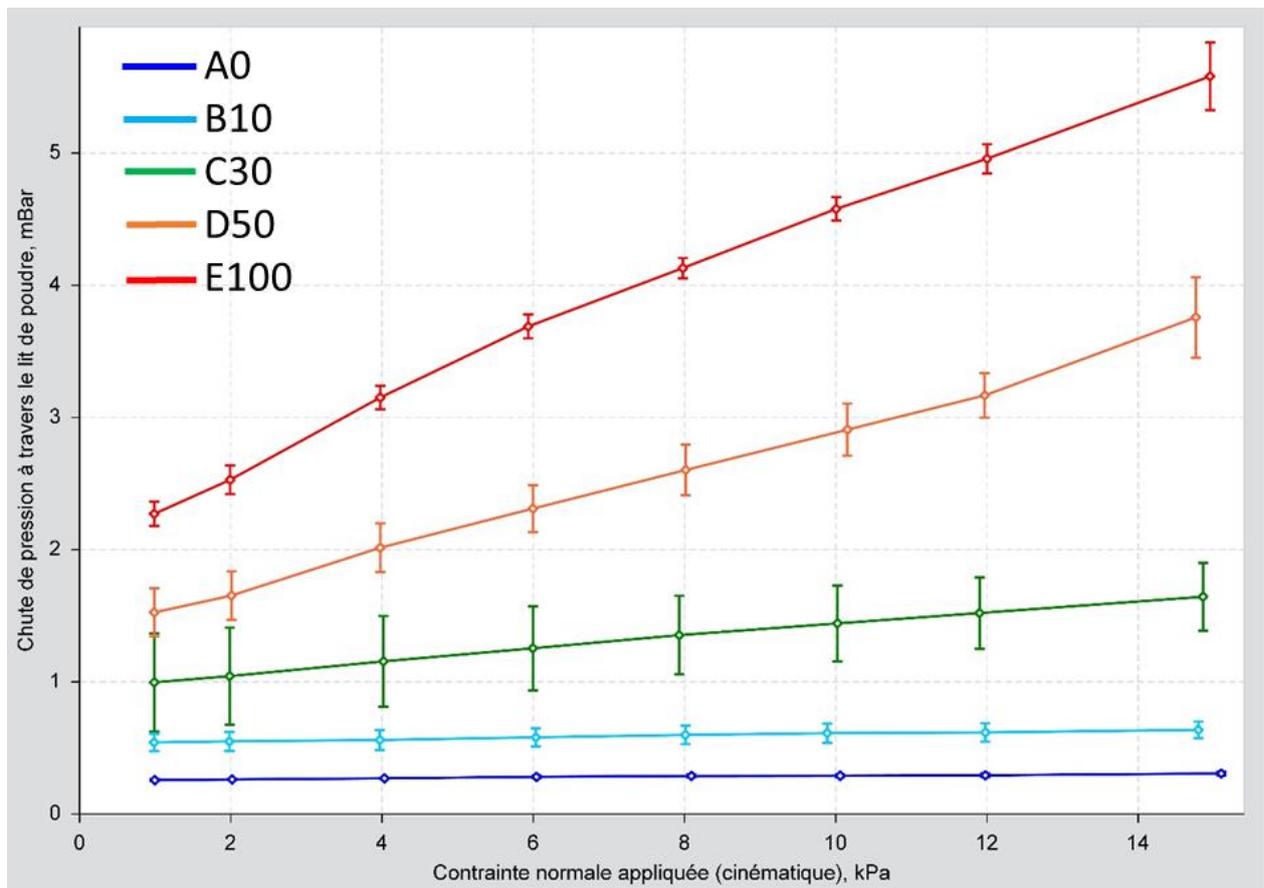


Figure 71 : Variation de la perte de charge ΔP en fonction de la consolidation normale appliquée sur le lit de poudre pour les différents lots.

La perméabilité est une fonction linéaire de la contrainte de consolidation (Figure 72). Elle est inversement proportionnelle à la perte de charge. On observe ainsi que plus il y a de fines dans le mélange, plus la perte de charge est élevée ce qui induit une faible perméabilité.

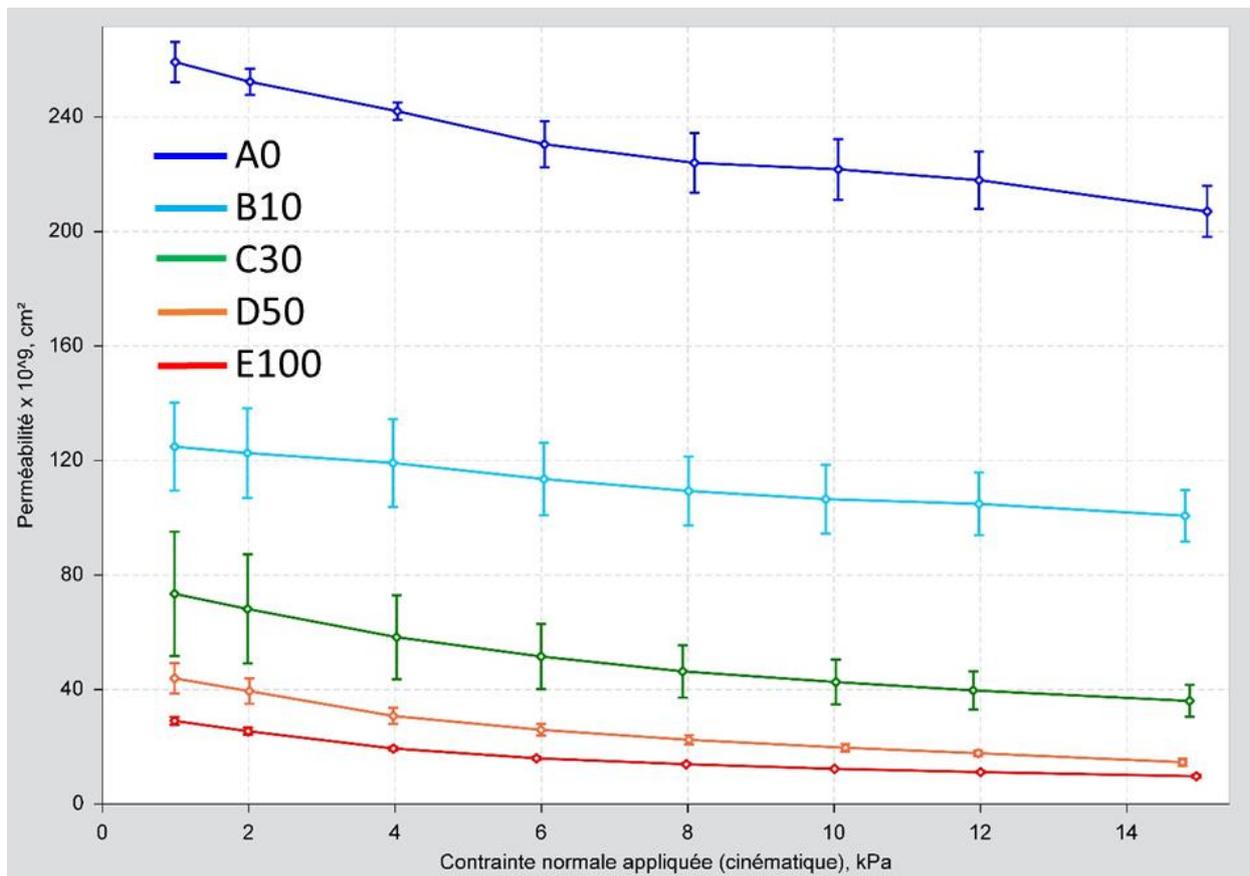


Figure 72 : Variation de la perméabilité k (cm^2) en fonction de la consolidation normale appliquée sur le lit de poudre pour les différents lots.

Sur la Figure 73, on observe donc une forte décroissance (exponentielle) de la perméabilité dès que des fines sont introduites dans le mélange. Plus il y a de fines, plus l'espace intergranulaire est faible, ce qui va empêcher le passage de l'air au travers du lit de poudre et entraîner une augmentation de la perte de charge. Le taux de fines influence donc fortement la perméabilité.

Une forte perte de charge, et donc une faible perméabilité, indique que la poudre présente un écoulement moins favorable au remplissage, et inversement. On peut ainsi prédire le comportement relatif de deux poudres du point de vue de l'écoulement.

Des tests de compressibilité avant et après le test ont été effectués ainsi que des tests de granulométrie pour observer une éventuelle dégradation ou ségrégation de la poudre. Les résultats sont présentés dans le Tableau 6. Les données montrent que le débit d'air et les contraintes normales mis en jeu dans le test de perméabilité ne sont pas destructifs pour la poudre.

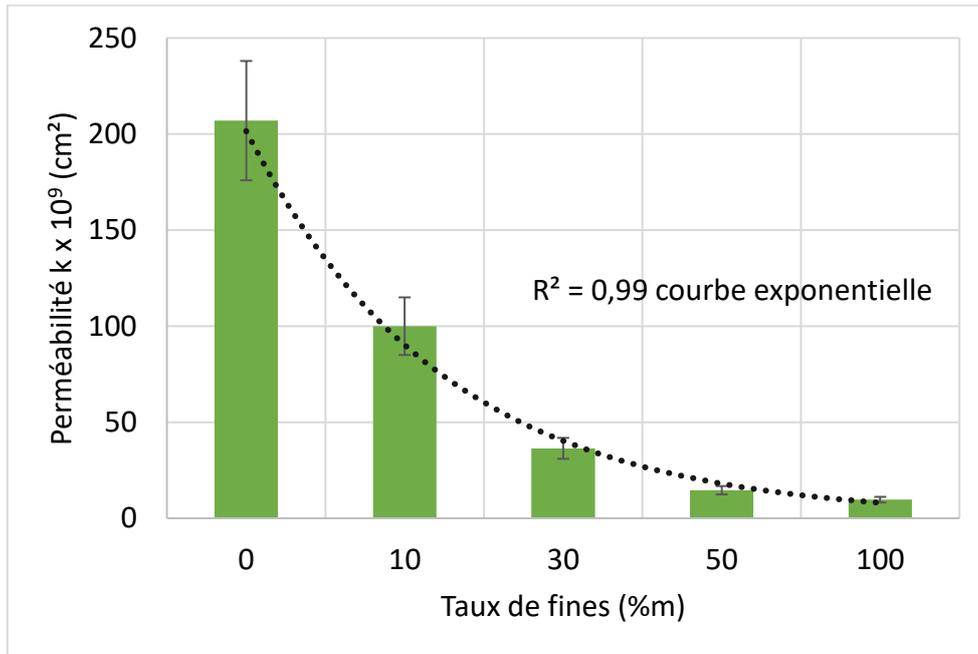


Figure 73 : Perméabilité en fonction de la quantité de fines (15 kPa).

Tableau 6 : Compressibilité à une contrainte de consolidation de 15 kPa avant et après le test de perméabilité.

Taux de fines (%m)	Compressibilité avant perméabilité (%)	Compressibilité post perméabilité (%)
0	5,6 (±1,0)	5,9 (±1,0)
100	22,3 (±1,0)	21,7 (±1,0)

3.3.2 Tests dynamiques : Variable Flow Rate (VFR)

Des tests dynamiques ont été réalisés sur les cinq poudres pour mieux comprendre leur comportement lors des transferts et du remplissage des moules de presse. Cet essai est considéré comme représentatif de l'état libre de la poudre dans un environnement confiné. Les résultats du test VFR sont représentés sur la Figure 74 et les indices caractéristiques des différents mélanges sont résumés dans la Figure 75.

D'après les résultats de perméabilité et de cisaillement, on peut déjà supposer que plus il y a de fines, plus la poudre devient cohésive. Or, l'énergie d'écoulement de base, BFE, représentant l'énergie au test 7 (Figure 75), mesurée pour les lots A0 et B10 (0 et 10 %m de fines), est plus élevée que pour les lots C30, D50 et E100 (30, 50 et 100 %m de fines) : deux domaines se différencient (moins de 10 %m de fines et plus de 30 %m de fines).

Les résultats présentés Figure 74 semblent indiquer que plus une poudre est composée de fines, plus l'énergie mesurée par la pale est faible. Une interprétation de cette diminution d'énergie est due à un effet de compressibilité. Lorsque le taux de fines augmente, cela augmente la compressibilité et donc, quand la pale passe dans le lit de poudre, elle compacte la poudre dans un volume restreint. La zone

d'influence de la pale est donc faible ce qui conduit à une énergie d'écoulement faible.

L'énergie spécifique (SE) caractérise la cohésion de la poudre lors de la remontée de la pale c'est-à-dire caractéristique d'un écoulement non confiné. D'après la Figure 75, le SE est peu sensible au taux de fines.

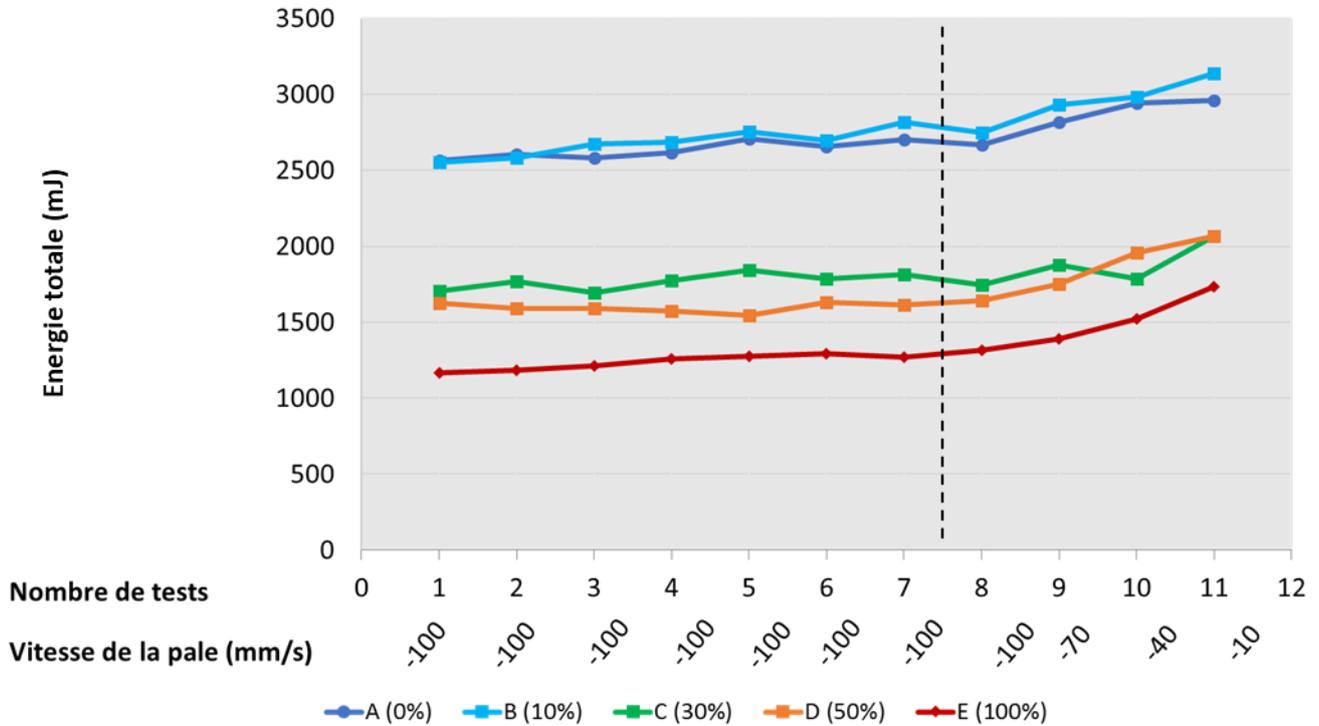


Figure 74 : Évolution de l'énergie nécessaire à déplacer la poudre pour des vitesses de pale données : test VFR [Δ Energie = +/-200 mJ].

La mesure du rapport FRI est la mesure d'un rapport entre des énergies d'écoulement à différentes vitesses de rotation de la pale. Le FRI augmente faiblement avec la quantité de fines (Figure 75), ce phénomène est dû à la cohésion de la poudre. Plus la quantité de fines augmente, plus la poudre est cohésive induisant une augmentation de l'énergie au test n°11 (avec une faible vitesse de rotation de 10 mm.s^{-1}) comparativement au test n°8 (à 100 mm.s^{-1}). En diminuant la vitesse, l'air piégé dans le lit de poudre peut s'évacuer facilement et permettant ainsi à la poudre déplacée d'occuper plus facilement le vide laissé après la trainée de la pale. Ces résultats sont en accord avec le comportement des poudres prédit par la littérature, plus la quantité de fines augmente, plus la poudre est cohésive et l'écoulement est difficile.

Concernant l'indice de stabilité (SI) (Figure 75), il est identique pour les différents lots avec une valeur proche de 1. La valeur de SI ne dépend pas de la quantité de fines introduite dans le mélange, mais traduit la bonne stabilité de la poudre dans les conditions du test VFR. L'augmentation de la teneur en fines n'entraîne pas de modification du comportement de la poudre lors des différents passages de la pale.

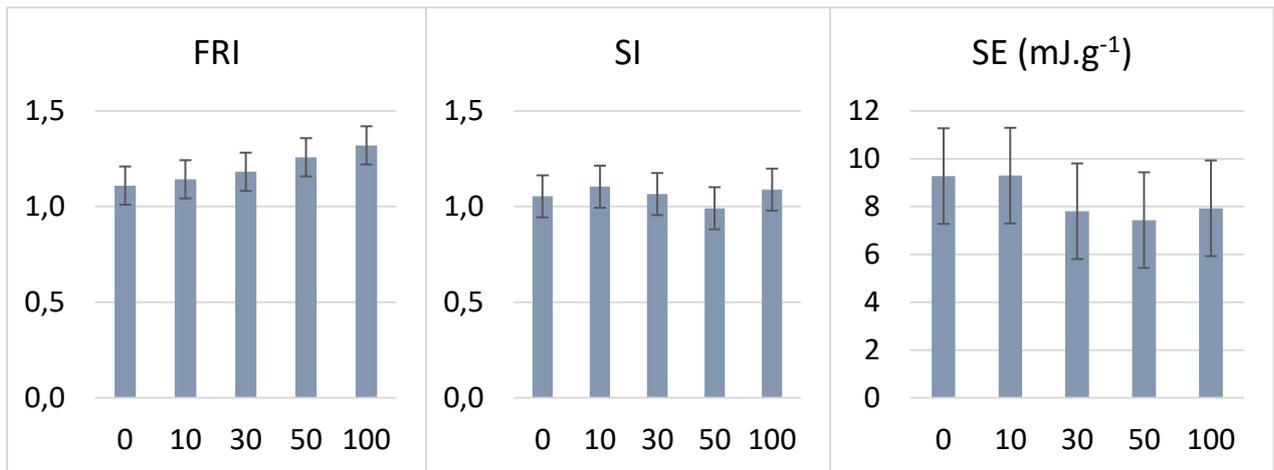
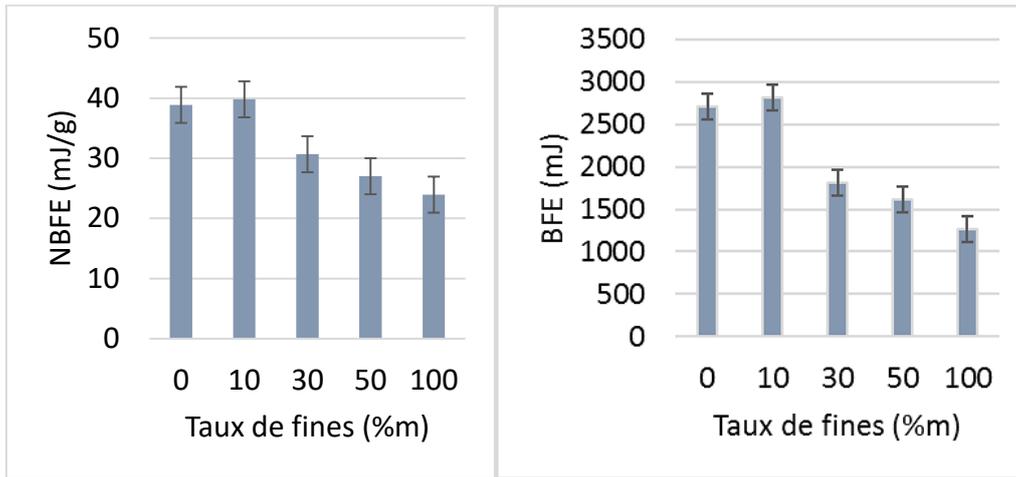


Figure 75 : Détermination des différents indices mesurés (BFE, FRI, SI et SE) en fonction de la teneur en fines (%m).

Test destructif VFR

Après le test de VFR, une mesure granulométrique ainsi qu'une mesure de compressibilité ont été effectuées (Tableau 7). Ces deux tests ont révélé un phénomène d'attrition (apparition de fines due à la désagglomération des granules). Cette quantité de fines reste très faible car elle n'entraîne pas de variation de l'indice de stabilité SI. Après avoir subi ce test, la poudre ne présente plus les mêmes propriétés que dans son état initial. Cela peut être dû au passage de la lame qui, lors de sa descente, va effectuer un mouvement de cisaillement et de compression, favorisant la destruction d'une fraction des particules. La lame brise très probablement quelques agglomérats lors de la descente, produisant des fines. Dans notre cas, le test VFR est alors considéré par précaution comme destructif.

Tableau 7 : Compressibilité à une contrainte de consolidation de 15 kPa avant et après le test de VFR.

Taux de fines (%m)	Compressibilité avant VFR (%)	Compressibilité post VFR (%)
0	5,9 ($\pm 1,0$)	11 ($\pm 1,0$)
100	21,7 ($\pm 1,0$)	26,7 ($\pm 1,0$)

3.4 CONCLUSION

Dans notre étude, plus la quantité de fines augmente plus les propriétés rhéologiques de la poudre sont mauvaises (cf. Chapitre 1, § 1.3.1). Différents tests nous ont permis de démontrer cet impact négatif des fines.

L'indice d'écoulement (FI) est représentatif de la transition de la poudre d'un état statique à un état dynamique. Ce facteur dépend de l'angle de frottement interne et de la cohésion de la poudre (Équation 24). Lorsqu'on augmente le taux de fines, la cohésion augmente ce qui permet de démontrer l'augmentation des forces interparticulaires. Alors que l'angle de frottement interne reste le même pour tous les mélanges lors de la rupture. L'angle de frottement interne étant similaire pour les poudres à différentes quantités de fines, on suppose ainsi que la force de friction est présente, mais est similaire pour toutes les poudres étudiées dans ce cas.

La mesure du BFE peut être interprétée comme suit : la pale en descendant effectue un mouvement de compression et de cisaillement. D'après le test de compressibilité, l'augmentation des fines donne une poudre très compressible et fortement cohésive. Les lits de poudre constitués de grosses particules sont moins compressibles que les fines en raison de leur faible capacité à piéger l'air. Lors du passage de la pale durant le test VFR, les grosses particules faiblement compressibles entraîneront la mobilisation d'un volume important de poudre (zone d'écoulement importante) et donc une énergie BFE élevée pour les grosses particules. Ainsi lorsque le taux de fines est élevé, la lame traverse une poudre plus cohésive, donc facilement compressible. Le volume de poudre déplacé par la pale est donc très petit d'où une mesure d'énergie d'écoulement BFE plus faible pour les fines.

La perméabilité des poudres étudiées diminue fortement dès l'introduction d'un taux de fines équivalent à 10 %m. La perméabilité est liée au volume et à la structure de la porosité interparticulaire. Les fines remplissent les espaces interparticulaires, ce qui conduit à la formation d'un milieu compact empêchant l'air de traverser le lit de poudre. Pour cette raison, les fines ont un impact important sur l'écoulement de la poudre dans un moule et donc sur la possibilité d'obtenir un processus de remplissage reproductible et stable.

La Figure 76 propose une comparaison des différents tests de mise en écoulement et d'écoulement. Les résultats permettent d'identifier deux zones :

- Zone de comportement très cohésif avec $FF < 4$ et $k < 100 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2$ (avec un débit d'air de $2 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$) : pour les lots C, D et E (la quantité de fines est supérieure à 30 %m). La poudre se met en

écoulement et s'écoule difficilement, elle présente en outre une résistance à l'évacuation de l'air. L'air étant facilement piégé dans la poudre, celle-ci présente donc une forte compressibilité (d'où une forte valeur de FRI et une faible valeur de NBFÉ).

- Zone de comportement peu cohésif $FF > 4$ et $k > 100 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^2$ (avec un débit d'air de $2 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$) : Pour les lots A et B (0 et 10 %m de fines), la compressibilité varie peu et la perméabilité est forte. La poudre présente un meilleur comportement de mise en écoulement et d'écoulement que dans la zone de comportement très cohésif. Cette zone, contrairement à la zone cohésive, serait favorable à un remplissage reproductible et homogène des moules de presse comme décrit par Freeman [Freeman, 2009] (cf. Chapitre 1, § 1.3.4).

Contrairement au test de cisaillement, le test de perméabilité a permis de différencier toutes les poudres, même celles ayant un taux de fines supérieur à 30 %m. Le comportement du mélange apparaît conditionné par la quantité de fines particules. Au-dessous de 10 %m de fines, le comportement de la poudre est gouverné par les grosses particules. Au-delà de 30 %m de fines, les fines particules remplissent les espaces vides entre les grosses particules, ce qui réduit le nombre de contacts directs entre grosses particules et provoque la formation d'une poudre cohésive.

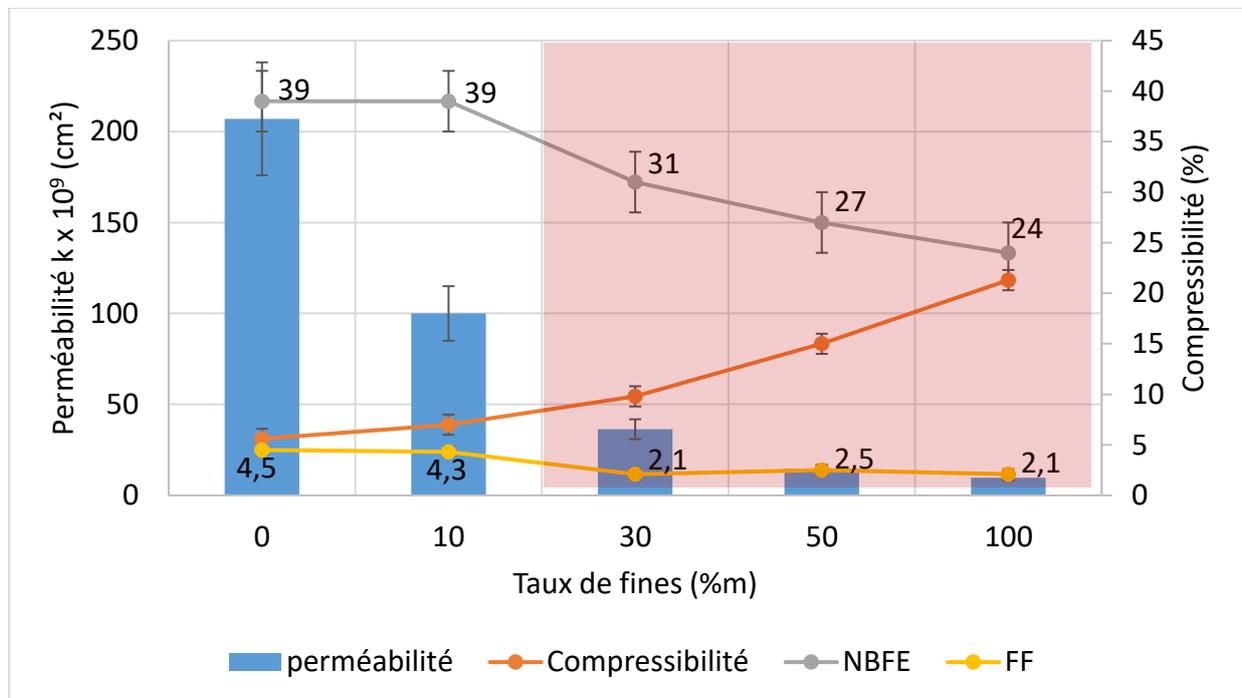


Figure 76 : Variation de la perméabilité, de la compressibilité, du NBFÉ et de l'indice d'écoulement en fonction du taux de fines. (Mesures à $\sigma_{pre} = 15 \text{ kPa}$)

Le contrôle de la distribution granulométrique a permis une certaine compréhension du comportement rhéologique de la poudre d' UO_2 en fonction de la quantité de fines dans le mélange. Pour une meilleure connaissance du domaine de transition entre 10 et 30 %m de fines, il serait nécessaire d'étudier des quantités de fines intermédiaires entre 10 et 30% afin d'observer le passage d'une poudre non-cohésive à cohésive. Les fines déterminent donc le comportement macroscopique de la poudre [Lumay, 2012]. Il

faut aussi prendre en compte qu'en utilisant différentes méthodes de caractérisation rhéologique, certains types de test sont plus sensibles à l'augmentation du taux de fines que d'autres. Il est donc nécessaire lors de l'étude des propriétés rhéologiques d'une poudre de prendre en considération un type de test cohérent avec les conditions d'utilisation de la poudre.

Pour répondre à la problématique industrielle, une étape de tamisage permettrait de contrôler la quantité de fines dans la distribution granulométrique. Dans le cas de notre étude, la quantité maximale de fines acceptable dans le mélange est inférieure à 30 % m pour que la poudre reste dans le domaine peu cohésif. Ainsi, les forces d'interaction entre les grains seraient faibles devant la gravité. Cette quantité limitée de fines dans le mélange permettrait à la poudre de passer aisément d'un état statique à un état dynamique (par exemple, pour remplir facilement le moule de presse annulaire). De plus, pour des fortes contraintes de consolidation (15 kPa), ces poudres à faible quantité de fines restent perméables et peu compressibles. Ces caractéristiques autorisent un écoulement facile de la poudre dans le moule de presse, permettant un remplissage homogène et reproductible (cf. Chapitre 1, § 1.3.4).

L'étude purement granulométrique (pour une morphologie donnée) ne permet pas d'expliquer tous les phénomènes mis en jeu lors de la mise en écoulement et de l'écoulement, qui permettraient de mieux appréhender les différents types d'interactions entre les particules. C'est pourquoi une étude de l'influence de la morphologie est également nécessaire, afin de mieux comprendre le comportement des poudres. Cette étude est décrite dans le chapitre suivant.

CHAPITRE IV : INFLUENCE DE LA MORPHOLOGIE SUR L'ÉCOULEMENT

4.1	Présentation du dispositif de brassage : Le Turbula	96
4.1.1	Modification de la morphologie	97
4.1.2	Phénomène de sphéroïdisation	98
4.2	Modification de la morphologie des granulés : résultats rhéologiques.....	101
4.2.1	Mesures de compressibilité	101
4.2.2	Essais de cisaillement	102
4.2.3	Mesures dynamiques	107
4.3	Analyse microscopique du cisaillement.....	113
4.3.1	Dilatation	113
4.3.2	Estimation théorique des forces d'interactions.....	115
4.3.3	Estimation des forces d'interactions expérimentales.....	117
4.3.4	Synthèse.....	119
4.4	Discussion	119

Chapitre IV : Influence de la morphologie sur l'écoulement

L'étude du comportement de la poudre permet de comprendre l'influence de chacun de ses paramètres intrinsèques sur sa cohésion et le lien avec les forces d'interaction à l'échelle microscopique. Ce chapitre porte sur un paramètre important caractérisant les particules : leur morphologie de surface. Cette dernière présente la possibilité d'être modifiable au sein du laboratoire. On peut considérer cette morphologie de surface comme la rugosité des particules. La contrôler peut être bénéfique à la mise en écoulement et à l'écoulement de la poudre.

4.1 PRESENTATION DU DISPOSITIF DE BRASSAGE : LE TURBULA

Pour modifier la rugosité de surface des particules, un Turbula a été utilisé. Le Turbula est un mélangeur conçu par la société WAB (Willy A. Bachofen) AG. Il utilise la centrifugation et la force gravitationnelle pour mélanger les particules. Il effectue ainsi un mouvement tridimensionnel : une translation, une rotation ainsi qu'une inversion [Schatz, 1975]. Ce mouvement est de type chaotique, mais permet un mélange homogène satisfaisant.

Il est composé d'un panier de mélange qui peut contenir différents volumes de récipient. Le récipient est maintenu fermement par des anneaux en caoutchouc torsadés. Puis la vitesse du mouvement est réglée par la position des courroies d'entraînement sur la poulie à 5 étages (22, 32, 46, 68 ou 96 tr.min⁻¹). Le récipient contenant la poudre est placé dans le mouvement tridimensionnel qui oblige la poudre à toujours être en mouvement dans un rythme régulier. La Figure 77 montre une image du mélangeur Turbula.

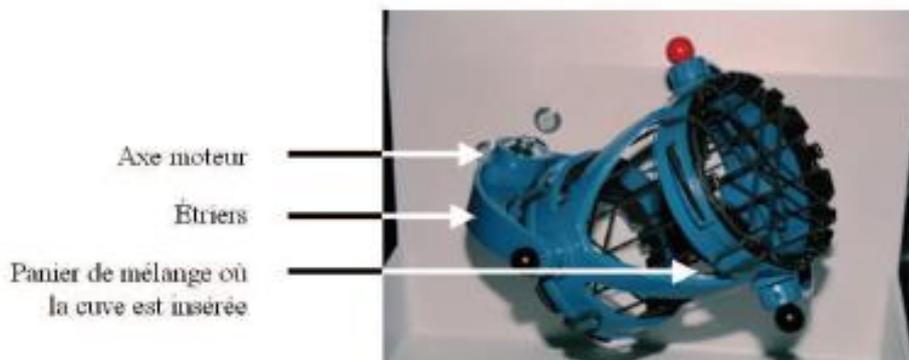


Figure 77 : Le mélangeur Turbula

Différents paramètres peuvent influencer le mélange au sein du Turbula. Les conditions expérimentales utilisées sont les suivantes :

Le volume du récipient : on a utilisé dans ces travaux le même volume de récipient polyéthylène à chaque utilisation.

Le taux de remplissage : le récipient a été rempli environ aux trois quarts selon les paramètres préconisés par le constructeur.

La vitesse du mélange et le temps du mélange sont deux variables qui seront modifiées dans la suite de cette étude afin de pouvoir modifier la morphologie de la poudre.

4.1.1 Modification de la morphologie

Comme décrit précédemment, les granulés d'UO₂ sont obtenus par un pressage isostatique à 150 MPa suivi d'un concassage. Ces granulés grossiers sont broyés au Frewitt (Chapitre 2). Ils sont ensuite brassés au Turbula pour subir une sphéroïdisation.

Afin de déterminer les conditions optimales de vitesses et temps de brassage au Turbula pour obtenir une sphéroïdisation des granulés, on a fait varier ces deux paramètres comme suit :

- la vitesse du Turbula : 22 et 96 tr.min⁻¹,
- le temps de brassage : 20 à 60 min.

On a ainsi défini plusieurs expériences afin d'observer l'influence de ces paramètres sur la morphologie de la poudre. L'état initial est noté 1, cette poudre est composée de granulés qui n'ont pas subi de modification au Turbula. Les autres états obtenus sont numérotés de 2 à 4 (Tableau 8, Figure 78).

Tableau 8 : Les différents paramètres de brassage des granulés.

Poudre	Vitesse du mélange (tr.min ⁻¹)	Temps de brassage (min)
Etat 1	0	0
Etat 2	22	60
Etat 3	22	20
Etat 4	96	20

La poudre initiale Etat 1 (Tableau 8, Figure 78) est constituée de granulés d'aspect très rugueux. Pour une faible vitesse de Turbula (Etat 2 et Etat 3), on peut voir que quel que soit le temps de brassage, les particules se sphéroïdisent modérément avec beaucoup de satellites collés sur les granulés. En augmentant la vitesse du Turbula et pour un faible temps de brassage (environ 20 min), les particules sont beaucoup plus lisses avec très peu de satellites à leur surface (Etat 4). Les particules satellites seront appelées des superfines. Pour le niveau élevé de sphéroïdisation, on peut supposer deux phénomènes :

- il y a eu détachement des superfines des grosses particules et une ré-agglomération entre elles.
- les superfines ont rempli les aspérités des grosses particules entraînant un lissage de la surface de ces dernières.

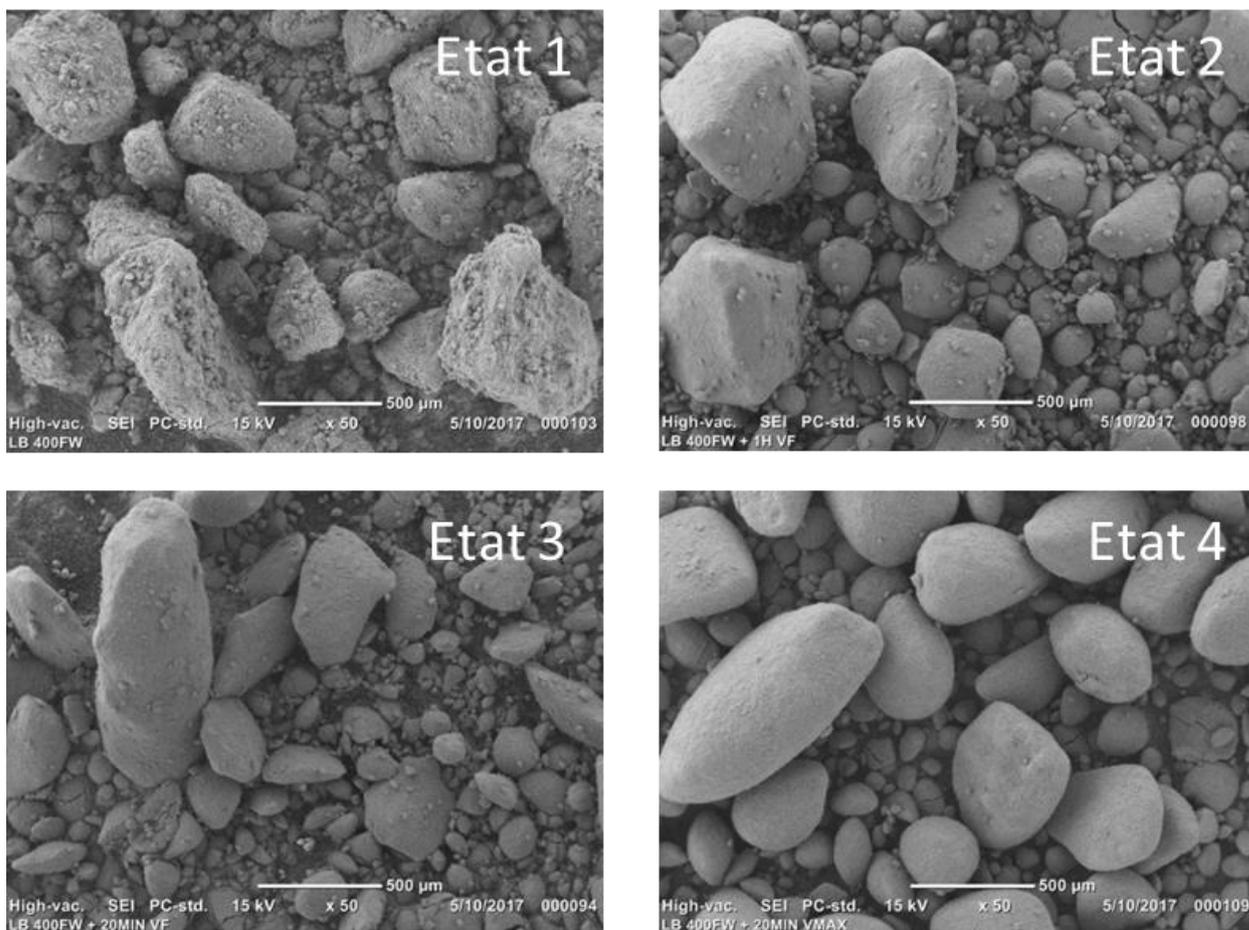


Figure 78 : Image MEB : Les différentes morphologies en fonction des paramètres du Turbula (Etat 1 : poudre initiale).

Le degré de sphéroïdisation obtenu pour une vitesse de 96 tr.min^{-1} et pendant 20 min est suffisant pour modifier significativement la morphologie des granulés. Ce sont ces conditions qui seront utilisées dans la suite de l'étude. Dans notre cas, la sphéroïdisation est ainsi la transformation de la particule irrégulière avec un état de surface très rugueux en une particule avec un état de surface plus lisse. On observera ainsi l'influence de cette forme de rugosité sur l'écoulement.

4.1.2 Phénomène de sphéroïdisation

Dans cette étude de la morphologie, 4 poudres définies comme suit seront étudiées :

- Poudre sans fines étudiée dans le Chapitre 3 : « Grosses rugueuses A0 »
- Poudre sans fines sphéroïdisée : « Grosses lisses AS0 »
- Poudre contenant que des fines non-sphéroïdisées étudiée dans la partie 3 : « Fines rugueuses E100 »
- Poudre contenant que des fines : « Fines lisses ES100 »

Les poudres sphéroïdisées étudiées sont obtenues en réalisant d'abord l'opération de sphéroïdisation

puis l'opération de tamisage.

La Figure 79 montre la morphologie des différents échantillons. En utilisant le MEB, on peut observer l'évolution de la morphologie par le brassage que ce soit pour les fines ou pour les grosses particules. On définit deux états de morphologie de surface : un état rugueux et un état qu'on supposera lisse par rapport à l'état précédent.

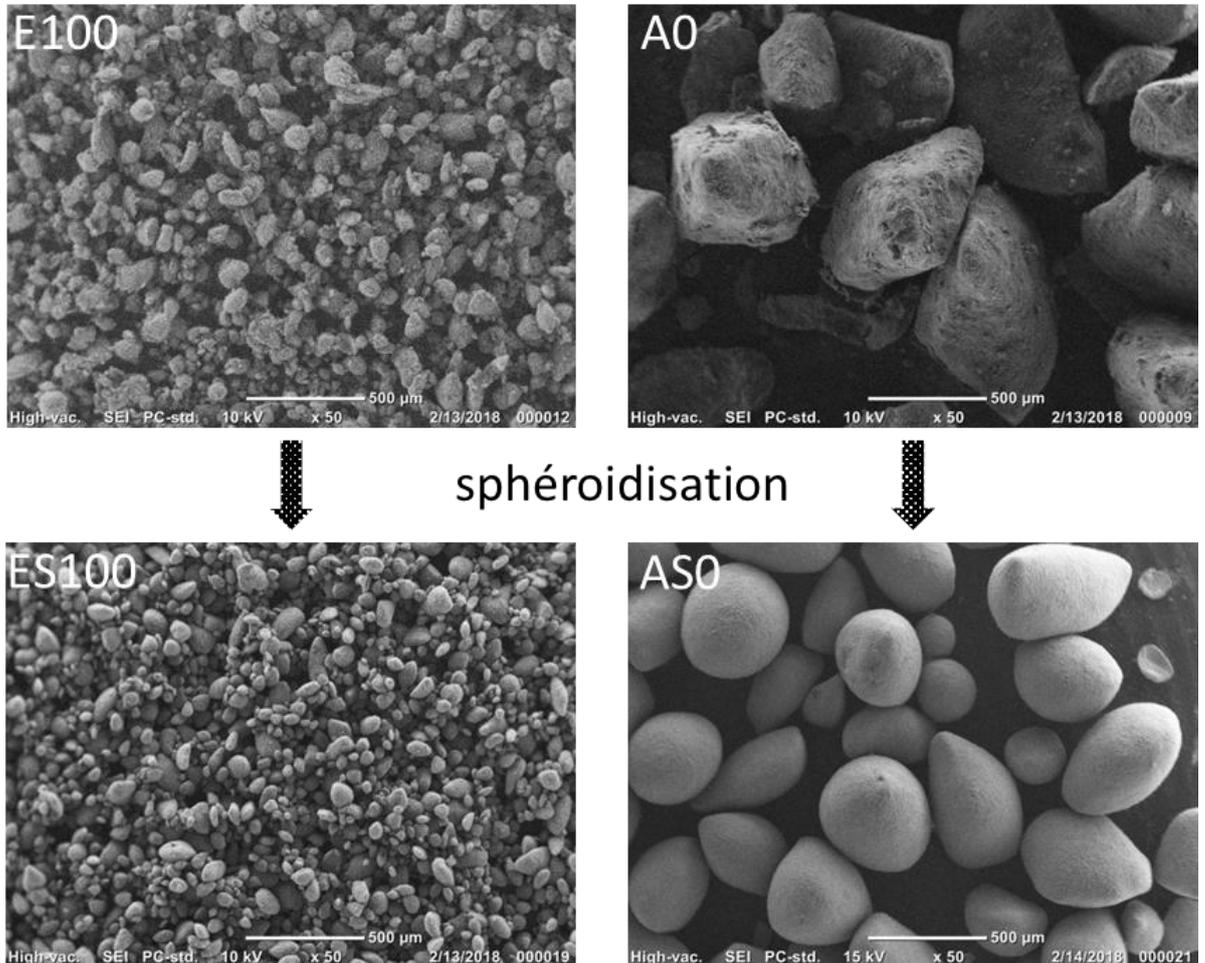


Figure 79 : Images MEB des quatre poudres étudiées.

La Figure 80 superpose les distributions granulométriques pour les poudres étudiées (granulométrie laser en voie sèche). Les différences de distributions avec et sans sphéroidisation apparaissent faibles. Les tailles de particules sont donc considérées comme similaires pour les poudres avec et sans sphéroidisation.

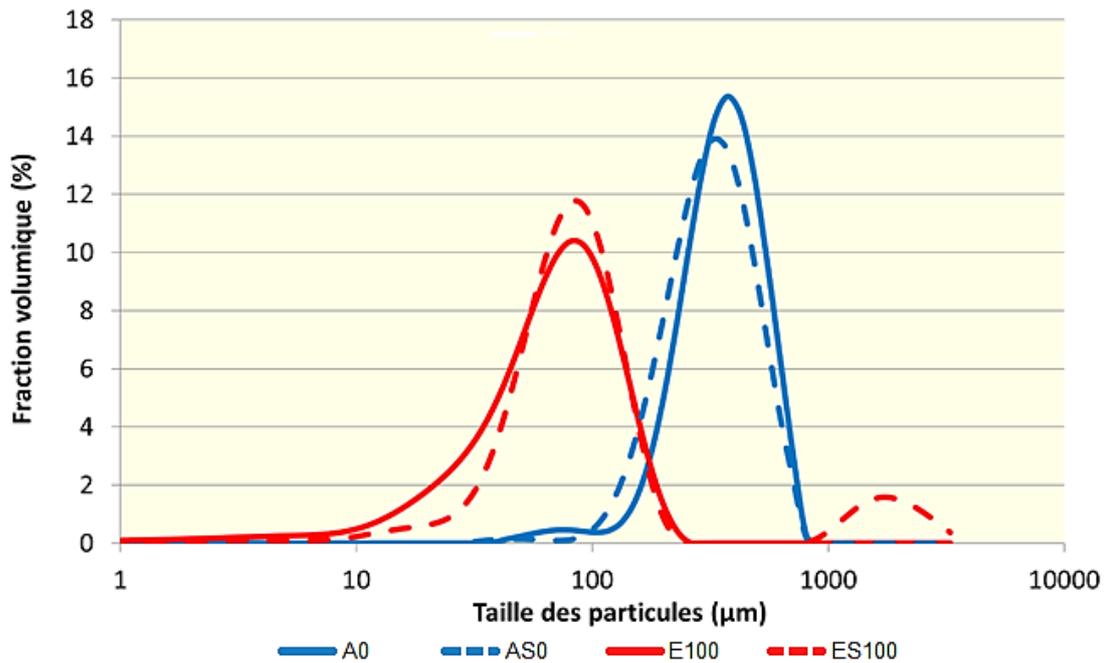


Figure 80 : Distributions granulométriques des poudres (0 %m fines sphéroïdisées AS0; 0 %m fines non-sphéroïdisées A0; 100 %m fines sphéroïdisées ES100; 100 %m fines non-sphéroïdisées E100).

Comme indiqué précédemment, le tamisage est réalisé après la sphéroïdisation pour obtenir les poudres ES100 et AS0. Une quantité de fines est récupérée après tamisage et ne représente qu'environ 10 % de la quantité de matière au lieu des 30 % de fines récupérés sans sphéroïdisation préalable. Cette diminution de fines associée à l'aspect lisse des particules laisse penser qu'il s'est produit un enrobage des particules (Figure 79). Or au niveau de la distribution granulométrique de la poudre AS0 (Figure 80) un petit décalage de la distribution granulométrique vers les petites tailles est observé. Ce qui peut s'expliquer par une réduction de taille des agglomérats, peut-être par érosion des aspérités de surface. Le phénomène qui se produit dans le Turbula semble donc être un mélange d'agglomération et de réduction de taille correspondant à un transfert par abrasion (Figure 81).

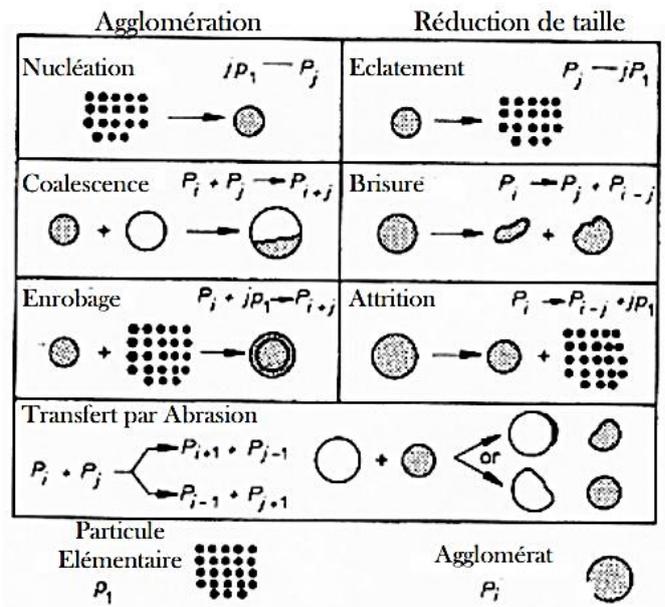
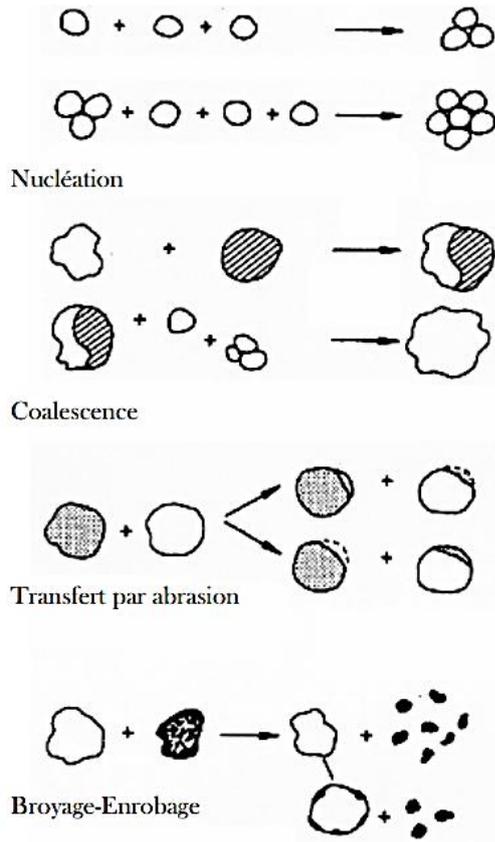


Figure 81 : Mécanismes de changement de taille [Sastry, 1973].

L'étude des propriétés rhéologiques est réalisée pour les poudres sphéroïdisées afin d'évaluer l'influence de la rugosité. Les différentes mesures rhéologiques sont présentées dans la partie suivante.

4.2 MODIFICATION DE LA MORPHOLOGIE DES GRANULES : RESULTATS RHEOLOGIQUES

Les granules de distributions granulométriques et d'états de surface différents sont étudiés pour déterminer l'impact de la morphologie sur les propriétés de mise en écoulement et d'écoulement de la poudre.

4.2.1 Mesures de compressibilité

La compressibilité reflète la capacité de compression des poudres sous contrainte normale. Elle est généralement affectée par les forces d'interactions et surtout l'empilement des particules. La compressibilité rend donc compte de la cohésion de la poudre et de son aptitude à se réarranger.

La Figure 82 présente les mesures de compressibilité correspondant aux quatre poudres étudiées.

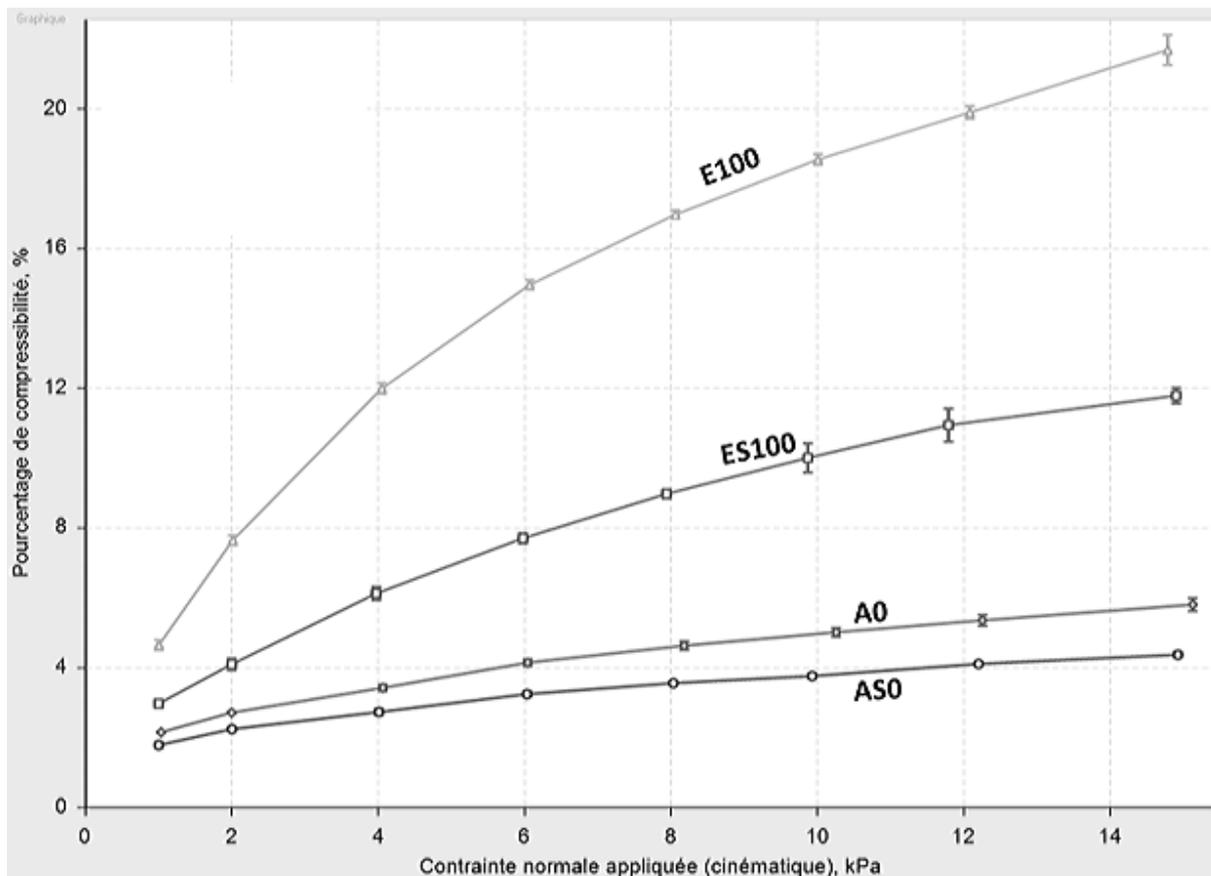


Figure 82 : Mesures de la compressibilité pour des poudres de morphologies différentes (grosses lisses AS0, grosses rugueuses A0, fines lisses ES100, fines rugueuses E100).

Pour une même granulométrie, on note une évolution de la compressibilité en fonction de l'état de surface. Pour une même contrainte normale, la compressibilité de la poudre sphéroïdisée est plus faible dans le cas des grosses et plus forte dans le cas des fines.

Pour les grosses particules, l'effet de la sphéroïdisation sur la compressibilité peut être considéré comme faible. La sphéroïdisation impacte particulièrement la compressibilité des fines. On peut ainsi retenir que la sphéroïdisation des particules a permis d'avoir un milieu moins compressible induisant un plus faible réarrangement du lit de poudre.

4.2.2 Essais de cisaillement

Pour mieux comprendre l'influence de la morphologie sur la mise en écoulement, des essais de cisaillements ont été réalisés. Le protocole opératoire énoncé dans le chapitre 3 a été utilisé. Pour chaque poudre, on réalise les tests aux mêmes contraintes de préconsolidation 3, 6, 9 et 15 kPa. Les résultats regroupant les lieux d'écoulement sont présentés sur la Figure 83, avec un écart-type maximal observé sur l'ensemble des essais de 10% pour la mesure des contraintes déterminée sur au moins trois répétitions du test pour chaque poudre.

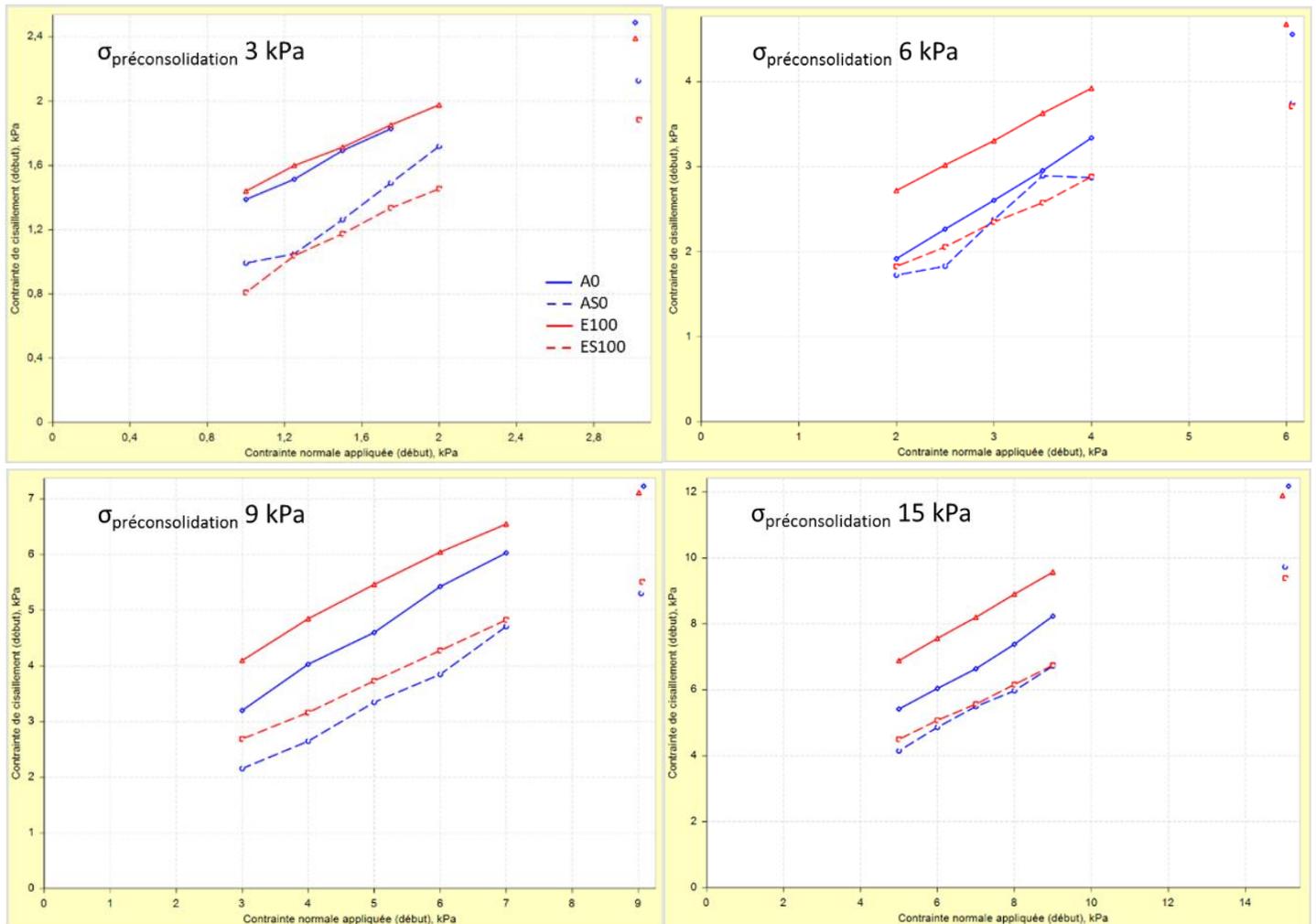


Figure 83 : Lieux d'écoulement à différentes contraintes de préconsolidation 3, 6, 9 et 15 kPa (grosses lisses AS0, grosses rugueuses A0, fines lisses ES100, fines rugueuses E100).

Une fois les lieux d'écoulement obtenus, la contrainte de cohésion σ_c (petit cercle de Mohr), la contrainte de consolidation majeure σ_1 (grand cercle de Mohr), la cohésion de la poudre C (ordonnée à l'origine), les angles de frottements et l'indice d'écoulement FI peuvent être déterminés. Les résultats du test de cisaillement sont regroupés dans le Tableau 9.

4.2.2.1 Angles de frottement

D'après la Figure 83, pour une préconsolidation donnée, les lieux d'écoulement sont parallèles pour les quatre poudres. Les angles de frottement interne AIF, interne effectif AIFE et l'angle de frottement à l'état stationnaire AIFS sont déterminés grâce au traçage du lieu d'écoulement et du point de précisaillement. Comme montré en Figure 84, pour une même poudre, les angles varient peu avec la consolidation du lit de poudre. Pour la comparaison de chaque angle, on fera la moyenne pour une poudre donnée des angles obtenus pour les différentes contraintes de préconsolidation.

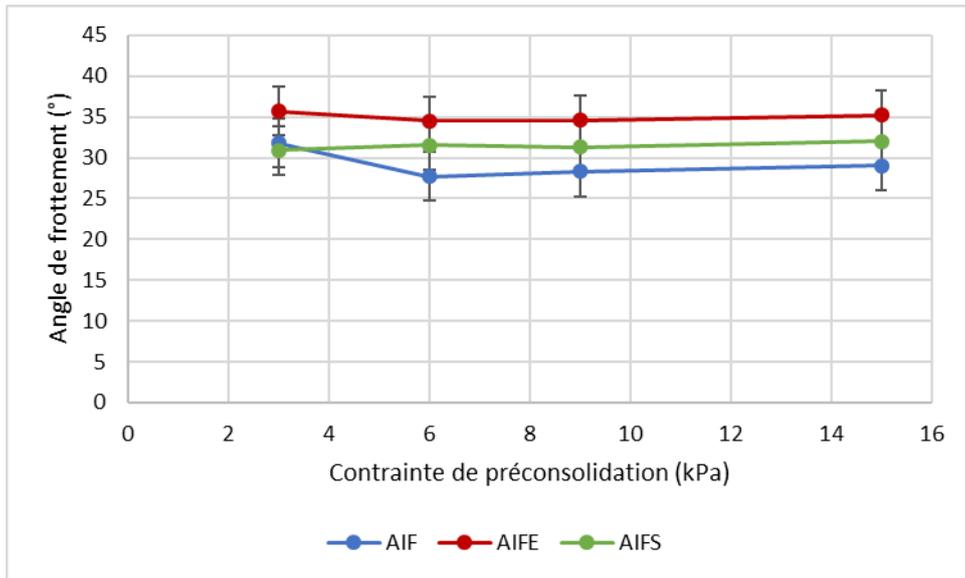


Figure 84 : Évolution des angles de frottement AIF, AIFE et AIFS en fonction de la contrainte de préconsolidation pour une poudre donnée (exemple des fines lisses ES100).

La Figure 85 présente une comparaison des mesures d'angle de frottement pour les quatre poudres.

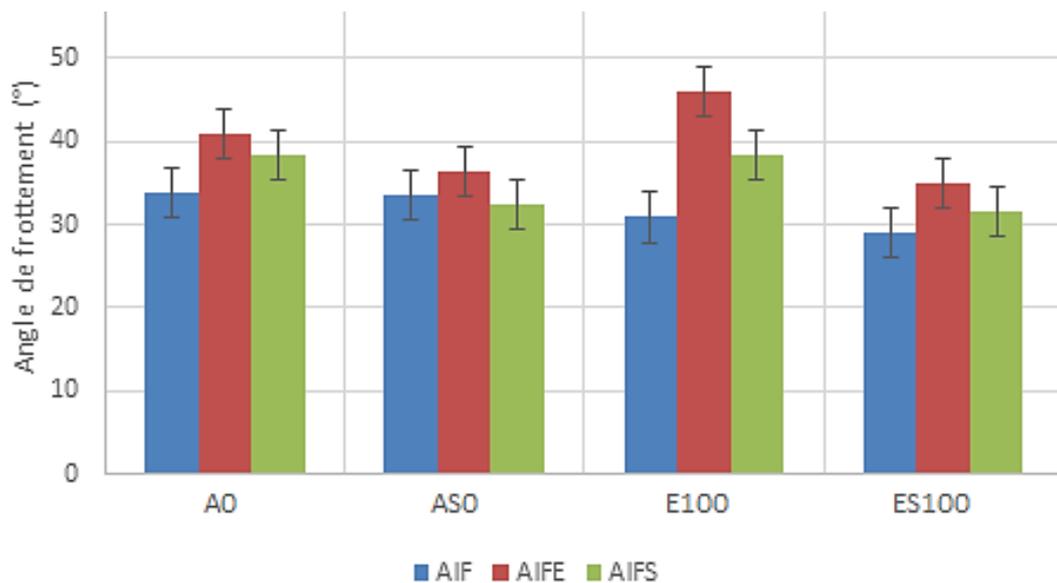


Figure 85 : Variation des angles de frottements pour des morphologies et des granulométries différentes (contrainte de préconsolidation de 15 kPa).

Pour une même distribution granulométrique, l'angle AIF ne dépend pas de la morphologie (Figure 85). En effet, les lieux d'écoulement pour une même distribution granulométrique sont parallèles (Figure 83) et AIF correspond au coefficient directeur du lieu d'écoulement d'après l'équation de Mohr-Coulomb (cf. Chapitre 1, § 1.2.5). L'évolution de la morphologie semble avoir un impact négligeable sur l'angle AIF.

L'angle de frottement interne effectif AIFE permet d'observer une évolution du frottement en modifiant la morphologie. Cet angle est dépendant des contraintes auxquelles la poudre est soumise. Pour une distribution granulométrique donnée, on constate que la diminution de la rugosité entraîne une diminution de l'angle AIFE. Ceci traduit le fait que la sphéroïdisation des particules diminue le frottement entre les particules. Le même phénomène est observé pour l'angle de frottement à l'état stationnaire AIFS.

4.2.2.2 Cohésion

La Figure 86 présente la cohésion de la poudre en fonction de la contrainte de consolidation majeure.

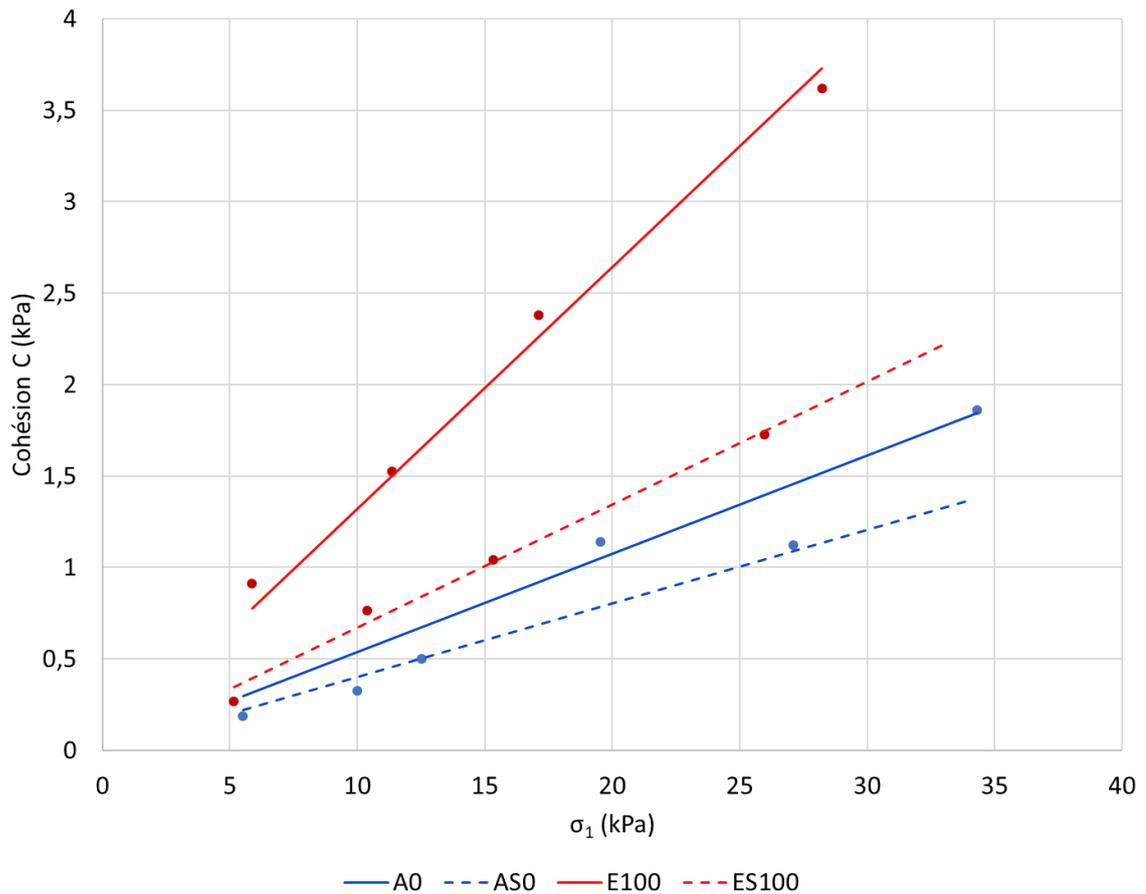


Figure 86 : Variation de la cohésion C en fonction de la contrainte de consolidation majeure σ_1 (grosses lisses AS0, grosses rugueuses AS, fines lisses ES100, fines rugueuses E100).

D'après la Figure 86, quelle que soit la morphologie de la poudre, sa cohésion augmente avec la contrainte de consolidation. Cette tendance est particulièrement marquée avec les particules fines et rugueuses pour lesquelles la cohésion augmente fortement avec la consolidation. Pour les fines lisses, l'augmentation est plus faible, avec une pente diminuée d'un facteur 2. Cette évolution de la pente est faible également au niveau des grosses particules sphéroïdisées et non-sphéroïdisées. En modifiant la rugosité de la poudre, on peut voir dans tous les cas une diminution de la cohésion de la poudre qui

permet d'envisager une meilleure mise en écoulement. On cherchera à démontrer ce phénomène sur la poudre broyée industrielle dans le dernier chapitre.

Tableau 9 : Résultats des tests de cisaillement.

Contrainte de préconsolidation	Poudre	Cohésion C (kPa) [± 10%]	σ_c (kPa) [± 10%]	σ_1 (kPa) [± 10%]	FI [± 0,5]	AIF (°) [± 3°]	AIFE (°) [± 3°]	AIFS (°) [± 3°]
3 kPa	A0	0,8	2,8	6,4	2,3	31	43	40
	AS0	0,2	0,7	5,5	7,5	35	40	35
	E100	0,9	3,0	5,9	1,9	28	45	38
	ES100	0,3	0,9	5,1	5,5	31	36	32
6 kPa	A0	0,5	1,9	12,5	6,5	35	39	37
	AS0	0,3	1,2	10,0	8,2	34	37	32
	E100	1,5	5,4	11,4	2,1	31	45	38
	ES100	0,8	2,5	10,4	4,1	28	35	31
9 kPa	A0	1,1	4,4	19,5	4,4	35	41	39
	AS0	0,2	0,6	15,1	23,7	32	33	30
	E100	2,4	8,4	17,1	2,0	31	46	38
	ES100	1,0	3,5	15,3	4,4	28	35	31
15 kPa	A0	1,9	7,1	34,3	4,8	35	40	39
	AS0	1,1	4,0	27,1	6,7	32	35	33
	E100	3,6	13,4	28,2	2,1	33	47	38
	ES100	1,7	5,9	26,0	4,4	29	35	32

4.2.2.3 Fonction d'écoulement

La Figure 87 trace la fonction d'écoulement pour les quatre poudres étudiées. Les poudres sphéroïdisées AS0 et ES100, ainsi que les grosses particules non sphéroïdisées présentent des fonctions d'écoulement peu différentes. Si on fixe une même granulométrie, la diminution de la rugosité permet d'améliorer la mise en écoulement de la poudre. Ce phénomène est nettement plus significatif pour les fines que pour les grosses particules.

De plus, pour un même état de préconsolidation du lit de poudre, la mise en écoulement est similaire pour les poudres sphéroïdisées de granulométries différentes.

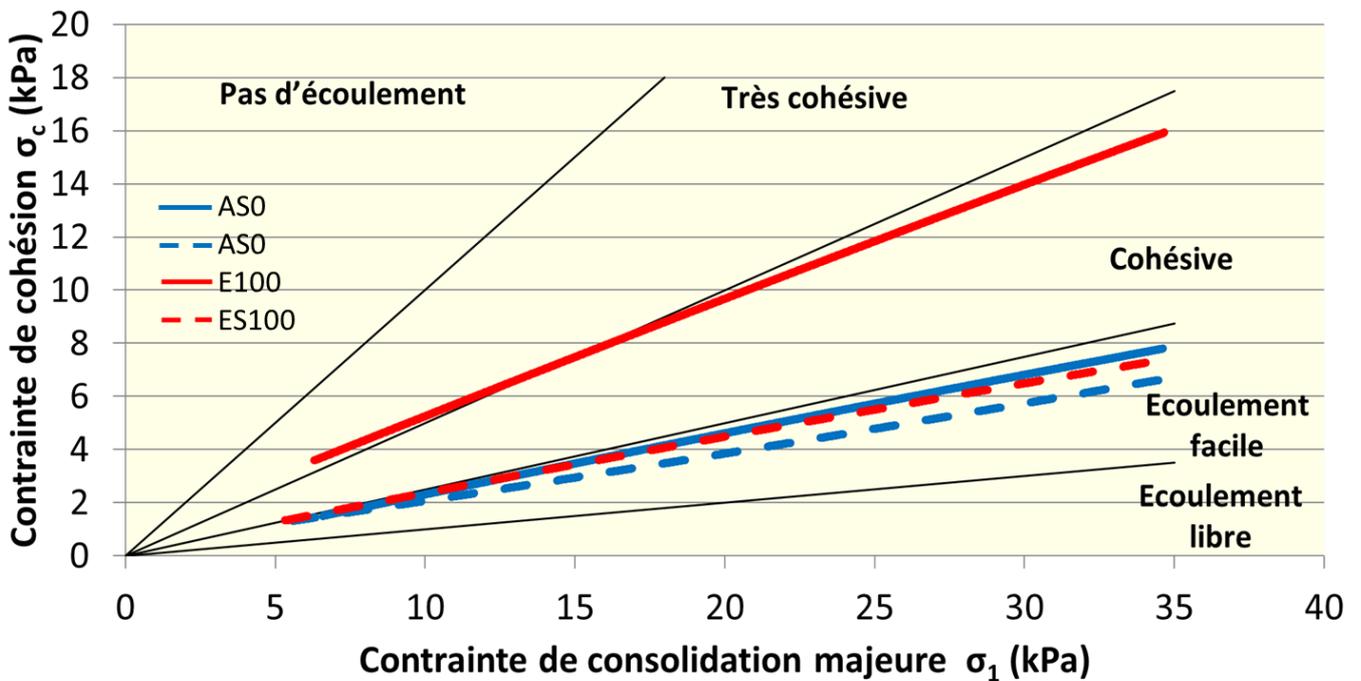


Figure 87 : Tracé de la fonction d'écoulement. (gros lisses AS0, gros rugueux AO, fines lisses ES100, fines rugueux E100).

4.2.2.4 Synthèse

Pour une même distribution granulométrique, la diminution de la rugosité entraîne une diminution de l'angle de friction interne effectif et de l'angle de friction à l'état stationnaire. En lissant la surface des agglomérats, le nombre de points de contact est plus faible entraînant une diminution des points de frottement entre les grains. De même pour une même granulométrie, la présence de rugosité augmente la cohésion. Cet effet est plus marqué pour les fines particules.

4.2.3 Mesures dynamiques

La mise en écoulement permet d'évaluer le comportement naissant de l'écoulement, mais également de comprendre l'écoulement de la poudre en régime dynamique.

4.2.3.1 Test de perméabilité

Le test de perméabilité est utile pour évaluer comment l'air piégé dans le moule de presse peut s'évacuer à travers la poudre. La Figure 88 présente la perte de charge mesurée pour chaque poudre, pour un flux d'air à la base du dispositif égal à 2 mm.s^{-1} . Les grosses particules A0 et AS0 présentent une perte de charge faible et équivalente : l'air passe facilement entre les granulés. La rugosité des grosses particules a bien une influence sur la perméabilité.

Pour les poudres constituées de fines non sphéroïdisées, la perte de charge est très importante. De plus, elle augmente significativement lorsqu'on passe de particules lisses (sphéroïdisées) à des particules

rugueuses. En diminuant considérablement le nombre de contacts entre les grains, la sphéroïdisation permet à l'air de circuler plus facilement et la surface de frottement air-solide est réduite. Par ailleurs, en déterminant l'écart moyen d'augmentation de la perméabilité pour chaque granulométrie, on remarque que :

- pour les grosses particules, après sphéroïdisation, l'augmentation est d'environ 40% ;
- pour les fines particules l'augmentation moyenne de la perméabilité est d'environ 70%.

L'opération de sphéroïdisation améliore donc la perméabilité du lit de poudre mais dans le cas présent, cet effet est particulièrement prononcé pour les fines particules.

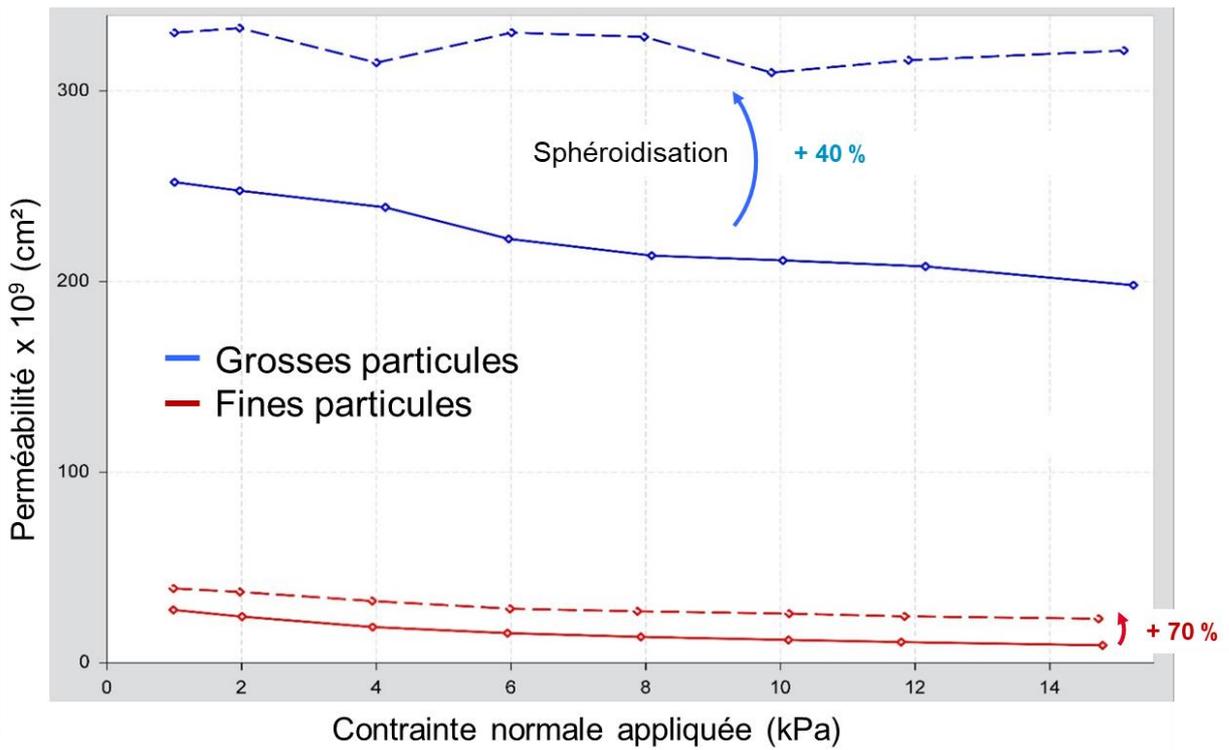
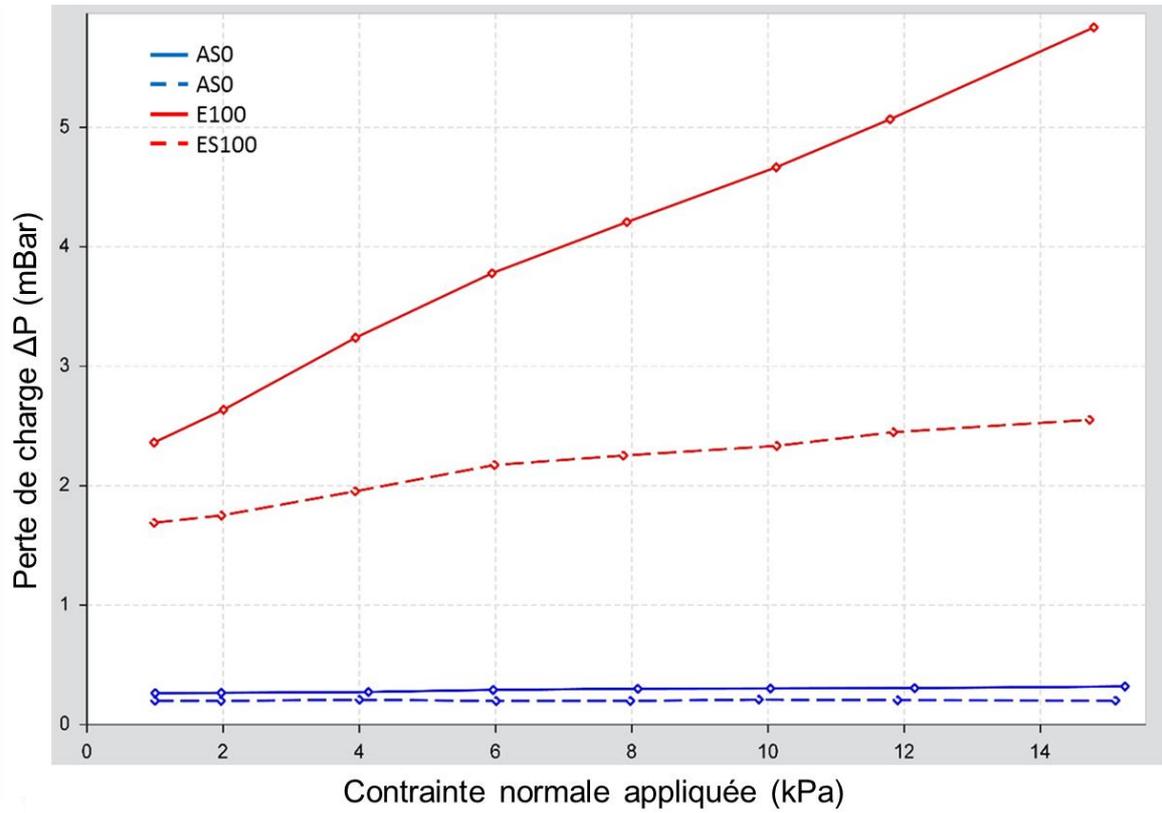


Figure 88 : Mesures de la perte de charge et de la perméabilité en fonction de la consolidation du lit de poudre.

D'autres tests dynamiques tel que le test VFR permettent d'avoir une idée du comportement de la poudre lors de son écoulement et viennent compléter la compréhension des résultats de perméabilité.

4.2.3.2 Mesures dynamiques : Variable Flow Rate VFR

La Figure 89 montre l'énergie nécessaire pour déplacer la poudre dans les conditions d'un test VFR, pour les différentes poudres A0, AS0, E100 et ES100. Pour les granulés sphéroïdisés, on observe une augmentation de l'énergie au cours des essais à 100 mm/s, à la différence des poudres non-sphéroïdisées pour lesquelles l'énergie reste constante. Ceci indique une mauvaise stabilité des poudres sphéroïdisées.

La courbe d'énergie des grosses particules sphéroïdisées croît et croise celle des grosses particules non sphéroïdisées au test 7 (correspondant au BFE). Pour les fines, ES100 présente une énergie BFE plus forte que les fines non sphéroïdisées E100 : ceci semblerait indiquer que la sphéroïdisation modifie l'écoulement mais compte-tenu des difficultés d'interprétations concernant l'énergie BFE, il reste difficile d'affirmer s'il s'agit d'une amélioration ou une dégradation de l'écoulement. Or, d'après les résultats de cisaillement et de compressibilité, la sphéroïdisation diminue la cohésion de la poudre.

Pour les poudres sphéroïdisées ne contenant pas de fines particules AS0, lors du test VFR, l'énergie en début de test est plus faible puis va augmenter jusqu'à se stabiliser avec la poudre non sphéroïdisée A0. A partir de ce constat, il est possible de supposer que concernant le test VFR, pour les grosses particules, plus l'énergie est faible moins la poudre est cohésive. Si on prend en compte l'énergie au test 1 (Tableau 10), on peut supposer que les poudres lisses ne sont pas encore dégradées. Les différences d'énergies sont dues à la rugosité, entraînant les phénomènes d'interlocking et de friction. Cette rugosité augmente la force nécessaire au déplacement de la poudre et contrarie donc l'écoulement.

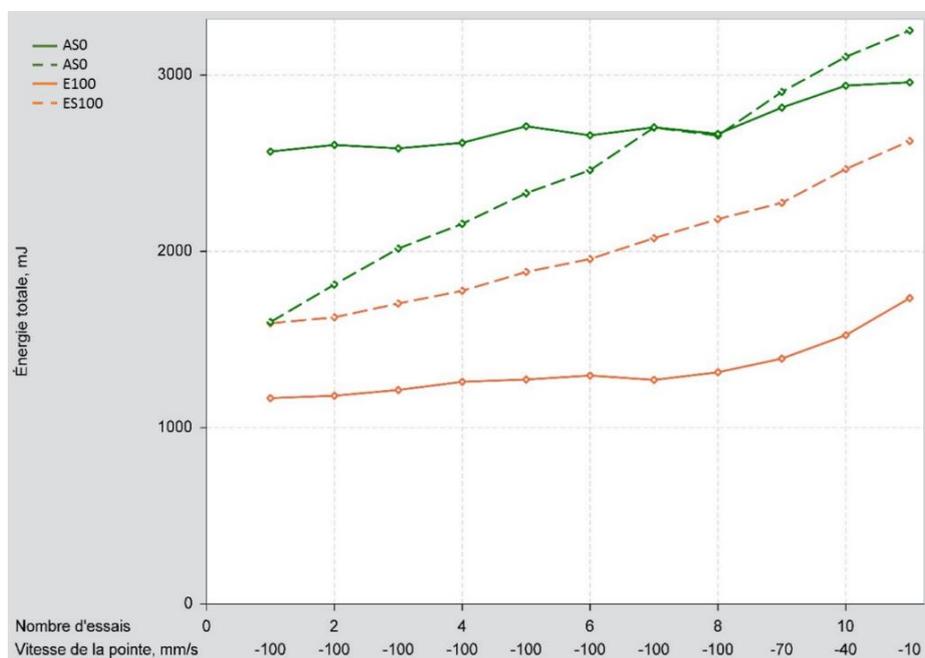


Figure 89 : Modification de la morphologie : test VFR.

Tableau 10 : Indices déterminés par VFR.

Poudre	NBFE (mJ.g ⁻¹) [+/- 3]	SI [+/- 0,1]	FRI [+/- 0,1]	SE (mJ.g ⁻¹) [+/- 2,0]	CBD (g.mL ⁻¹) [+/- 0,2]	Énergie test n°1 (mJ.g ⁻¹) [+/- 3]
A0	39	1,1	1,1	9,3	2,7	39
AS0	37	1,7	1,2	11,2	2,9	22
E100	24	1,1	1,3	7,9	2,1	24
ES100	40	1,3	1,2	12,6	2,1	30

La sphéroïdisation modifie peu la valeur du FRI, les granulés lisses étant autant sensibles à la vitesse de la pale que les granulés rugueux. Le problème de la sphéroïdisation est qu'elle entraîne une instabilité de la poudre. Comme on peut le voir sur la Figure 89, on a une évolution de l'énergie totale entre le 1^{er} et 8^{me} test pour les poudres sphéroïdisées. De plus, on constate que pour les grosses particules, à partir du test numéro 7, le BFE_{AS0} est équivalent au BFE_{A0} : les granulés lisses AS0 n'étant pas stables, ils vont évoluer sous l'effet de la pale jusqu'à atteindre un état qui semble se rapprocher de celui de la poudre non sphéroïdisée A0.

Dans le cas des fines et des grosses particules, une augmentation de l'énergie totale peut se traduire comme suit : la pale en traversant le lit de poudre peut notamment dégrader les particules sphéroïdisées et former des fines qui vont avoir tendance à s'agglomérer.

Pour mieux comprendre la nature de l'évolution de la poudre, une étude granulométrique a été réalisée avant et après VFR. La Figure 90 montre les distributions granulométriques mesurées par granulométrie laser en voie sèche pour les grosses particules sphéroïdisées (lisses), avant et après les tests VFR. On voit apparaître dans la distribution granulométrique une population de fines inférieures à 100 µm qui n'était pas présente avant VFR. On peut suspecter que ces fines particules ont été arrachées aux grosses particules : il s'agit vraisemblablement d'un phénomène d'attrition. Les granulés lisses sont ainsi dégradés jusqu'à ce qu'ils arrivent à un état proche de celui de la poudre rugueuse A0 (Figure 89).

Concernant les fines, la Figure 91 montre un déplacement de la distribution granulométrique vers la droite. On peut donc supposer que les passages de la pale vont induire une agglomération des particules entraînant la formation de gros agglomérats qui participent à l'amélioration de l'écoulement.

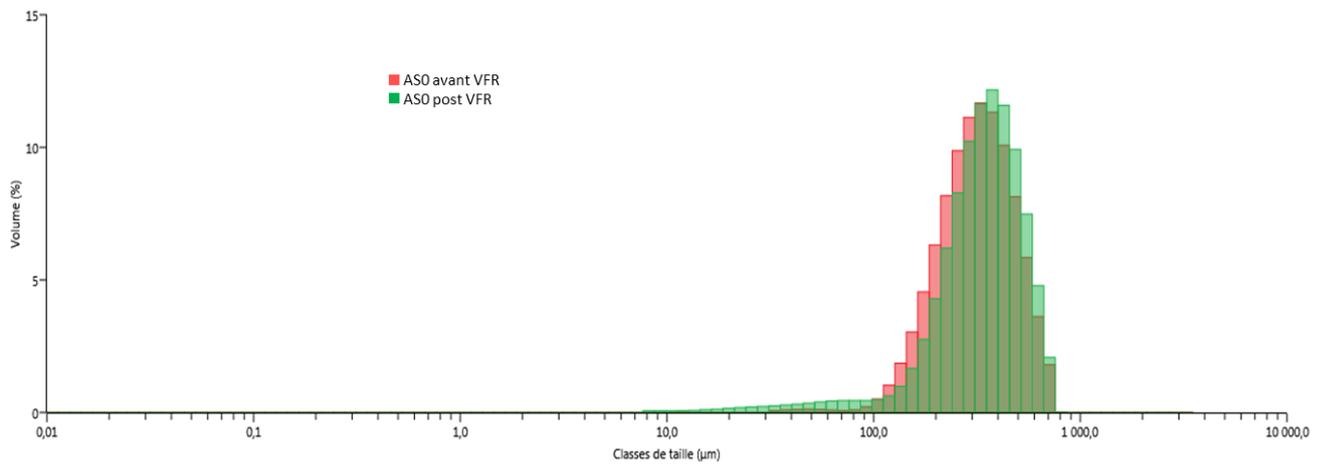


Figure 90 : Mesures granulométriques des granules lisses ($> 100 \mu\text{m}$) avant et après le test de VFR.

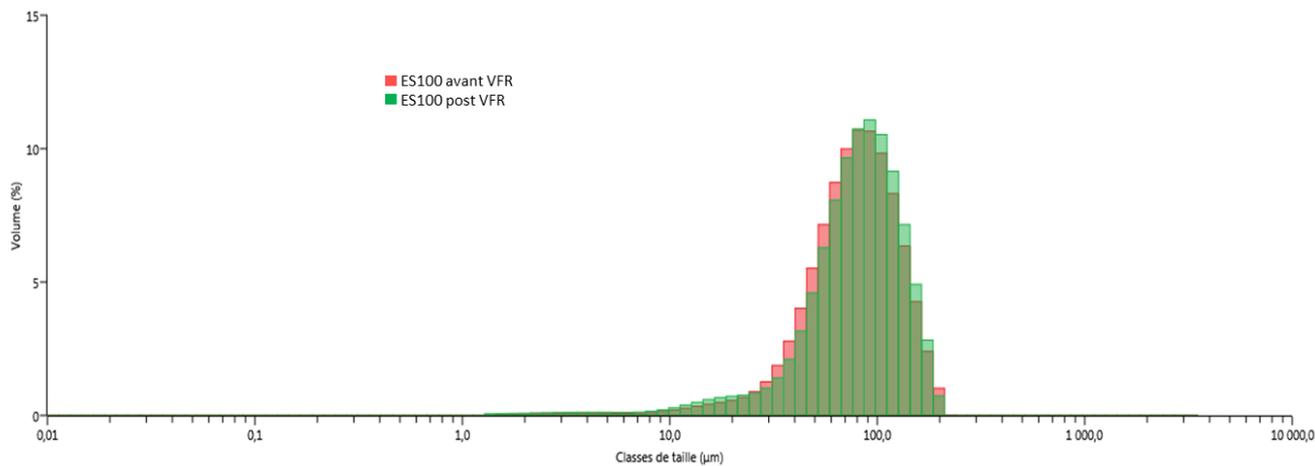


Figure 91 : Mesures granulométriques des granules lisses ($< 100 \mu\text{m}$) avant) et après le test de VFR.

Rappelons que le SE est représentatif de la cohésion de la poudre non confinée. Il permet ainsi d'évaluer le phénomène d'imbrication et de friction entre les particules. La mesure de l'énergie spécifique SE se déroule lors de la remontée de la pale. Pendant cette remontée, la pale permet un relâchement des contraintes au sein de la poudre et mesure l'énergie nécessaire à rompre les forces interparticulaires avec contacts. Plus le SE est grand, plus l'interlocking et la friction entre les particules sont grands ainsi la poudre est considérée cohésive.

La rugosité des particules est responsable en très grande partie des phénomènes d'interlocking et de friction interparticulaire. L'interlocking entre les particules est affaibli avec la sphéroïdisation et ainsi les particules sont plus facilement mises en mouvement par la pale. On peut voir que pour une même granulométrie, les particules lisses présentent un indice SE supérieur à celui des particules rugueuses. La poudre en se dégradant va entraîner des phénomènes d'interlocking et donc devenir plus cohésive.

La mesure du SE est donc difficilement interprétable.

En conclusion, il est très difficile de trancher sur le comportement de la poudre à partir des résultats du seul test VFR. Il faut prendre en compte tous les indices globalement et prendre garde à l'interprétation de chacun d'eux qui peuvent intervenir dans le cas des poudres cohésives (difficulté d'interprétation). Par ailleurs, ce type de test est destructif : la pale effectue un mouvement de cisaillement et de compression qui dégrade les particules friables.

4.3 ANALYSE MICROSCOPIQUE DU CISAILLEMENT

Dans notre cas, la poudre initiale est connue et ses caractéristiques définies. En modifiant l'état de surface des particules, on a pu voir que plus leur rugosité était élevée, plus la poudre était cohésive et donc la mise en écoulement et l'écoulement difficiles.

Dans cette partie, les forces d'interaction seront évaluées théoriquement. Comprendre les différents phénomènes se déroulant lors de la mise en écoulement et comment les poudres se comportent permettra d'interpréter les résultats expérimentaux.

4.3.1 Dilatation

Afin de déterminer et de comparer la dilatation au niveau de chacune des poudres (cf. Chapitre 1, § 1.2.5.3.3), on a considéré une contrainte de préconsolidation permettant de conserver la densité de la poudre constante. Dans ce chapitre, la contrainte de préconsolidation choisie est celle à 15 kPa puis on a comparé le comportement en cisaillement des différentes poudres à une contrainte normale de 9 kPa. La Figure 92 représente cette variation de la contrainte de cisaillement en fonction du temps au cours d'un test, pour les poudres de 0 et 100 %m rugueuses et lisses. La dilatation est présente pour les fines particules lisses et rugueuses. Pour les poudres contenant de grosses particules (A0 et AS0), cette dilatation est quasi négligeable. La granulométrie influence donc fortement la dilatation du lit de poudre alors que la morphologie semble avoir un impact plus faible.

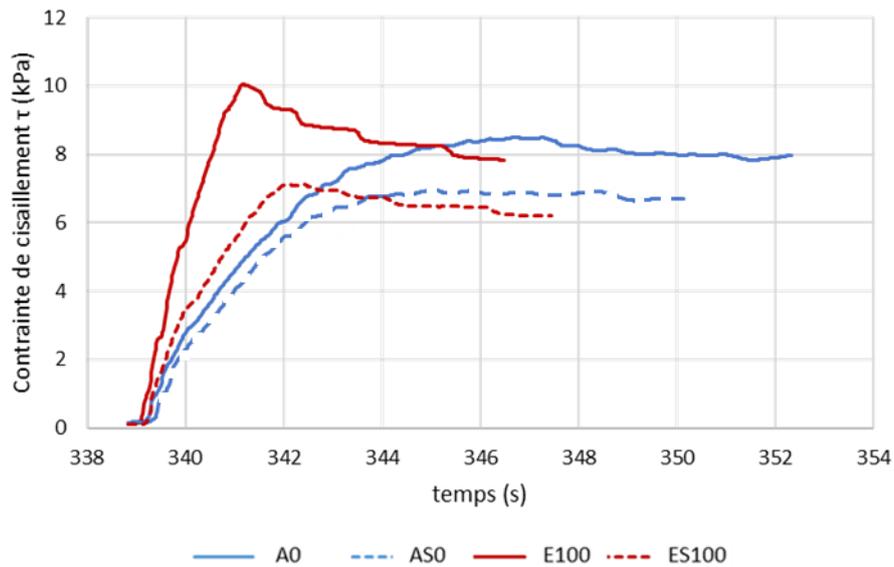


Figure 92 : Variation de la contrainte de cisaillement en fonction du déplacement de la cellule de cisaillement pour une contrainte de consolidation à 9 kPa. (Contrainte de préconsolidation de 15 kPa)

La Figure 93 montre l'évolution du rapport (τ/σ) en fonction du déplacement de la poudre pour une consolidation à 9 kPa pour une contrainte de préconsolidation à 15 kPa et donc un même état initial.

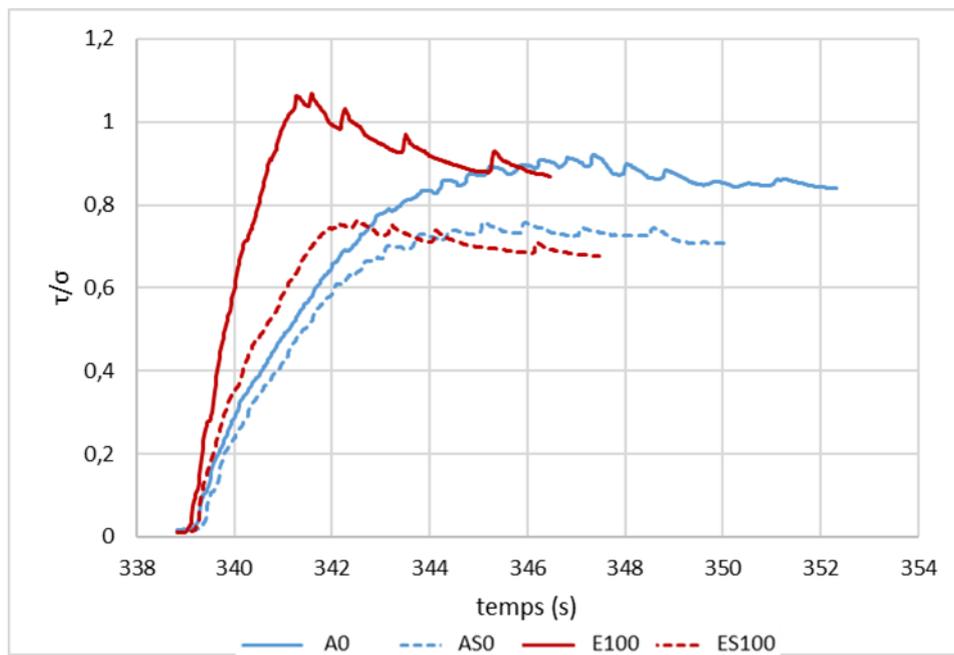


Figure 93 : Variation du rapport (τ/σ) en fonction du déplacement de la cellule de cisaillement pour une contrainte de consolidation à 9 kPa. (Contrainte de préconsolidation de 15 kPa)

Une comparaison des valeurs de (τ / σ) au pic (statique) et au plateau (dynamique) pour les différentes poudres est présentée en Figure 93 et Figure 94 pour une contrainte normale de 9 kPa (contrainte pris pour exemple). L'état de préconsolidation de la poudre est de 15 kPa. L'interlocking est évalué par la différence de ces deux valeurs extrêmes (pic et plateau), comme décrit au Chapitre 1, § 1.2.5.3.3. Il faut considérer l'interlocking comme les forces de contacts (frottement) entre les grains : la résistance au déplacement d'une particule par rapport à sa voisine.

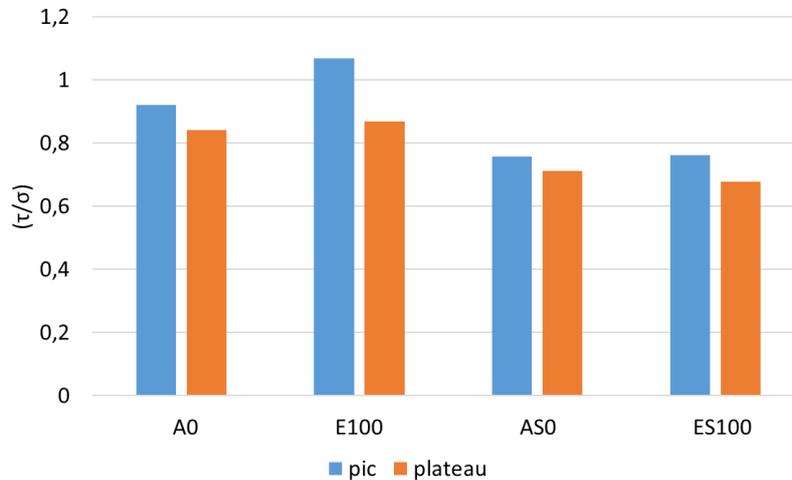


Figure 94 : Variation du rapport (τ/σ) au niveau du pic et au niveau du plateau pour chaque poudre pour une contrainte de consolidation à 9 kPa. (Contrainte de préconsolidation de 15 kPa)

Pour une même morphologie, pour les fines et les grosses le coefficient de friction au plateau (τ / σ) est similaire. La modification de la granulométrie n'influence donc pas le coefficient de friction dynamique à l'état stationnaire. Néanmoins, la diminution de la granulométrie augmente le coefficient de friction statique lors de la rupture.

Pour une même granulométrie, les coefficients de friction statique et dynamique sont d'autant plus grands que les particules sont rugueuses. Ceci peut s'expliquer par l'augmentation des points d'accroche entre les particules.

D'après les résultats obtenus, l'interlocking est élevé lorsque les particules sont fines et rugueuses. Mais cet interlocking peut être diminué fortement en réduisant la rugosité des fines. Pour des particules fines ou grosses, lorsque la rugosité est faible (c'est-à-dire lorsque les particules sont lissées), l'interlocking est similaire et de faible amplitude induisant un mouvement facile des particules entre elles.

4.3.2 Estimation théorique des forces d'interactions.

Les forces d'interactions entre deux particules sont de différents types : les forces capillaires, les forces électrostatiques et les forces de Van der Waals [Podcezk, 1998- Castellanos, 2005] (cf. Chapitre 1, § 1.2.5.3.1). Dans notre cas, l'humidité est négligeable donc les forces capillaires sont supposées nulles. La valeur de la tension de surface dispersive γ^d de l' UO₂ VS a été prise égale à environ 24,6 mJ.m²

(déterminée expérimentalement par tensiométrie, voir Annexe B pour plus de précisions) ce qui a permis d'estimer la constante d'Hamaker H_A à partir de l'Équation 13 (cf. Chapitre 1, § 1.1.4.2.3). La valeur calculée pour H_A est 5.10^{-20} J.

Dans le calcul théorique des forces d'interaction, l'Équation 12 sera prise en compte (cf. Chapitre 1, § 1.1.4.2.3). Pour les poudres rugueuses, on prendra le diamètre d'aspérités équivalent à environ $30 \mu\text{m}$ pour les poudres non sphéroïdisées et $10 \mu\text{m}$ pour les poudres sphéroïdisées. Ces ordres de grandeurs ont été évalués à l'aide de photos MEB présentés en Figure 8. La Figure 95 et le Tableau 11 présentent la force d'interaction théorique pour chaque poudre.

La Figure 95 montre la force interparticulaire en fonction du diamètre des particules pour les différents types de poudres étudiées. Le Tableau 11 présente le nombre de Bond pour ces différentes poudres. Le nombre de Bond définit le rapport entre les forces de cohésion et les forces gravitationnelles. Ce nombre apporte une information complémentaire, il permet de rendre compte de l'impact des forces d'interactions par rapport à la force gravitationnelle.

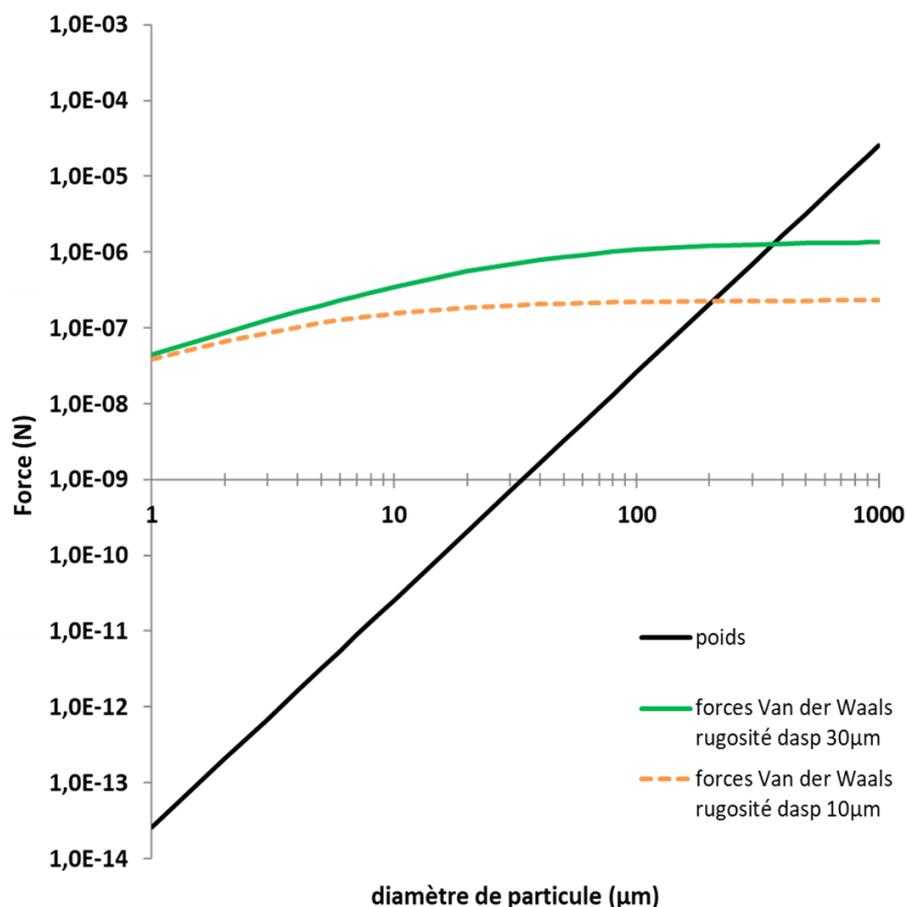


Figure 95 : Les forces d'interactions entre des particules d' UO_2 (distance interparticulaire de $0,3 \text{ nm}$) pour des rugosités différentes et en fonction de la taille des particules (comparées au poids).

Tableau 11 : Détermination des forces théoriques et nombre de Bond pour différentes tailles et morphologies de particules (avec le diamètre des particules $dp=2R$ et le diamètre des aspérités $d_{asp} = 2.r_{asp}$).

Poudre	dp (μm)	d_{asp} (μm)	$F_{\text{cohésion}}$ (N)	Poids (N)	Bond
A0	360	30	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-6}$	1
AS0	320	10	$2 \cdot 10^{-7}$	$8 \cdot 10^{-7}$	0,3
E100	70	30	$10 \cdot 10^{-7}$	$9 \cdot 10^{-9}$	110
ES100	80	10	$2 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-8}$	17

Les résultats présentés dans la Figure 95 et le Tableau 11 suivent la tendance d'écoulement qu'on a identifiée dans cette étude. Pour une même taille de particule, plus la rugosité est importante, plus la force de cohésion est grande et le nombre de Bond est élevé. Une rugosité plus importante entraîne ainsi une moins bonne coulabilité.

De plus on peut voir que pour une même rugosité et des tailles différentes, les forces de cohésion sont similaires mais le nombre de Bond est largement plus élevé pour les fines car les forces gravitationnelles sont beaucoup plus faibles. Ceci permet d'en déduire que dans notre cas, la granulométrie a une forte influence sur le nombre de Bond et donc sur la coulabilité de la poudre. La morphologie impacte également le nombre de Bond mais de manière plus modérée.

4.3.3 Estimation des forces d'interactions expérimentales.

Le comportement rhéologique des poudres au niveau microscopique n'est pas encore complètement exploité. Il est important de comprendre les différents effets de la force d'adhésion interparticulaire en termes de mécanique granulaire. Dans la présente étude, on tente d'analyser les propriétés rhéologiques des différentes poudres en fonction de leurs caractéristiques physiques utilisant des théories de la mécanique granulaire expliquant les effets de déformation des contacts élastiques-plastiques.

Le coefficient de consolidation de contact élastique–plastique (κ) est une caractéristique de déformation sans dimension qui mesure la rigidité de contact entre les particules (Figure 96) (cf. Chapitre 1 1.2.5.3). Ainsi, on s'attend à ce que la valeur κ augmente avec l'augmentation des forces adhésives interparticulaires. Par conséquent, les valeurs de ces coefficients évaluées sur la base d'essais de cisaillement des poudres peuvent être utilisées pour comprendre les difficultés d'écoulement des poudres. L'augmentation des forces adhésives entraîne à son tour une augmentation des forces de cisaillement nécessaires pour obtenir un écoulement de la poudre conduisant à un déplacement du lieu de rupture vers les plus hautes contraintes.

Rappelons que la force de cohésion F_{H0} d'une poudre sous contrainte nulle (mais préconsolidé) sans aucune déformation entre les particules peut être obtenue expérimentalement à partir de la traction R_{t0} en prenant en compte la porosité initiale du lit de poudre ε_0 dans un état non-consolidé (cf. Chapitre 1, § 1.2.5.3.2).

Pour une poudre donnée, on a pu voir que tous les lieux de rupture à des contraintes de préconsolidation

données sont approximativement parallèles. Étant considéré constant pour une poudre donnée, chaque angle sera déterminé en réalisant une moyenne des valeurs déterminées expérimentalement pour tous les niveaux de consolidation (les angles de frottement interne (AIF) et stationnaires (AIFS) sont déterminés expérimentalement à l'aide du FT4). En utilisant l'Équation 33, le coefficient de déformation κ peut ainsi être déterminé pour chaque poudre. Les résultats sont regroupés dans le Tableau 12.

Tableau 12 : Détermination du facteur de déformation élastique-plastique κ .

Poudre	AIF (°)	AIFS (°)	κ
A0	34	39	0,19
AS0	32	33	0,02
E100	31	38	0,31
ES100	29	31	0,08

Ces valeurs montrent que, pour les poudres de même morphologie, le coefficient de déformation de contact élastique-plastique varie en fonction de la granulométrie. κ est plus élevé pour des particules fines, ce qui est conforme avec les résultats de Tomas, qui observe le même comportement avec les poudres de calcaire [Tomas, 2009]. De plus, dans notre cas, on observe que pour une même granulométrie, κ varie aussi fortement en fonction de la morphologie. Lors de la sphéroïdisation, on réduit la rugosité à la surface des particules, ce qui diminue fortement le coefficient de déformation. Si on suppose que nos granules ne sont pas déformables, le coefficient est significativement dépendant de la morphologie de surface des particules. On peut schématiser le coefficient de déformation comme le phénomène d'interlocking au niveau microscopique, c'est-à-dire au niveau de la surface de contact des particules (Figure 96).

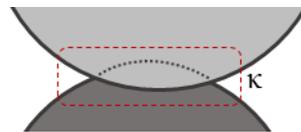


Figure 96 : Schématisation de la déformation entre deux particules.

Une fois l'angle de friction stationnaire AIFS déterminé, par construction géométrique tel que réalisée dans la Figure 25, on peut en déduire la résistance à la traction Rt_0 . Puis, d'après l'Équation 27, on calcule la force de cohésion FH_0 expérimentale conduisant à la détermination du nombre de Bond expérimental. Les résultats sont présentés dans le Tableau 13.

Tableau 13 : Détermination expérimentale de la résistance à la traction Rt_0 , de la force de cohésion FH_0 et du nombre de Bond expérimental.

Poudre	Porosité	N_p	Dv_{50} (μm)	Rt_0 (Pa)	FH_0 (N)	Poids (N)	$Bond_{exp}$
A0	0,4	8	360	300	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	20
AS0	0,4	8	320	200	$1 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-7}$	16
E100	0,6	2	70	90	$2 \cdot 10^{-6}$	$9 \cdot 10^{-9}$	190
ES100	0,6	2	80	40	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-8}$	80

Si on compare les forces de cohésion théoriques aux forces de cohésion expérimentales, on peut voir que ces dernières sont plus élevées. Ceci peut s'expliquer par le fait que nous avons une distribution granulométrique et non pas une seule taille de particules. De même, au niveau de la morphologie des granulés, des petites imbrications et frottements entre les particules peuvent être présents mais ne sont pas pris en compte dans le modèle théorique. Cependant, on peut voir que les tendances sont cohérentes avec les résultats obtenus expérimentalement : plus la rugosité est faible, plus les forces d'interaction attractives mais aussi les forces de friction diminuent. Rappelons que pour une même granulométrie, les forces gravitationnelles sont constantes, une diminution du nombre de Bond s'explique donc par une diminution des forces de cohésion du fait de la morphologie. De plus, le nombre de Bond permet de comparer des poudres de tailles différentes. Le Tableau 13 montre que le nombre de Bond diminue avec l'augmentation de la taille et la diminution de rugosité, ce qui induit une amélioration du comportement rhéologique.

4.3.4 Synthèse

Ce chapitre permet l'utilisation de la théorie de la plasticité pour expliquer la consolidation, le lieu d'écoulement caractéristique de la rupture et le lieu d'écoulement stationnaire des poudres. Les paramètres d'écoulement de la poudre sont analysés complètement sur la base des paramètres caractéristiques du matériau, à savoir l'angle de frottement interne (AIF), l'angle de friction stationnaire (AIFS) et la résistance à la traction d'une poudre non consolidée (R_{t0}). La capacité d'une particule à se déformer en surface joue un rôle important dans l'écoulement des poudres et doit être prise en compte pour comprendre le lien entre interactions microscopiques et écoulement.

4.4 DISCUSSION

La rugosité de surface a été déterminée qualitativement pour différentes poudres. Les poudres non sphéroïdisées ont une surface dite rugueuse alors que les poudres sphéroïdisées sont considérées relativement lisses.

Dans notre étude, la modification de la morphologie a une forte influence sur la mise en écoulement et l'écoulement de la poudre. Les résultats obtenus montrent que la forme et la taille des particules affectent significativement la coulabilité. Ceci rejoint les résultats de Fu [Fu, 2012], Gamble [Gamble, 2012], Jan [Jan, 2016].

D'après nos résultats, les particules sphéroïdisées ont une mise en écoulement plus facile. Ceci est observable avec la diminution de l'angle de frottement interne effectif grâce à la sphéroïdisation. Cette amélioration est d'autant plus marquée que les particules sont fines. En lissant la surface des granulés on a diminué les points de contact et donc les points de frottement entre les grains (Figure 97).

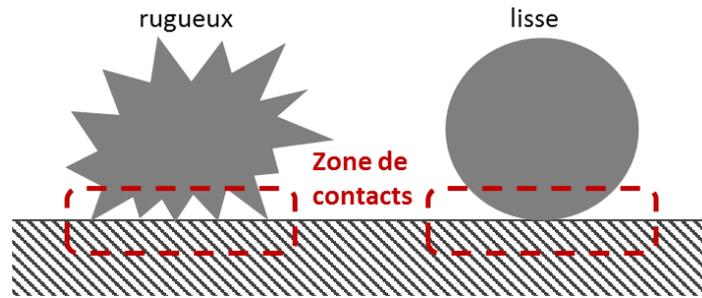


Figure 97 : Schéma de principe illustrant les points de contacts en fonction de la rugosité.

Les tests de cisaillements ont montré que les forces de cohésion dépendent non seulement de la granulométrie, mais également de la rugosité des particules. Pour des poudres de distributions granulométriques similaires, les forces de cohésion mesurées sont ainsi plus grandes pour une forte rugosité. Ceci rejoint les résultats d'Ambrose [Ambrose, 2016] qui avait montré l'influence de la rugosité de surface sur la cohésion et la perméabilité.

Lorsque le matériau granulaire est cisailé, la poudre peut se dilater ou se compacter [Reynolds, 1885]. Plusieurs facteurs influent sur le comportement volumique de la zone d'interface pendant le cisaillement. Dans notre cas, la granulométrie et la rugosité jouent sur cette dilatation. Celle-ci permet de rendre compte du phénomène d'interlocking qui semble augmenter fortement avec la rugosité des particules.

Le coefficient de friction interparticulaire peut être déterminé à partir des mesures de cisaillement. Pour une granulométrie donnée, le coefficient de friction augmente avec la rugosité, ce qui rejoint plusieurs travaux de la littérature [Yoshimi, 1981].

Un récapitulatif des résultats obtenus est présenté dans la Figure 98. La perméabilité est significativement améliorée par la sphéroïdisation surtout pour les poudres ne contenant pas de fines. Une perméabilité plus élevée peut entraîner une plus grande stabilité de l'écoulement et avoir un effet bénéfique sur la propriété de remplissage des poudres (remplissage plus homogène). De plus, on peut voir que la sphéroïdisation améliore la mise en écoulement en diminuant la cohésion de la poudre pour toutes les tailles de particules.

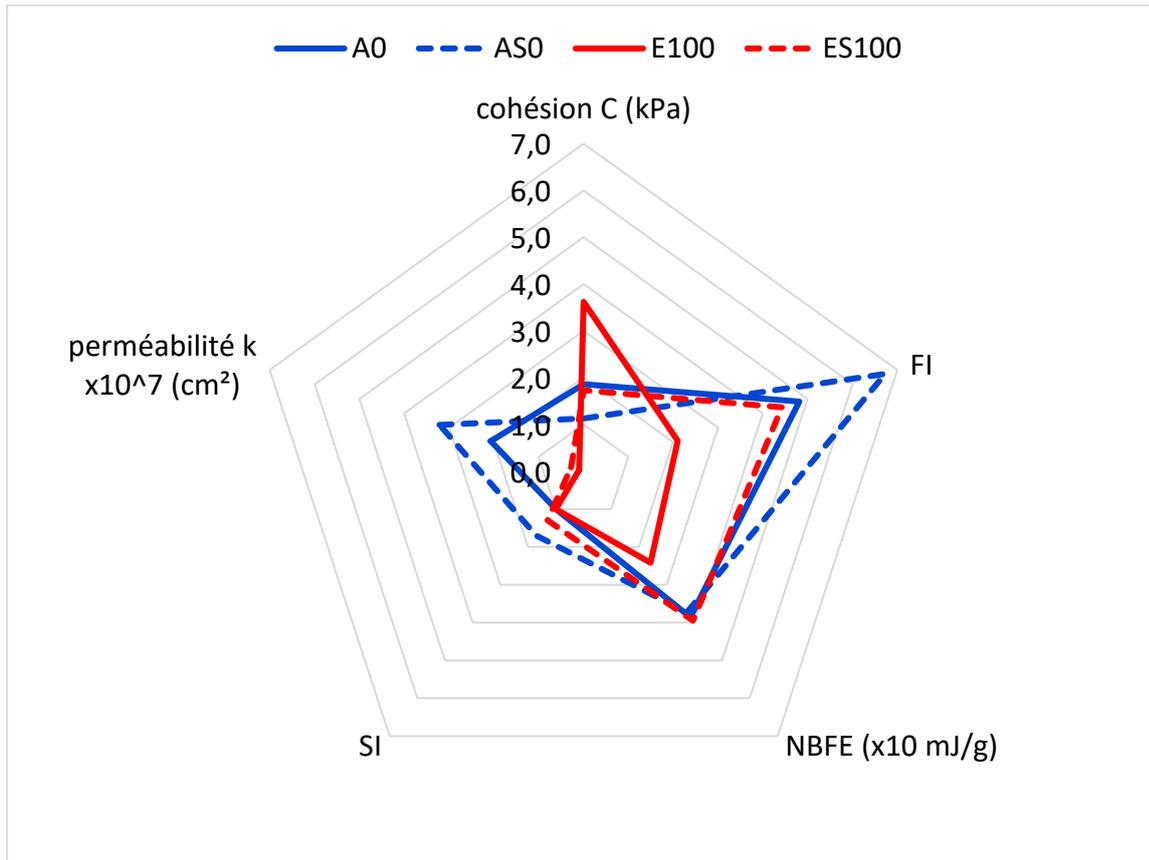


Figure 98 : Récapitulatif des résultats rhéologiques des poudres A0, AS0, E100 et ES100.

Pour une même granulométrie, la rugosité influence fortement la mise en écoulement et l'écoulement. Au niveau du procédé, ceci peut avoir un impact à plusieurs stades. Lors de l'ouverture de la trémie, la poudre sphéroïdisée présente une mise en écoulement facilitée pour toutes les tailles de particules. Puis lors de l'écoulement, la poudre sphéroïdisée présente une faible cohésion et permet à l'air de s'échapper plus facilement que dans le cas des poudres non-sphéroïdisées. Bien que la sphéroïdisation des particules ne soit pas totalement conservée lors du transfert de la poudre ou autre procédé mettant en mouvement la poudre, la sphéroïdisation reste un moyen simple permettant d'améliorer le remplissage des moules de presse.

Ainsi, l'effet des phénomènes microscopiques se produisant à la surface des particules tend directement à régir les aspects macroscopiques du comportement rhéologiques de la poudre. Dans le Chapitre 5, une application de la sphéroïdisation sur la poudre de référence du procédé sera réalisée afin de valider l'impact favorable de cette opération dans le procédé ainsi que l'étude des effets de mélanges avec des particules sphéroïdisées.

CHAPITRE V : APPLICATION AU PROCÉDE

5.1	Choix du procédé de modification de la poudre	124
5.1.1	La poudre de référence du procédé : la poudre broyée.....	125
5.1.2	Sphéroïdisation de la poudre broyée.....	125
5.2	Calcul de Janssen	127
5.3	Résultats rhéologiques	129
5.3.1	Test de suivi du comportement rhéologique.....	130
5.3.2	Passage de la trémie au moule de presse	130
5.3.3	Écoulement de la poudre dans le moule de presse.....	135
5.4	Synthèse.....	137

Chapitre V : Application au procédé

Ce chapitre est dédié à l'étude de la poudre de référence du procédé qui correspond au mélange broyé d'UO₂. Cette poudre correspond à celle étudiée précédemment après granulation. L'étape intermédiaire appropriée pour modifier ce dernier est la sphéroïdisation. Ce mélange broyé sphéroïdisé sera étudié afin de valider le choix de la sphéroïdisation comme étape intermédiaire pour l'amélioration de la mise en écoulement et de l'écoulement de la poudre lors du remplissage des moules de presse.

5.1 CHOIX DU PROCEDE DE MODIFICATION DE LA POUDRE

Dans les chapitres précédents, on a pu voir que la modification de la granulométrie et de la morphologie avait un impact sur la mise en écoulement et l'écoulement de la poudre d'UO₂. La modification de la granulométrie consistait à varier la proportion de fines dans un mélange de particules de même nature. Rappelons que les fines sont définies comme les particules dont le diamètre est inférieur à 100 µm. Ces fines dégradent les propriétés d'écoulement, en augmentant notamment la cohésion de la poudre. La modification de la morphologie se fait par le procédé de sphéroïdisation. Cette opération consiste à modifier la surface de la particule en contrôlant le degré de rugosité, tout en gardant la forme d'origine de la particule. La sphéroïdisation réduit fortement les forces frictionnelles, conduisant à la diminution de la cohésion de la poudre.

Les chapitres 3 et 4 ont donc permis de mettre en évidence deux procédés de modification de la poudre d'UO₂ pour en améliorer la mise en écoulement et l'écoulement : le procédé de tamisage et le procédé de sphéroïdisation. Le choix de l'étape intermédiaire (Figure 2) est à effectuer en fonction des avantages et inconvénients de chaque opération sur le procédé global. Rappelons que l'étape intermédiaire, destinée à améliorer le comportement rhéologique au sein du procédé, doit modifier les caractéristiques physiques intrinsèques de la poudre tout en restant simple et radiologiquement peu pénalisante.

L'opération de tamisage entraîne la séparation d'une classe granulométrique (les fines). Cette quantité de poudre ne pourra pas être introduite dans le procédé (ou partiellement introduite car un seuil de 10 %m est tolérable) au risque d'avoir une poudre cohésive.

La sphéroïdisation, même si elle est moins favorable que le tamisage au niveau de l'écoulement, permet d'améliorer les propriétés rhéologiques de la poudre, quelle que soit la distribution granulométrique de celle-ci. Dans la globalité du procédé, elle représente un meilleur compromis entre la mise en écoulement et l'écoulement, tout en conservant la quantité de matière initiale (contenant une forte teneur en fines 40 %m). Son positionnement dans le procédé de fabrication doit être optimal en raison de la fragilité des particules sphéroïdisées lors de leur manipulation. De plus la sphéroïdisation joue aussi sur la granulométrie de la poudre de départ : elle permet aussi de réduire la proportion de fines par rapport à la poudre de départ.

5.1.1 La poudre de référence du procédé : la poudre broyée

La poudre de référence du procédé est un mélange cobroyé d'UO₂ et de PuO₂. Ce mélange présente une morphologie finale différente de celles des poudres initiales d'UO₂ et de PuO₂. Au sein du laboratoire UO₂ (ICPE), la poudre de PuO₂ ne peut être manipulée car fortement radioactive. Pour se rapprocher de la poudre industrielle, un mélange broyé a été réalisé pendant 2 heures d'UO₂ VS avec 20 %m de chamotte (pastilles broyées). Cette Poudre Broyée sera désignée par PB dans la suite de l'étude.

5.1.2 Sphéroïdisation de la poudre broyée.

La poudre broyée a été observée au granulomètre voie sèche. La distribution granulométrique de la poudre est présentée sur la Figure 99 où une distribution étendue peut être observée. La poudre est bien composée d'un mélange de différentes classes granulométriques (fines et grosses particules). Trois échantillons de 200 g de poudre broyée ont été tamisés par colonne vibrante pour séparer les particules inférieures à 100 µm, à chaque fois environ 40 %m de fines est obtenue. La mise en écoulement et l'écoulement de la poudre peuvent ainsi être prédits. La rugosité étant élevée ainsi que la quantité de fines élevée, la poudre devrait se comporter comme les granulés contenant plus de 30% de fines du Chapitre 3.

Des observations MEB présentées en Figure 100 ont aussi permis de mettre en avant la rugosité élevée de la poudre broyée. On a vu dans le Chapitre 4 que la rugosité influence fortement la mise en écoulement et l'écoulement. La poudre broyée devrait donc présenter une mise en écoulement et un écoulement difficile. La sphéroïdisation de la poudre broyée devrait donc améliorer la mise en écoulement ainsi que l'écoulement de la poudre, quelle que soit la distribution granulométrique.

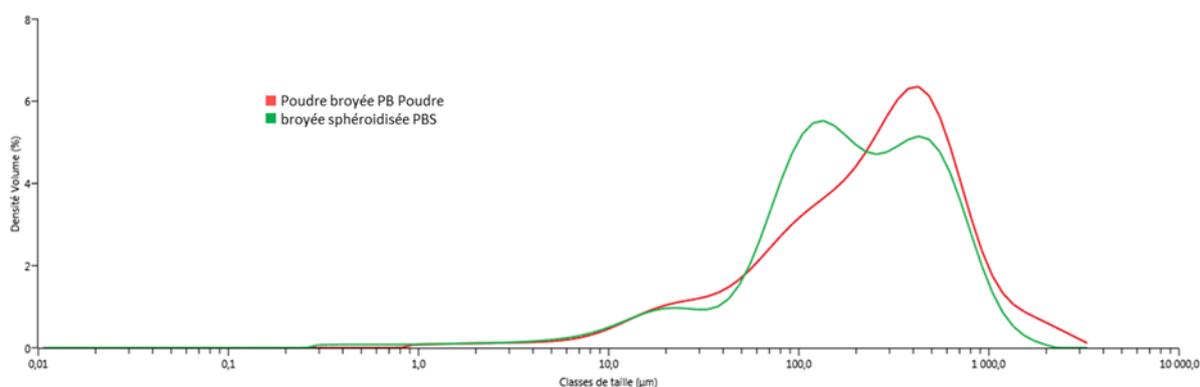


Figure 99 : Distribution granulométrique de la poudre broyée avant et après sphéroïdisation

La poudre broyée est placée au sein du Turbula à une vitesse de 96 tr.min⁻¹ pendant 20 min. On peut voir que la surface des granulés a été lissée. On observe bien une diminution de la rugosité au niveau des granulés (Figure 100). La Figure 99 montre que la sphéroïdisation a produit un décalage vers les fines de la distribution granulométrique, au profit d'une diminution de la proportion de grosses particules : ceci semble indiquer une abrasion et aussi une réagglomération.

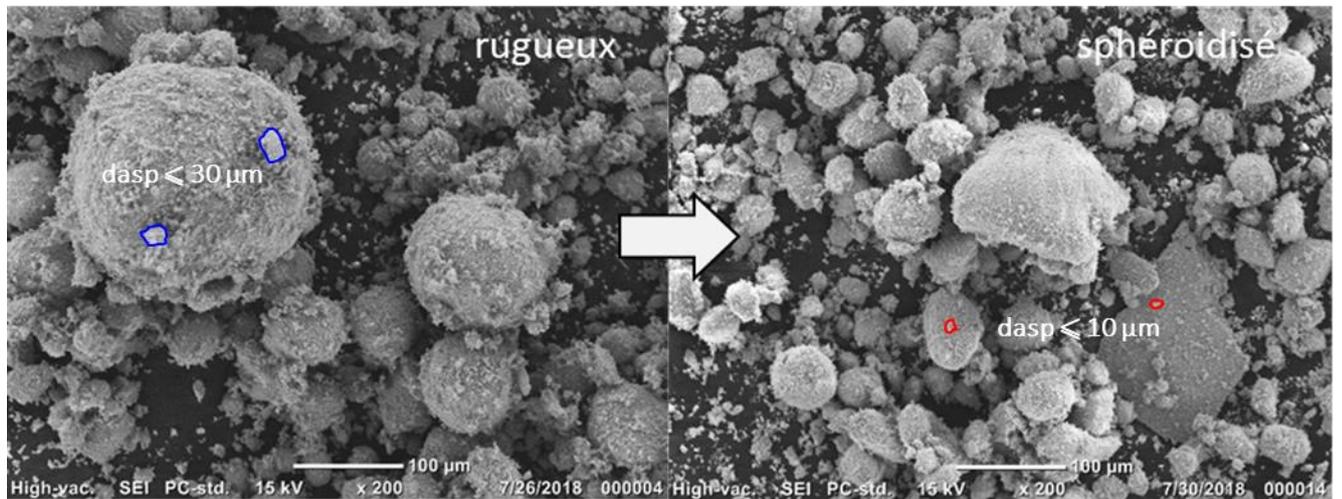


Figure 100 : Image MEB : morphologie des granulés avant et après sphéroïdisation.

L'ordre de grandeur de la rugosité des grains a été évaluée à l'aide des images MEB présentées en Figure 100. Si on considère que les aspérités à la surface des granulés sont similaires à des demi-sphères, on estime dans ce cas que pour les poudres rugueuses le diamètre de l'aspérité est de l'ordre de 30 μm . Pour les particules lisses, ce diamètre est équivalent à 10 μm .

La densité des agglomérats a été déterminée par porosimétrie mercure. Cette méthode consiste à faire pénétrer un liquide non-mouillant, dans ce cas du mercure, dans une petite quantité de poudre tout en augmentant la pression. On mesure ainsi le volume de mercure introduit en fonction de la pression. En début de test, le mercure va combler facilement les pores les plus grands puis, à mesure que la pression augmente, il va s'introduire dans les pores de diamètres de plus en plus petits. Il est ainsi possible de corréler pression appliquée et diamètre de pore équivalent. Ces mesures ont été réalisées pour les poudres constituées de grosses particules ($> 100 \mu\text{m}$) et de fines ($< 100 \mu\text{m}$) avec et sans sphéroïdisation (A0, AS0, E100 et ES100) ainsi que pour le mélange broyé (PB). L'allure de la courbe obtenue est similaire pour toutes nos poudres. On constate la présence de deux paliers : le premier correspond au volume d'intrusion entre les agglomérats (volume inter-agglomérats V_{inter}) et la deuxième vague est le volume d'intrusion dans les agglomérats (volume intra-agglomérats V_{intra}) (Figure 101).

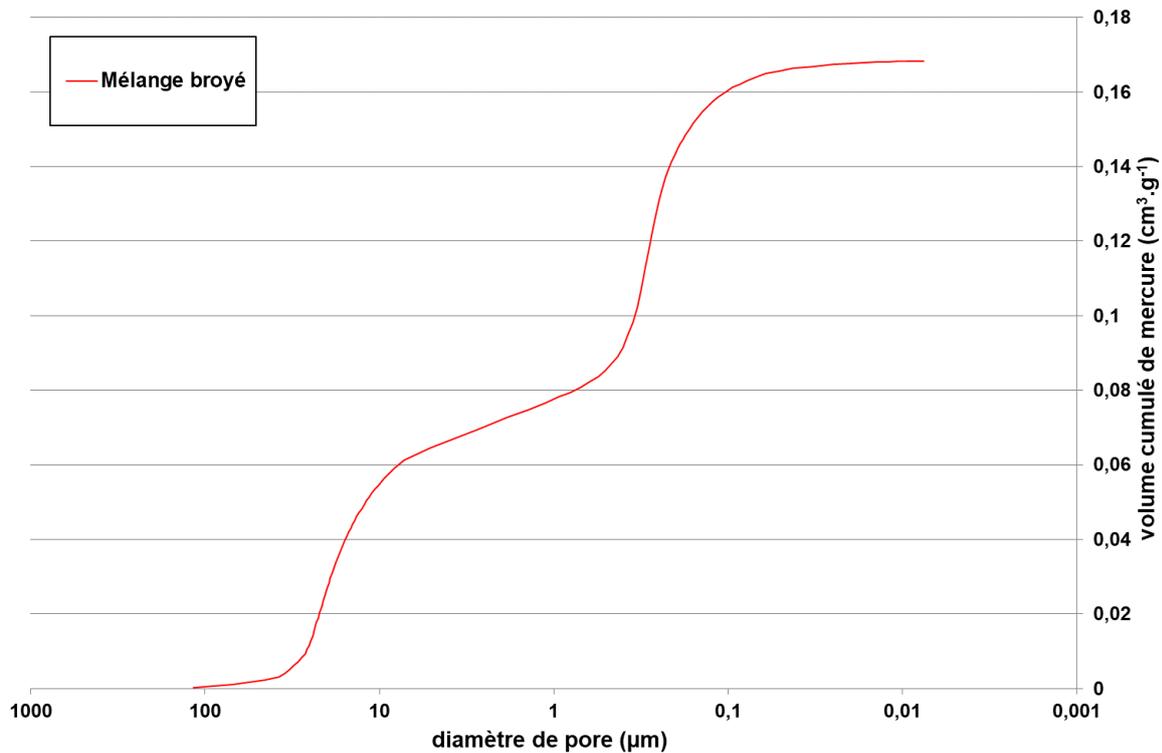


Figure 101 : Mesures de porosimétrie mercure pour le mélange broyé.

On peut ainsi déterminer la densité des agglomérats :

$$\text{densité agglomérats} = \frac{1}{\frac{1}{10,96} + V_{\text{intra}}} \quad \text{Équation 45}$$

Où 10,96 représente la densité théorique de l'UO₂ et V_{intra} est exprimé en cm³.g⁻¹ d'UO₂.

Les agglomérats de la poudre broyée ont une densité d'environ 5, ce qui correspond aux granulés fabriqués pour les études granulométriques et morphologiques précédentes.

5.2 CALCUL DE JANSSEN

Dans le cas du procédé industriel, la contrainte appliquée sur la poudre au sein de celui-ci doit correspondre à celle utilisée lors de la caractérisation des propriétés rhéologiques. Afin de confirmer que la gamme de contraintes définies lors de nos caractérisations englobe la contrainte au sein du procédé industriel, la détermination de cette dernière sera réalisée avec le modèle de Janssen.

Janssen [Janssen, 1895] introduit un modèle permettant de calculer la contrainte qu'exerce un milieu granulaire dans un silo. Ce modèle prend en compte la masse volumique du lit de poudre et ainsi les caractéristiques et l'empilement des grains.

Lorsque le milieu granulaire glisse au niveau des parois, la contrainte de cisaillement τ peut être écrite suivant l'expression :

$$\tau = \mu_w \cdot \sigma_{xx} \quad \text{Équation 46}$$

Avec μ_w le coefficient de friction paroi-particules et σ_{xx} la contrainte horizontale.

La contrainte horizontale et la contrainte normale sont considérées proportionnelles, avec un facteur de proportionnalité constant K_j . La relation de proportionnalité est la suivante :

$$\sigma_{xx} = K_j \sigma_{zz} \quad \text{Équation 47}$$

Pour un milieu statique, on peut supposer $K_j = 0,5$ pour une pression isotrope [Schulze, 2011]. On considère un cylindre de rayon R_c et de hauteur H contenant la poudre (Figure 102).

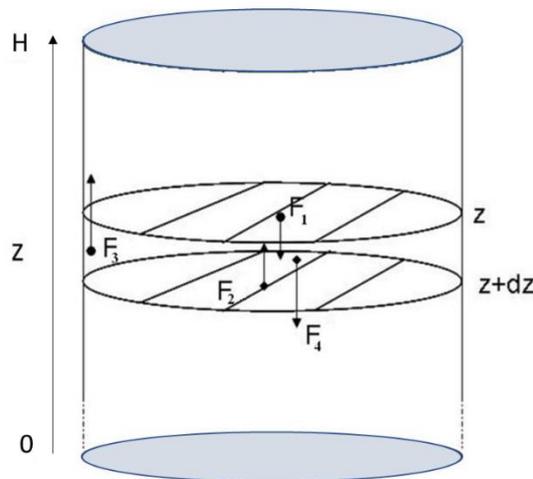


Figure 102: Les forces s'exerçant sur la couche cylindrique de hauteur dz.

Au niveau du volume de hauteur dz, les différentes forces présentes sont :

- Le poids

$$P = -\rho g \pi R_c^2 dz \quad \text{Équation 48}$$

- La force de frottement

$$F_{\text{frottement}} = K_j \mu_w \sigma_{zz} R_c dz \quad \text{Équation 49}$$

- Les forces sur les sections inférieure et supérieure :

$$F_{zz}(z) = \sigma_{zz}(z) \pi R_c^2 \quad \text{Équation 50}$$

En établissant l'équation d'équilibre des forces au niveau de la couche de hauteur dz (dans le repère, le fond du cylindre correspond à $z = 0$), on obtient l'expression :

$$\frac{\partial \sigma_{zz}}{\partial z} - \frac{2 K_j \mu_w}{Rc} \sigma_{zz} = -\rho g \quad \text{Équation 51}$$

À partir des conditions aux limites c'est-à-dire $\sigma_{zz}(z=H) = 0$, on obtient par intégration :

$$\sigma_{zz} = \rho g \lambda \left(1 - \exp\left(-\frac{z}{\lambda}\right) \right) \quad \text{Équation 52}$$

Avec la longueur caractéristique $\lambda = \frac{Dc}{4 \mu_w K_j}$ et Dc le diamètre du cylindre.

Dans le cas présent, on considère un silo cylindrique à fond plat de diamètre Dc = 30 cm (dans le cas du procédé industriel). Les résultats du calcul de la contrainte au sein du silo sont présentés sur la Figure 103. Pour l'application numérique, des valeurs typiques ont été utilisées : $\mu_w = 0,5$ et $K_j = 0,5$. La contrainte devient constante à partir d'une profondeur d'1 m, elle est alors d'environ **9 kPa**.

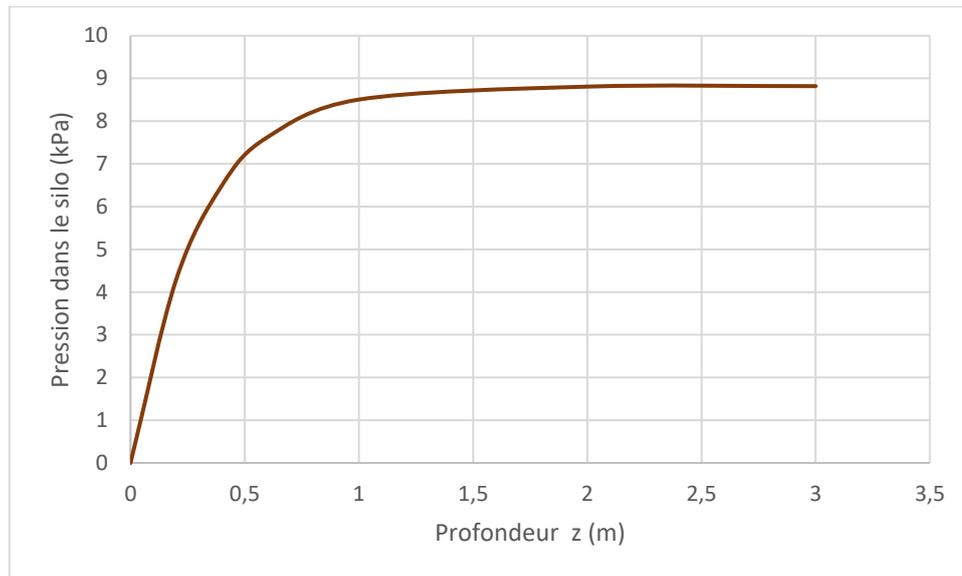


Figure 103 : Évolution de la contrainte de consolidation en fonction de la profondeur (modèle Janssen).

Une contrainte de 15 kPa correspondrait à une hauteur de silo supérieur à 1 m, ce qui ne paraît pas envisageable compte-tenu des contraintes d'échauffement et de criticité. La valeur de 15 kPa constitue donc une valeur majorante pour la contrainte de pré-consolidation.

5.3 RESULTATS RHEOLOGIQUES

Les poudres broyées PB et sphéroïdisée PBS ont été caractérisées suivant le protocole défini précédemment.

5.3.1 Test de suivi du comportement rhéologique.

La compressibilité aux différentes étapes du protocole a été mesurée pour différentes contraintes de consolidation. Sur la Figure 104, la compressibilité pour la poudre broyée PB et la poudre broyée sphéroïdisée PBS a été représentée pour 15 kPa.

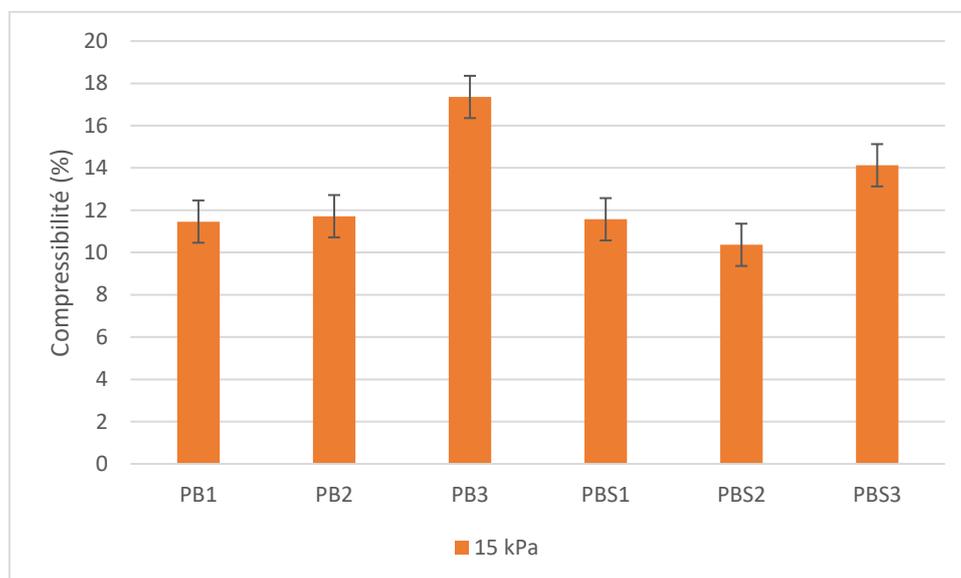


Figure 104 : Compressibilité de la poudre pour les différents tests rhéologiques à une contrainte de préconsolidation de 15 kPa : (1) avant (2) après la perméabilité et avant le VFR, (3) après le VFR.

Le test de compressibilité est utilisé pour suivre l'évolution des caractéristiques physiques de la poudre durant le procédé (dégradation des agglomérats). D'après la Figure 104, elle est similaire pour la poudre sphéroïdisée et non sphéroïdisée avant le test de perméabilité. On constate qu'après le test de perméabilité, la compressibilité de la poudre sphéroïdisée n'a pas évolué, contrairement à la non-sphéroïdisée. Lors du test VFR, les deux poudres subissent une importante modification entraînant une plus forte compressibilité. Ces différentes évolutions de la compressibilité seront expliquées plus spécifiquement lors de chaque test.

On présente les résultats des propriétés rhéologiques en suivant la partie du procédé industriel sur lequel on s'est focalisé : le passage de la poudre de la trémie vers le moule de presse puis l'écoulement au sein du moule de presse.

5.3.2 Passage de la trémie au moule de presse

Cette étape est caractérisée par les essais de cisaillement et pour cette dernière poudre un test d'écoulement spontané a été utilisé pour déterminer le diamètre annulaire de mise en écoulement spontané et venir compléter les tests de cisaillement.

5.3.2.1 Essais de cisaillement

Les essais de cisaillements ont permis de tracer les fonctions d'écoulement (Figure 105). La fonction d'écoulement est plus favorable pour PBS que pour PB. La fonction d'écoulement pour PB se situe dans la zone cohésive puis après sphéroïdisation, on voit qu'elle passe dans la zone d'écoulement facile. Ceci confirme que la sphéroïdisation améliore nettement la mise en écoulement, même pour une poudre de caractéristiques différentes de celles étudiées jusqu'à présent. L'opération de sphéroïdisation permet une mise en écoulement facile de la poudre.

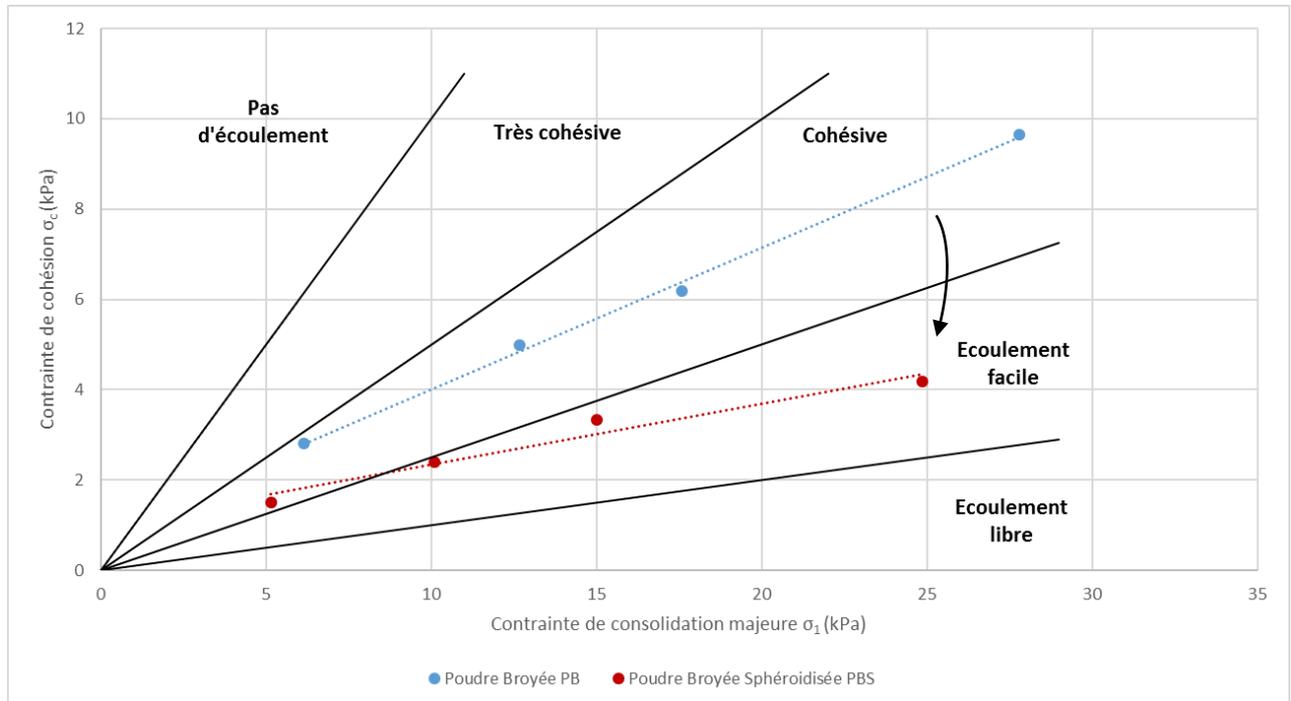


Figure 105 : Fonctions d'écoulement de la poudre broyée avant et après sphéroïdisation (écart-type des contraintes $\approx 10\%$).

La Figure 106 permet de comparer la cohésion des deux poudres broyées en fonction de l'augmentation de la contrainte de préconsolidation. On peut voir qu'à des petite contraintes, PBS a une plus faible cohésion que PB mais que cet écart demeure faible. Puis, plus la contrainte de préconsolidation augmente, plus cet écart devient significatif. Ceci permet de mettre en évidence l'impact de la sphéroïdisation sur la cohésion. Bien que la cohésion augmente avec la contrainte de préconsolidation pour les poudres sphéroïdisées, cette augmentation est relativement faible par rapport à la poudre broyée, probablement du fait d'une déformation de surface plus faible.

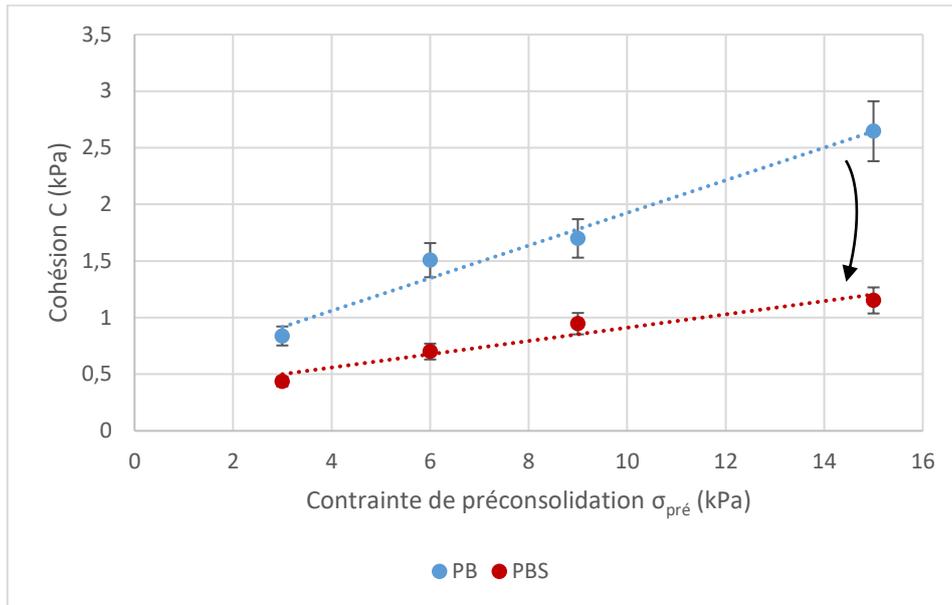


Figure 106 : Cohésion de la poudre broyée avant et après sphéroïdisation

Afin de mieux observer l'impact de la rugosité, on a déterminé la dilatation de la poudre lors de la mise en écoulement, ainsi que les angles AIF, AIFE et AIFS (Figure 107). Lorsque la rugosité diminue, la dilatation du lit de poudre diminue également, traduisant :

- Une diminution du phénomène d'interlocking, c'est-à-dire une diminution de dy/dx (Équation 31, mesuré expérimentalement avec les essais de cisaillement FT4) après sphéroïdisation de la poudre ;
- Une diminution des forces de friction comme le montre la Figure 107.

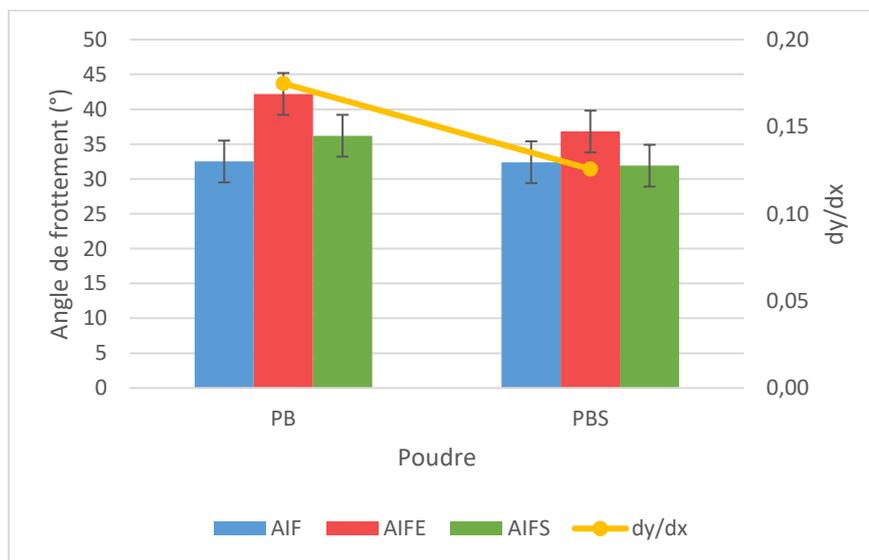


Figure 107 : Les angles de frottements de la poudre broyée avant et après sphéroïdisation. (Contrainte de préconsolidation de 15 kPa)

L'angle AIF est similaire pour toutes les poudres ce qui permet de supposer que l'angle AIF dépend des frottements entre les particules à l'échelle de l'agrégat. À cette échelle, la sphéroïdisation n'a pas d'impact significatif.

Dans le chapitre précédent, on a vu que l'angle de frottement interne effectif AIFE est caractéristique du coefficient de friction statique de la poudre. L'AIFE de PB est supérieur à celui de PBS. Ceci suit bien la valeur de la cohésion : plus elle est élevée plus la poudre a un fort AIFE. De plus l'angle AIFS caractéristique de l'angle de friction dynamique est plus fort pour PB que pour PBS. Une information complémentaire est donnée par la détermination du coefficient de déformation élastique-plastique κ . Les résultats sont présentés dans le Tableau 14. Après sphéroïdisation des poudres, κ diminue ceci peut être dû à une diminution de la rugosité de surface des particules, induisant une faible déformation de surface.

Tableau 14 : Détermination du coefficient de déformation élastique-plastique κ (Équation 33) pour le mélange cobroyé d' UO_2 .

Poudre	AIF (°)	AIFS (°)	κ
PB	32,5	42,2	0,42
PBS	32,5	36,8	0,17

La sphéroïdisation permet donc de faciliter la mise en écoulement en diminuant l'interlocking au niveau macroscopique au sein de la poudre et microscopique entre les particules. Ces phénomènes permettent de valider la baisse du nombre de points de contact entre les particules et donc aussi une diminution des forces d'interaction avec contact (forces de frottement) et sans contact (forces de Van der Waals). Ceci entraîne une diminution de la cohésion globale de la poudre conduisant à une amélioration de la mise en écoulement et de l'écoulement du mélange cobroyé d' UO_2 .

5.3.2.2 Test d'écoulement spontané

La réglette d'Arnold a été conçue pour déterminer le diamètre d'écoulement spontané de la poudre (Figure 108). Elle est composée d'une série de trous de différentes tailles. La poudre est versée dans un récipient cylindrique calibré. Il faut agir doucement lors du remplissage pour ne pas écraser ou tasser la poudre. Puis, le récipient est mis en mouvement au-dessus des trous classés par tailles croissantes. Tant que la poudre ne s'écoule pas, le glissement du récipient continue jusqu'à obtenir un écoulement (complet) de la poudre. Le diamètre obtenu correspond au diamètre d'écoulement spontané de la poudre.

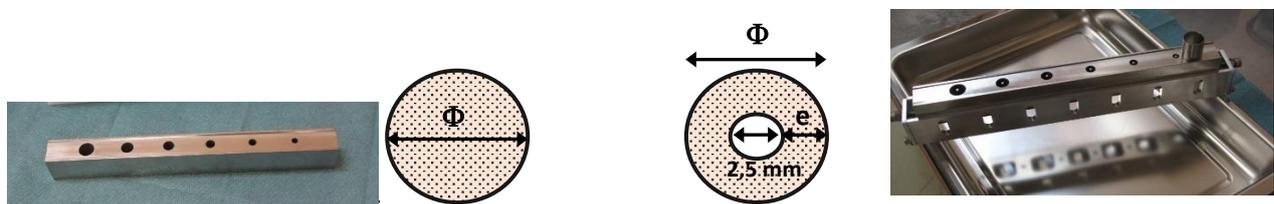


Figure 108 : Réglette d'Arnold (à gauche) et réglette d'Arnold annulaire (à droite).

La connaissance du diamètre dans lequel la poudre s'est écoulée permet de prévoir la mise en écoulement de la poudre au sein du procédé, plus particulièrement dans le moule de presse. La réglette

de référence est composée d'une ouverture cylindrique. Afin de répondre à notre procédé, la réglette a été modifiée : un poinçon de même diamètre que celui du procédé de référence (environ 2,5 mm) a été inséré. On dispose ainsi d'ouvertures annulaires (Figure 108), définies par l'interstice e au sein du moule. La réglette possède 6 interstices de tailles croissantes (Tableau 15).

Tableau 15 : Différentes tailles de trous pour la réglette d'Arnold modifiée (annulaire).

Numéro du trou	1	2	3	4	5	6
Diamètre extérieur ϕ (mm)	6,1	7,7	9,1	10,6	12,1	15,1
Interstice e annulaire (mm)	1,8	2,6	3,3	4,0	4,8	6,3

Le Tableau 16 résume les résultats obtenus avec la réglette annulaire, à la fois pour les poudres broyées et pour les granulés de l'étude à effets séparés (étudiés au Chapitre 3 et 4). Quelle que soit la morphologie de la poudre, les grosses particules ont une mise en écoulement plus facile. Cependant, la sphéroïdisation confirme son influence sur la mise en écoulement : les fines sphéroïdisées s'écoulent à des interstices plus petits que sans sphéroïdisation.

Tableau 16 : Résultats de la réglette d'Arnold modifiée (annulaire).

Poudre	Numéro du trou pour $e [+/-1]$
A0	1
AS0	1
E100	4
ES100	2
PB	4
PBS	1

Le même comportement est observé avec la poudre broyée. Cette dernière ne s'écoule qu'à partir d'une ouverture de 4 mm. Néanmoins, on peut voir que la sphéroïdisation a permis une amélioration des propriétés d'écoulement en diminuant cet interstice à environ 1,8 mm (inférieur à l'interstice de référence du procédé de 4 mm). La poudre broyée sphéroïdisée a donc des propriétés de mise en écoulement plus favorables pour le moule annulaire du procédé.

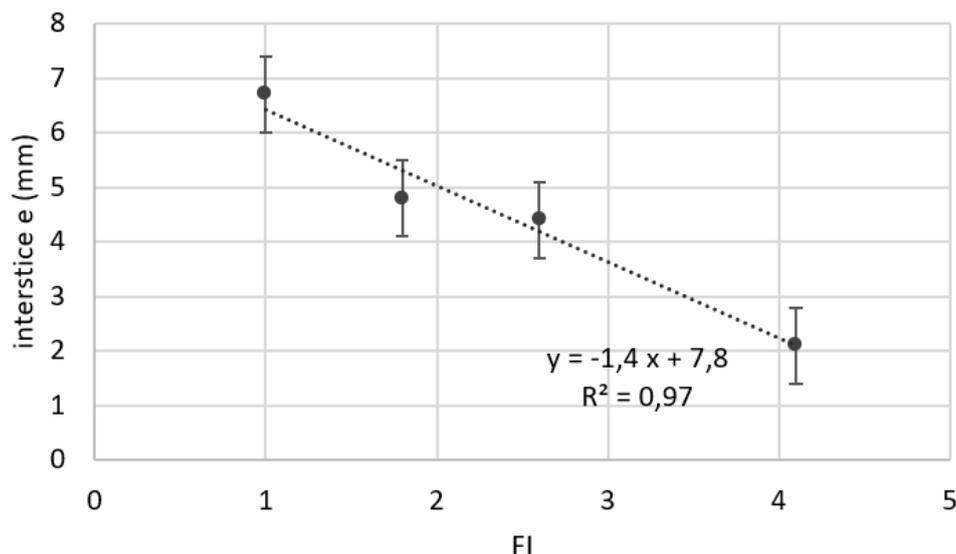


Figure 109 : Tracé de l'interstice e (moyenne de trois mesures) en fonction du facteur d'écoulement FI à 15 kPa (réglette Arnold modifiée).

L'interstice d'écoulement spontané e est tracé en fonction du facteur d'écoulement à 15 kPa sur la Figure 109. Une diminution de l'interstice est observée avec l'augmentation du FI . Ceci confirme le fait que dans un procédé donné, une poudre peut être considérée cohésive que si elle ne s'écoule pas dans ce système. La cohésion d'une poudre est donc spécifique du procédé d'application.

Bien que la réglette d'Arnold donne des mesures appliquées liées aux conditions opératoires, elle permet surtout de confirmer et d'appuyer les résultats obtenus par la cellule de cisaillement. Surtout, elle permet d'avoir une première approche du comportement de la poudre dans le procédé industriel.

5.3.3 Écoulement de la poudre dans le moule de presse

5.3.3.1 Perméabilité

La poudre broyée sphéroïdisée présente une plus faible perméabilité que la poudre broyée initiale (Figure 110). Ce phénomène est contraire à ce qui a été observé précédemment : pour les granulés d' UO_2 , la sphéroïdisation améliore la perméabilité (cf. Chapitre 4, § [4.2.3.1](#)).

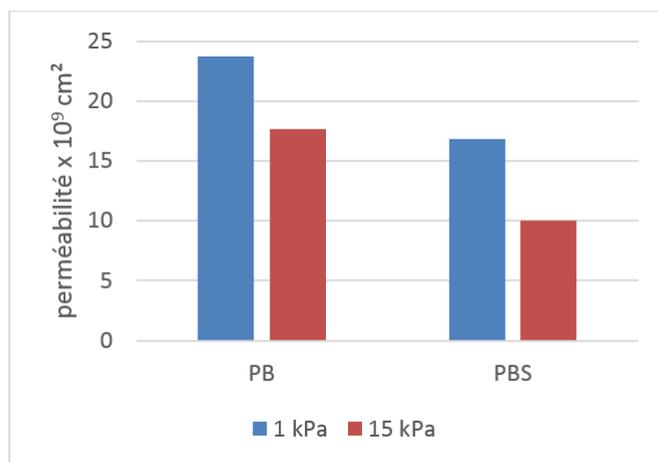


Figure 110 : Perméabilité de la poudre broyée avant et après sphéroïdisation (pour 1 kPa et 15 kPa) [écart-type $\approx 15\%$].

La Figure 110 montre que PBS est moins perméable que PB à 1 kPa et à 15 kPa. Il semble donc que la poudre sphéroïdisée laissera moins facilement échapper l'air présent au sein du moule de presse. La perméabilité de PBS est plus faible, peut-être en raison d'un meilleur arrangement granulaire entraînant une porosité plus faible de la poudre. D'autre part, lors de la sphéroïdisation, le Turbula entraîne aussi la formation de fines et de petites différences de distributions granulométriques entre PB et PBS sont observables (Figure 99). Il semble que la granulométrie, et plus précisément les fines, ont un impact plus important que la morphologie sur les tests de perméabilité.

5.3.3.2 Test Variable Flow Rate VFR (FT4)

En suivant les étapes du procédé de fabrication de pastilles, la poudre subit divers transferts. Le test VFR permet de mettre en évidence le comportement de la poudre en régime dynamique forcé. Il a été réalisé dans cette étude sur les deux poudres afin d'observer l'influence que peut avoir la sphéroïdisation sur la poudre broyée. Les différents indices sont présentés sur la Figure 111, l'énergie au test 1 de PBS est proche de celle des poudres constituées essentiellement de fines. Même si la sphéroïdisation a amélioré l'écoulement, la poudre broyée a une énergie d'écoulement relativement élevée.

Par ailleurs la sphéroïdisation apparaît instable avec l'enchaînement des cycles de la pale. La PBS évolue jusqu'à obtenir un état similaire à celui de la poudre broyée initiale. Le VFR détruit donc l'effet de la sphéroïdisation mais on peut supposer que ce test modifie la poudre sphéroïdisée jusqu'à ce qu'elle atteigne un état d'équilibre proche de la poudre non-sphéroïdisée. Les résultats du SE et du FRI pour PB et PBS viennent appuyer cette hypothèse car on peut voir qu'ils sont similaires pour les deux poudres étudiées dans ce chapitre.

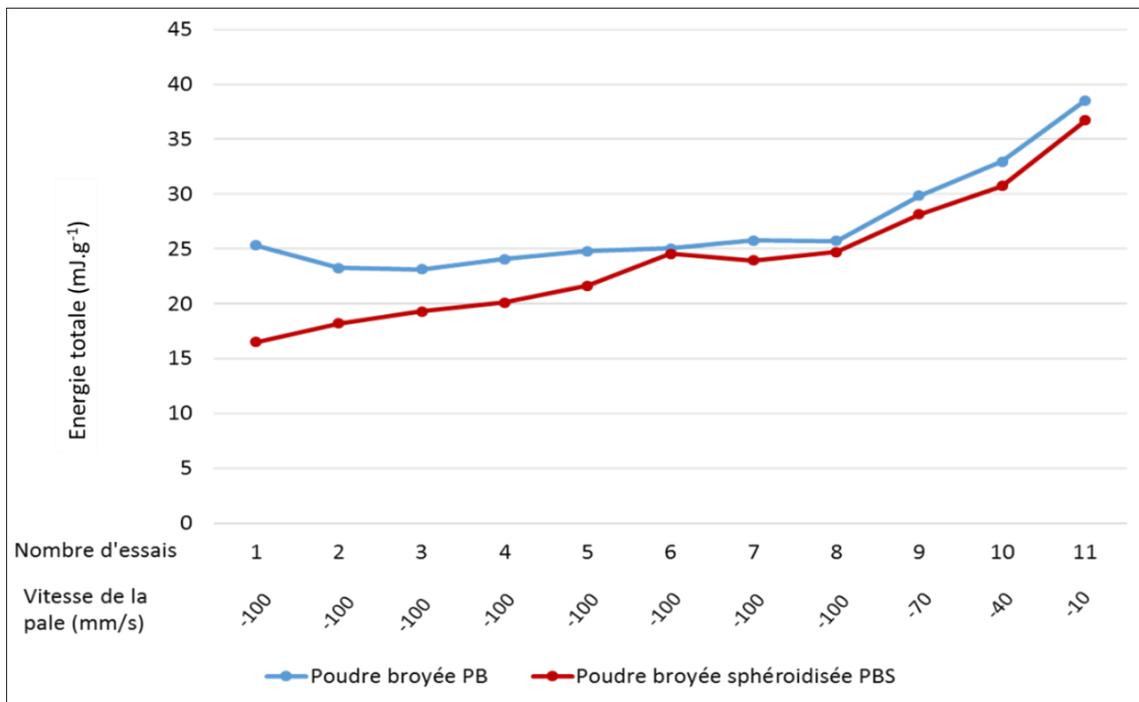


Figure 111 : Évolution de l'énergie totale par unité de masse durant le test VFR (avec un écart-type $\approx 3 \text{ mJ.g}^{-1}$).

Tableau 17 : Mesure des différents indices NBFÉ, SI, FRI et SE.

Poudre	NBFÉ (mJ.g^{-1}) [+/-3]	SI [+/-0,1]	FRI [+/- 0,1]	SE (mJ.g^{-1}) [+/-2]	Energie au test n°1 (mJ.g^{-1}) [+/-3]	CBD (g.mL^{-1}) [+/-0,2]
PB	26	1,0	1,5	10	25	2,8
PBS	24	1,4	1,5	9	17	3,4

5.4 SYNTHÈSE

La sphéroïdisation apporte une amélioration des propriétés rhéologiques de la poudre lors de la mise en écoulement et pour l'écoulement. On retrouve pour le mélange broyé des résultats similaires à ceux qui ont été déterminés lors de l'étude à effets séparés (cf. Chapitre 3, § 3.2/3.3 et Chapitre 4, § 4.2.2/4.2.3). La sphéroïdisation a permis de diminuer la zone de contact entre les grains, entraînant une diminution des forces d'interaction attractives entre les particules. Elle a également diminué les forces frictionnelles en réduisant la rugosité des particules.

La sphéroïdisation correspond à un bon compromis par rapport au gain sur l'écoulement et compte-tenu des contraintes imposées : c'est un procédé simple et qui prend en charge toute la poudre sans nécessiter d'éliminer une coupe granulométrique et générant peu de poussières. Les problèmes potentiels sont la création de fines lors de la sphéroïdisation capable de dégrader l'écoulement et l'instabilité de la poudre lorsqu'elle est en régime dynamique. C'est pourquoi l'implantation de la sphéroïdisation dans le procédé est primordiale pour une optimisation du remplissage des moules de presses et le contrôle de la quantité de fines est nécessaire.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Le combustible nucléaire envisagé pour les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium est constitué de pastilles céramiques fabriquées à partir d'UO₂ et de PuO₂, suivant un procédé de métallurgie des poudres. Ce combustible nécessite un processus de fabrication adapté. En particulier, les propriétés rhéologiques de la poudre alimentant le poste de pressage doivent être appropriées pour un remplissage reproductible des moules de presse annulaires.

En début de procédé, le mélange des poudres d'UO₂ et de PuO₂ est réalisé par cobroyage. Cette opération, destinée à obtenir une microstructure finale homogène (répartition UO₂-PuO₂), conduit à une poudre dont les propriétés rhéologiques sont généralement médiocres vis-à-vis de l'écoulement. Une opération de préparation est alors nécessaire avant la mise en forme des pastilles pour améliorer les propriétés de remplissage des moules.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons cherché à identifier les caractéristiques physiques influentes sur lesquelles il est possible de jouer, ainsi que les domaines cibles à viser à l'issue de l'étape de préparation. La distribution granulométrique et la morphologie sont deux caractéristiques qui se sont plus particulièrement dégagées et sur lesquelles nous avons travaillé. Pour évaluer l'influence de la granulométrie et de la morphologie sur les propriétés rhéologiques, des granulés d'UO₂ ont été fabriqués de manière reproductible grâce à un broyeur à tamis (tamisage-forçage). Les poudres obtenues ont subi un tamisage séparant les granulés supérieurs à 100 µm et les granulés inférieurs à 100 µm (appelés aussi fines). Ces granulés d'UO₂ ont permis la réalisation d'une étude à effets séparés, en modifiant indépendamment la proportion de fines et la rugosité de surface des granulés par sphéroïdisation.

Pour bien appréhender le comportement des poudres étudiées, il a été nécessaire de réaliser différents types de tests. Nous avons différencié deux catégories de méthodes suivant le type de caractéristique visé. Le premier type est la mise en écoulement. Elle correspond au passage de la poudre d'un état statique à un état dynamique : elle se produit en particulier lors du passage du sabot au-dessus du moule de presse. Le deuxième type de caractéristique correspond au régime dynamique, dans la continuité de la mise en écoulement. Pour appréhender les propriétés de remplissage, il faut s'intéresser à la fois à la mise en écoulement et à l'écoulement de la poudre.

La mise en écoulement a été évaluée essentiellement par des essais de cisaillement : le cisaillement sous contraintes permet de déterminer la rupture d'un lit poudre consolidé. Différents types de cellules de cisaillements ont été étudiés : la cellule de Schulze (30 mL) annulaire puis les cellules de cisaillement rotationnelles cylindriques du FT4 avec des volumes différents (1 mL, 10 mL et 85 mL). On a cherché dans cette thèse à optimiser la quantité de matière mise en œuvre pour les mesures. Ceci nous a permis de conclure sur le choix de la cellule de cisaillement de 10 mL du FT4. Cette dernière permet d'obtenir

des résultats similaires à la cellule de Schulze et à la cellule de 85 mL du FT4 tout en minimisant la quantité de poudre à caractériser.

Pour caractériser l'écoulement, deux types de tests ont été utilisés : la mesure de la perméabilité du lit de poudre à un débit d'air constant (ce débit correspond à l'air qui peut être piégé dans le moule de presse et qui doit s'en échapper lors du remplissage) et les mesures d'écoulement dynamiques avec le test VFR du FT4.

Pour optimiser les tests rhéologiques sur un échantillon de poudre donné, un protocole de mesures est nécessaire afin de ne pas biaiser les résultats lors des caractérisations successives (en particulier dans le cas de tests destructifs). C'est pourquoi une investigation sur l'évolution de la poudre lors de chaque test a été effectuée. Le test de cisaillement peut être considéré comme non destructif : la surface de poudre cisailée est certes dégradée lors du cisaillement mais le volume concerné est faible et on peut considérer que la poudre n'a pas été dégradée à condition de réaliser les tests par contraintes de préconsolidation croissantes. Par ailleurs, le test de perméabilité n'implique qu'une contrainte normale et un débit d'air faible. Etant donnée la bonne tenue mécanique des granulés, ce test est considéré comme non destructif pour les débits et les contraintes étudiées, ce qui a été validé par les expériences de contrôle de compressibilité avant et après le test de perméabilité. Le test VFR est caractérisé par le passage de la pale dans le lit de poudre à différentes vitesses, il implique une compression et un cisaillement du lit de poudre. On a pu voir qu'il était destructif, en particulier pour les poudres sphéroïdisées. Des tests de compressibilité et de granulométrie ont été effectués avant puis après ce test, et ont permis d'observer la formation de fines particules. Ce test est ainsi le plus couteux en quantité de poudre et la dégrade entièrement. Pour cette raison, il a été placé à la fin du protocole de mesure.

La granulation de la poudre a permis de se rapprocher de la poudre industrielle cobroyée. Dans cette thèse, deux opérations ont ainsi été étudiées sur ces granulés d' UO_2 modèles : le tamisage avec la modification de la granulométrie et la sphéroïdisation avec la modification de la morphologie de surfaces des granulés.

L'étude de l'influence de la granulométrie consiste à étudier l'influence des fines (particules inférieures à 100 μm) dans une poudre. Pour cela différents mélanges granulométriques ont été réalisés en faisant varier les proportions des deux populations (inférieures et supérieures à 100 μm). Les fonctions d'écoulement obtenues avec les essais de cisaillement se répartissent en deux catégories : les poudres avec une mise en écoulement plutôt facile (0 et 10 %m de fines) et celles plutôt cohésives (30, 50 et 100 %m de fines). On distingue une répartition des poudres en deux catégories lors des tests d'écoulement par VFR. Les énergies d'écoulement mesurées sont plus faibles dans le cas des teneurs en fines supérieures ou égales à 30 %m. Ceci pourrait en fait traduire une modification de la zone d'influence de la pale liée à la compressibilité du matériau granulaire caractérisé. Par ailleurs, seules les mesures de perméabilité montrent une évolution entre 0 et 10 %m de fines, avec une nette diminution de la perméabilité en passant de 0 à 10 %m de fines. Le comportement du mélange dépend donc fortement de la quantité de fines qu'il contient. Au-dessous de 10%*m* de fines, il est gouverné par la fraction des granulés supérieurs à 100 μm sauf pour la perméabilité. Au-delà de 30%*m*, les particules fines remplissent les espaces vides entre les grosses particules, ce qui réduit le nombre de contacts directs entre grosses particules et provoque la formation d'une poudre cohésive.

L'étude de l'influence de la morphologie a consisté à étudier l'influence de la rugosité des particules, celle-ci étant modifiée par une opération de sphéroïdisation. Ce type d'opération pourrait précéder la mise en forme des pastilles pour améliorer les propriétés de remplissage. On distingue dans notre étude les particules dites « lisses » correspondant à des particules de faible rugosité (après sphéroïdisation) et les particules dites « rugueuses » correspondant à des particules présentant une forte rugosité (sans sphéroïdisation). L'état de surface des granulés a une forte influence sur l'écoulement. La sphéroïdisation des particules améliore l'écoulement de la poudre aussi bien au niveau du test VFR que de la perméabilité de la poudre mais ne permet pas d'obtenir des granulés au caractère non friable dans le cas de nos poudres d'UO₂. Elle améliore la transition entre l'état statique et l'état dynamique quelle que soit la distribution granulométrique de la poudre. La sphéroïdisation diminue le nombre de points de contacts entraînant la diminution des forces d'interactions entre les grains. Ceci permet surtout la diminution de la force à fournir pour rompre le lit de poudre induisant une meilleure mise en écoulement. Cette opération apparaît efficace mais doit être réalisée juste avant l'étape de remplissage / pressage vu que l'opération de sphéroïdisation permet d'avoir des granulés avec des propriétés rhéologiques favorables mais facilement friables lorsqu'ils sont mis en mouvement (transport pneumatique, etc.).

La mise en écoulement et l'écoulement des poudres dépendent des interactions entre les particules c'est-à-dire de la friction (contact) et des forces interparticulaires (sans contact). Le frottement interparticulaire dépend des caractéristiques de la surface des particules, et principalement de la rugosité. Les forces interparticulaires sans contact sont essentiellement provoquées par des forces intermoléculaires telles que les forces de van der Waals, qui dépendent de la taille des particules et de la rugosité. Etant donnée la forte densité de la poudre d'UO₂, l'impact du poids sur les forces d'interactions entre les particules est à prendre en compte dans la compréhension de comportement rhéologique de la poudre.

L'étude à effets séparés a permis d'identifier l'impact de chacune des opérations de tamisage et de sphéroïdisation. En modifiant la granulométrie c'est à dire en diminuant la quantité de fines jusqu'à un certain seuil, on améliore la mise en écoulement et l'écoulement. L'inconvénient de cette méthode au niveau industriel est la quantité de refus de fines particules d'UO₂. À la différence de la méthode de sphéroïdisation qui permet de modifier les propriétés rhéologiques de la poudre pour toute proportion de fines dans la poudre. Elle améliore fortement la mise en écoulement, mais reste dépendante de la quantité de fines au niveau de l'écoulement. Cette méthode simple présente par contre l'inconvénient d'obtenir des granulés friables. C'est pourquoi sa place dans le procédé est primordiale pour obtenir des propriétés rhéologiques favorables. La modification du mélange broyé d'UO₂ par sphéroïdisation a permis de confirmer l'amélioration des propriétés rhéologiques bien qu'il y ait formation de fines. Cette création de fines peut être contrôlée en modifiant les conditions de sphéroïdisation : il faudrait ainsi trouver les conditions optimales conduisant à un niveau de sphéroïdisation acceptable sans créer de fines supplémentaires.

Cependant certaines études [Sinka, 2004- Mills, 2013] ont montré qu'un remplissage satisfaisant est spécifique des propriétés rhéologiques de la poudre et du procédé industriel la mettant en œuvre. C'est pourquoi des essais de remplissage doivent désormais être effectués afin de vérifier la contribution d'une phase de préparation sur la reproductibilité du remplissage des moules de presse. Ces essais de validation consisteront à réaliser des pastilles crues (c'est-à-dire obtenues directement après compression et n'ayant

pas encore subit de frittage) pour différentes préparations de poudres. Ces tests permettront de corréler les différents facteurs des caractérisations rhéologiques (cisaillement, perméabilité, VFR) avec le remplissage. On pourra alors évaluer la quantité de fines acceptable mais aussi le degré de rugosité visé pour avoir un procédé de fabrication de combustible efficace.

Une étude serait à terme souhaitable sur la poudre de référence $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$. Même si nous avons considéré dans une première approche que la poudre d' UO_2 est représentative du mélange, il reste toutefois indispensable de caractériser la poudre cobroyée contenant du PuO_2 . La quantité d'environ 30% de PuO_2 pourrait avoir un effet notable sur les forces d'interactions et ainsi le comportement rhéologique de la poudre. Il serait également nécessaire d'étudier l'impact de l'opération de sphéroïdisation (suite au cobroyage) sur la suite du procédé de fabrication et sur les propriétés des pastilles RNR $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ finales.

REFERENCES

- AFNOR NF ISO 9161. 2006. "Uranium dioxide powder - Determination of apparent density and tap density". Engineering360.
- Allen, T. 1997. "Particle Size Measurement: Volume 1: Powder Sampling and Particle Size Measurement". 5e éd. Particle Technology Series. Springer Netherlands.
- Ambrose, RP. Kingsly, S. Jan, K. Siliveru. 2016. "A Review on Flow Characterization Methods for Cereal Grain-based Powders". *Journal of the Science of Food and Agriculture* 96 (2): 359-64.
- Andreotti, B., Y. Forterre, O. Pouliquen, E. Guyon. 2011. "Les milieux granulaires : entre fluide et solide". Les Ulis, France: EDP sciences.
- Ashton, M.D., R. Farely, F.H.H. Valentin. 1965 "Some investigations into the strength and flow properties of powders". *Rheol. Acta*, 4.
- ASTM-D7891-15. 2015. "Standard test method for shear testing of powders using the freeman technology FT4 powder rheometer shear cell". West Conshohocken, PA: ASTM International.
- ASTM-D6773-16. 2008. "Standard shear test method for bulk solids using the Schulze ring shear tester". West Conshohocken, PA: ASTM International.
- Barra, J., F. Lescure, F. Falson-Rieg, E. Doelker. 1998. "Can the Organization of a Binary Mix Be Predicted from the Surface Energy, Cohesion Parameter and Particle Size of Its Components?" *Pharmaceutical Research* 15 (11): 1727-36.
- Bek, M., J. Gonzalez-Gutierrez, J. A. M. Lopez, D. Bregant, I. Emri. 2016. "Apparatus for measuring friction inside granular materials — Granular friction analyzer". *Powder Technology* 288 : 255-65.
- Bell, T. A. 1999. "Industrial needs in solids flow for the 21st century". *ResearchGate* 11 (1): 9-12.
- Bodhmagé, A. K. 2006. "Correlation between Physical Properties and Flowability Indicators for Fine Powders".
- Boschini, F., V. Delaval, K. Traina, N. Vandewalle, G. Lumay. 2015. "Linking flowability and granulometry of lactose powders". *International Journal of Pharmaceutics* 494 (1): 312-20.
- Bruni, G., P. Lettieri, D. Newton, J. Yates. 2006. "The influence of fines size distribution on the behaviour of gas fluidized beds at high temperature". *Powder Technology* 163 : 88-97.
- Butt, H-J, B. Cappella, M. Kappl. 2005. "Force measurements with the atomic force microscope: Technique, interpretation and applications". *Surface Science Reports* 59 (1–6): 1-152.
- Cain, J. 2002. "An alternative technique for determining ANSI/CEMA standard 550 flowability ratings for granular materials". *Powder Handling & Processing* 14 (3): 218-20.

- Capece, M., R. Ho, J. Strong, P. Gao. 2015. "Prediction of powder flow performance using a multi-component granular Bond number". *Powder Technology* 286 : 561-71.
- Carr, R.L. 1965. "Evaluating Flow Properties of Solids". *Chemical Engineering*.
- Castellanos, A. 2005. "The relationship between attractive interparticle forces and bulk behaviour in dry and uncharged fine powders". *Advances in Physics* 54 (4): 263-376.
- Chirone, R., D. Barletta, P. Lettieri, M. Poletto. 2016. "Bulk flow properties of sieved samples of a ceramic powder at ambient and high temperature". *Powder Technology* 288: 379-87.
- Condotta, R. 2005. "Coulabilité des poudres cohésives : mesures aux faibles contraintes, granulaires humides et application à une poudre industrielle".
- Elbicki, J.M., G.I. Tardos. 1998. "The influence of fines on the flowability of alumina powders in test hoppers". *Powder Handling and Processing* 10 : 147-49.
- Emery, E., J. Oliver, T. Pugsley, J. Sharma, J. Zhou. 2009. "Flowability of moist pharmaceutical powders". *Powder Technology* 189 (3): 409-15.
- Fitzpatrick, J. J., T. Iqbal, C. Delaney, T. Twomey, M. K. Keogh. 2004. "Effect of powder properties and storage conditions on the flowability of milk powders with different fat contents". *Journal of Food Engineering* 64 (4): 435-44.
- Flemming, J., J. B. Mielck. 1995. "Requirements for the Production of Microtablets: Suitability of Direct-Compression Excipients Estimated from Powder Characteristics and Flow Rates". *Drug Development and Industrial Pharmacy* 21 (19): 2239-51.
- Forny, L., K. Saleh, R. Denoyel, I. Pezron. 2010. "Contact Angle Assessment of Hydrophobic Silica Nanoparticles Related to the Mechanisms of Dry Water Formation". *Langmuir: The ACS Journal of Surfaces and Colloids* 26 (4): 2333-38.
- Fowkes, F. M. 1962. "Determination of interfacial tensions, contact angles and dispersion forces by assuming additivity of intermolecular interactions in surfaces". *J. Phys. Chem.*, Vol.66, p. 382.
- Freeman, R. 2007. "Measuring the flow properties of consolidated, conditioned and aerated powders—a comparative study using a powder rheometer and a rotational shear cell". *Powder Technology*. 174.
- Freeman, R., X. Fu. 2008. "Characterisation of powder bulk, dynamic flow and shear properties in relation to die filling". *Powder Metallurgy* 51 : 196-201.
- Freeman, R., J. R. Cooke, L. C. R. Schneider. 2009. "Measuring shear properties and normal stresses generated within a rotational shear cell for consolidated and non-consolidated powders". *Powder Technology*, 190 (1): 65-69.
- Fu, X., D. Huck, L. Makein, B. Armstrong, U. Willen, T. Freeman. 2012. "Effect of particle shape and size on flow properties of lactose powders". *Particuology, Advances in Characterization and Modeling of Particulate Processes*, 10 (2): 203-8.

- Gamble, J. F., M. Leane, D. Olusanmi, M. Tobyn, E. Šupuk, J. Khoo, M. Naderi. 2012. "Surface energy analysis as a tool to probe the surface energy characteristics of micronized materials—A comparison with inverse gas chromatography". *International Journal of Pharmaceutics* 422 (1–2): 238-44.
- Geldart, D., E. C. Abdullah, A. Hassanpour, L. C. Nwoke, I. Wouters. 2006. "Characterization of powder flowability using measurement of angle of repose". *China Particuology* 4.
- Geldart, D., E. C. Abdullah, A. Verlinden. 2009. "Characterisation of dry powders". *Powder Technology*, 190 (1–2): 70-74.
- Gerschel, A. 1995. "Liaisons intermoléculaires : les forces en jeu dans la matière condensée". EDP Sciences.
- Goalard, C. 2005. "Etude physico-chimique du procédé de dispersion des poudres libres et agglomérées en milieu liquide".
- Goh, H. P., P. Wan Sia Heng, C. V. Liew. 2018. "Investigation on the impact of powder arching in small die filling". *International Journal of Pharmaceutics* 551 (1): 42-51.
- Guérin, Y. 2008. "Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau ». In *Monographie DEN: Les combustibles nucléaires*". Editions LE MONITEUR.
- Guo, Z., X. Chen, Y. Xu, H. Liu. 2015. "Effect of granular shape on angle of internal friction of binary granular system". *Fuel* 150: 298-304.
- Guyon, E., J.P. Troadec. 1994. "Du sac de billes au tas de sable". Éditions Odile Jacob, Paris.
- Israelachvili, J.N. 1992. "Adhesion forces between surfaces in liquids and condensable vapours". *Surface Science Reports* 14 (3), 109-159.
- Jan, S., K. Jan, D. Saxena. 2016. "Flow property measurement of rice flour- A Review". MATEC.
- Janda, A., I. Zuriguel, A. Garcimartín, L.A. Pugnali, D. Maza. 2008. "Jamming and critical outlet size in the discharge of a two-dimensional silo. *Europhys*". *Lett.* 84, 44002.
- Janssen, H. A. 1895. "Versuche über Getreidedruck in Silozellen. *Zeitschr* ». *Vereines deutscher Ingenieure*, 39 (35):1045-1049.
- Jenike, A.W. 1964. "Storage and flow of solids". *Bulletin of the Utah Engineering Experiment*, 123.
- Juliano, P., B. Muhunthan, G. V. Barbosa-Cánovas. 2006. "Flow and shear descriptors of preconsolidated food powders". *Journal of Food Engineering* 72 (2): 157-66.
- Kleitz, A., D. Boulaud. 2016. "Granulométrie des particules en mouvement et des aérosols". *Techniques de l'ingénieur Caractérisation des fluides*.
- Kurz, H.P., G. Münz. 1975. « The influence of particle size distribution on the flow properties of limestone powders". *Powder Technology*.

- Lapčák, L., B. Lapčíková, E. Otyepková, M. Otyepka, J. Vlček, F. Buňka, R. Nikolaos Salek. 2015. "Surface energy analysis (SEA) and rheology of powder milk dairy products". *Food Chemistry* 174 : 25-30.
- Lee, Y.S., R. Poynter, F. Podczec, J.M. Newton. 2000. "Development of a dual approach to assess powder flow from avalanching behaviour". *AAPS PharmSciTech* 1, 44-52.
- Leturia, M., M. Benali, S. Lagarde, I. Ronga, K. Saleh. 2014. "Characterization of flow properties of cohesive powders: a comparative study of traditional and new testing methods". *Powder Technol.* 253, 406-423.
- Li, Q., V. Rudolph, B. Weigl, et Alan Earl. 2004. "Interparticle van der Waals force in powder flowability and compactibility". *International Journal of Pharmaceutics* 280 (1): 77-93.
- Liu, Y., X. Guo, H. Lu, X. Gong. 2015. "An Investigation of the Effect of Particle Size on the Flow Behavior of Pulverized Coal". *Procedia Engineering* 102 : 698-713.
- Lumay, G., F. Boschini, K. Traina, S. Bontempi, J.C. Remy, R. Cloots, N. Vandewalle,. 2012. "Measuring the flowing properties of powders and grains". *Powder Technology.* 224, 19-27.
- Mangal, S., T. Gengenbach, D. Millington-Smith, B. Armstrong, D. Morton, I. Larson. 2016. "Relationship between the cohesion of guest particles on the flow behaviour of interactive mixtures". *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* 102.
- Mills, L. A., I. C. Sinka. 2013. "Effect of particle size and density on the die fill of powders". *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics* 84 (3): 642-52.
- Molerus, O. 1978. "Effect of interparticle cohesive forces on the flow behaviour of powders". *Powder Technology* 20 (2): 161-75.
- Osorio, J., F. J. Muzzio. 2013. "Effects of powder flow properties on capsule filling weight uniformity". *Drug development and industrial pharmacy* 39: 1464-75.
- Owens, D. K., R. C. Wendt. 1969. "Estimation of the Surface Free Energy of Polymers". *Journal of Applied Polymer Science* 13 (8): 1741-47.
- Pelletier, M. 2016. "Retour d'expérience du comportement du combustible annulaire en réacteur à neutrons rapides". *Note Technique CEA/DEN/CAD/DEC/SESC/LSC NT 16-002.*
- Podczec F. 1998. "Particle-particle adhesion in pharmaceutical powder handling". Imperial College Press.
- Powers, M.C. 1953. "A new roundness scale for sedimentary particles". *Journal of Sedimentary Petrology*, 23:117-119.
- Rabinovich, Y. I., J. J. Adler, A. Ata, R. K. Singh, B. M. Moudgil. 2000. "Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces: II. Measurement and Comparison with Theory". *Journal of Colloid and Interface Science* 232 (1): 17-24.

- Reynolds, O. 1885. "On the dilatancy of media composed of rigid particles in contact, with experimental illustrations". *Phil. Mag.* 469-48.
- Ripp, M., S. Ripperger. 2010. "Influence of temperature on the flow properties of bulk solids". *Chemical Engineering Science* 65 (13): 4007-13.
- Rowe, R. C. 1990. "Correlation between predicted binder spreading coefficients and measured granule and tablet properties in the granulation of paracetamol". *International Journal of Pharmaceutics* 58 (3): 209-13.
- Rudawska, A., E. Jacniacka. 2009. "Analysis of Determining Surface Free Energy Uncertainty with the Owens-Wendt method". *International Journal of Adhesion and Adhesives*, Vol.29, pp. 451-457, ISSN 0143-7496
- Rumpf, H. C. H. 1970. "Zur Theorie der Zugfestigkeit von Agglomeraten bei Kraftübertragung an Kontaktpunkten". *Chemie Ingenieur Technik* 42 (8): 538-40.
- Saleh K., P. Guigon. 2009. "Caractérisation et analyse des poudres - Propriétés physiques des solides divisés". *Techniques de l'Ingénieur*.
- Saleh K., P. Guigon. 2012. "Mise en œuvre des poudres - Stockage et écoulement des silos". *Techniques de l'Ingénieur*.
- Santamarina, J., K. A. Klein, Y.-H. Wang, E. Prencke. 2002. "Specific surface: Determination and relevance". *Canadian Geotechnical Journal* 39: 233-41.
- Sastry, K.V.S., D.W. Fuerstenau. 1973. "Mechanisms of agglomerate growth in pelletization". *Powder Technology* 7: 97-105.
- Schatz, P. 1975. "Rhythmusforschung und Technik". Verlag Freies Geistesleben.
- Schneider, L. C. R., I. C. Sinka, A. C. F. Cocks. 2007. "Characterisation of the flow behaviour of pharmaceutical powders using a model die-shoe filling". *Powder Technology* 173 (1): 59-71.
- Schofield, A. N. 1998. "Mohr Coulomb error correction Ground Engineering". Vol 31, No 8, pp 28- 32.
- Schulze, D. 2011. "Flow Properties of Powders and Bulk Solids".
- Schwedes, J., D. Schulze. 1990. "Measurement of flow properties of bulk solids." *Powder Technology* 61 (1): 59-68.
- Seville, J., U. Tüzün, R. Clift. 2012. "Processing of Particulate Solids". Springer Science & Business Media.
- Shinohara, K., B. Golman. 2002. "Dynamic shear properties of particle mixture by rotational shear test". *Powder Technology*.
- Sinka, I.C., L.C.R. Schneider, A.C.F. Cocks. 2004. "Measurement of the flow properties of powders with special reference to die fill". *Int. J. Pharm.* 280, 27-38.

- Sinka, I. C., A. C. F. Cocks. 2009. "Evaluating the flow behaviour of powders for die fill performance". *Powder Metallurgy* 52 (1): 8-11.
- Soppela, I. 2010. "Investigation of the powder flow behavior of binary mixtures of microcrystalline celluloses and paracetamol". *Journal of Excipients and Food Chemicals*.
- Stevens, P., L. Gyphen. 1974. "Wettability of powders". *Pharm development*.
- Stoklosa, A. M., R. A. Lipasek, L. S. Taylor, L. J. Mauer. 2012. "Effects of storage conditions, formulation, and particle size on moisture sorption and flowability of powders: A study of deliquescent ingredient blends". *Food Research International* 49 (2): 783-91.
- Swaminathan, V., J. Cobb, I. Saracovan. 2006. "Measurement of the surface energy of lubricated pharmaceutical powders by inverse gas chromatography". *International Journal of Pharmaceutics* 312 (1-2): 158-65.
- Tasirin, S. M. 2000. "The Effect of Fines on Flow Properties of Binary Mixtures". *Chemical Engineering Communications* 179 (1): 101-15.
- Taylor, D. W. 1948. "Fundamentals of Soil Mechanics", John Wiley.
- Teunou, E., J. J. Fitzpatrick, E. C. Synnott. 1999. "Characterisation of food powder flowability". *Journal of Food Engineering* 39 (1): 31-37.
- Tita-Goldstein, A. 2013. "Mise en forme des poudres par compression : influence du procédé et de la formulation pour la maîtrise des propriétés d'usage".
- Tomas, J. 2003. "Flow Properties of Cohesive Nanopowders". *China Particuology*.
- Tomas, J. 2004. "Product Design of Cohesive Powders – Mechanical Properties, Compression and Flow Behavior". *Chemical Engineering & Technology*.
- Tomas, J., S. Kleinschmidt. 2009. "Improvement of Flowability of Fine Cohesive Powders by Flow Additives". *Chemical Engineering & Technology*.
- Turki, D., N. Fatah. 2008. "Behavior and fluidization of the cohesive powders: Agglomerates sizes approach". *Brazilian Journal of Chemical Engineering*.
- Valverde, J. M., A. Castellanos, A. Ramos, P K. Watson. 1998, "The Tensile Strength of Cohesive Powders and Its Relationship to Consolidation, Free Volume and Cohesivity", *Powder Technology*, Vol. 97, 237-245.
- Valverde, J. M., A. Castellanos, A. Ramos, P K. Watson. 2000. "Avalanches in Fine, Cohesive Powders". *Physical review. E, Statistical physics, plasmas, fluids, and related interdisciplinary topics* 62 : 6851-60.
- Wadell, H., 1932, Volume, shape, and roundness of rock particles. *Journal of Geology* 40:443-51.
- Washburn, E. W. 1921. "The Dynamics of Capillary Flow". *Physical Review* 17 (3): 273-83.

- Wei, G., S. Mangal, J. Denman, T. Gengenbach, K. Lee Bonar, R. I. Khan, Li Qu, T. Li, Q. T. Zhou. 2017. "Effects of Coating Materials and Processing Conditions on Flow Enhancement of Cohesive Acetaminophen Powders by High-Shear Processing With Pharmaceutical Lubricants". *Journal of Pharmaceutical Sciences* 106 (10): 3022-32.
- WONG A. C. Y. 2000. "Characterisation of the flowability of glass beads by bulk densities ratio". *Chemical Engineering Science*.
- Wu, S. 1971. "Calculation of Interfacial Tension in Polymer Systems". *J. Polymer Science*.
- Xu, R. 2000. "Particle Characterization: Light Scattering Methods". *Particle Technology Series*. Springer Netherlands.
- Yoshimi, Y., T. Kishida. 1981. "A Ring Torsion Apparatus for Evaluating Friction Between Soil and Metal Surfaces". *Geotechnical Testing Journal* 4 (4): 145-52.
- Zaetta, A. 2014. "Pourquoi des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) ? " In *Monographie DEN: Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, Editions LE MONITEUR.
- Zafar, U., C. Hare, G. Calvert, M. Ghadiri, R. Girimonte, B. Formisani, M. A. S. Quintanilla, J. M. Valverde. 2015. "Comparison of cohesive powder flowability measured by Schulze Shear Cell, Raining Bed Method, Sevilla Powder Tester and new Ball Indentation Method". *Powder Technology* 286: 807-16.

ANNEXE A : TRACE DU CERCLE DE MOHR

Considérons un plan dans lequel seules agissent les contraintes suivantes σ_x et σ_y (Figure 112). Une problématique dans ce cas est, pour un couple de contraintes (σ_x, σ_y) , quel plan va porter la rupture ? (cf. Chapitre 1 1.2.5.1) Pour cela le tracé des cercles de Mohr pourra apporter une réponse à notre problème. Les cercles de Mohr représentent les contraintes appliquées sur le milieu granulaire.

Pour une meilleure résolution du problème, on définit θ l'angle (positif dans le sens inverse des aiguilles d'une montre) entre le système de coordonnées d'origine et le système incliné. Le plan de rupture soumis aux contraintes (σ_x, σ_y) est représenté sur la Figure 112.

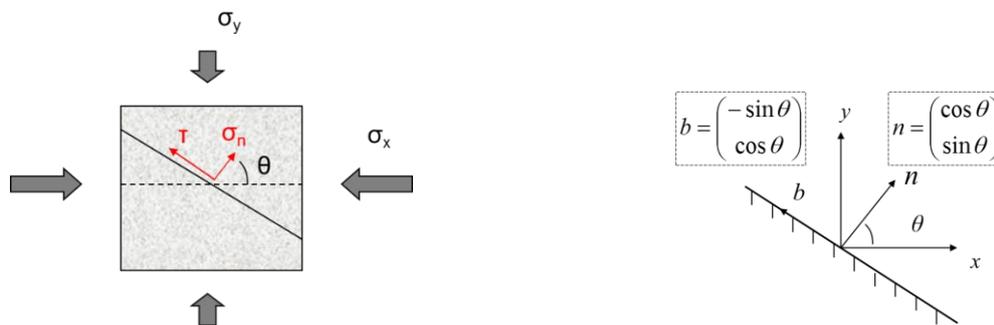


Figure 112 : Contraintes sur un plan incliné.

A partir de la Figure 112, on peut déterminer le vecteur contrainte T appliqué au milieu granulaire :

$$T = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} \cos \theta + \sigma_{xy} \sin \theta \\ \sigma_{yx} \cos \theta + \sigma_{yy} \sin \theta \end{pmatrix} \quad \text{Équation 53}$$

Le problème étant à deux dimensions, les bilans des forces projetées se font dans les directions de la contrainte normale à la surface σ_n (Équation 54) et de la contrainte tangentielle τ (Équation 55) tels qu'à l'équilibre on obtient :

○ $\sigma_n = T \cdot n$

$$\sigma_n = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} \cos \theta + \sigma_{xy} \sin \theta \\ \sigma_{yx} \cos \theta + \sigma_{yy} \sin \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix}$$

$$\sigma_n = \sigma_{xx} \cos^2 \theta + 2\sigma_{xy} \sin \theta \cos \theta + \sigma_{yy} \sin^2 \theta \quad \text{Équation 54}$$

○ $\tau = T.b$

$$\tau = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} \cos \theta + \sigma_{xy} \sin \theta \\ \sigma_{yx} \cos \theta + \sigma_{yy} \sin \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix}$$

$$\tau = -\sigma_{xx} \cos \theta \sin \theta - \sigma_{xy} \sin^2 \theta + \sigma_{xy} \cos^2 \theta + \sigma_{yy} \cos \theta \sin \theta$$

$$\tau = (\sigma_{yy} - \sigma_{xx}) \cos \theta \sin \theta + \sigma_{xy} (\cos^2 \theta - \sin^2 \theta) \quad \text{Équation 55}$$

Les identités trigonométriques suivantes permettront de modifier les expressions de σ_n et τ :

$$\cos 2\theta = \cos^2 \theta - \sin^2 \theta = 2 \cos^2 \theta - 1$$

$$\sin 2\theta = 2 \cos \theta \sin \theta$$

On peut ainsi réécrire la contrainte normale σ_n (Équation 56) et tangentielle τ (Équation 57):

$$\sigma_n = \frac{\sigma_{xx} + \sigma_{yy}}{2} + \frac{\sigma_{xx} - \sigma_{yy}}{2} \cos 2\theta + \sigma_{xy} \sin 2\theta \quad \text{Équation 56}$$

$$\tau = -\frac{\sigma_{xx} - \sigma_{yy}}{2} \sin 2\theta + \sigma_{xy} \cos 2\theta \quad \text{Équation 57}$$

En réunissant les deux équations précédentes, on obtient l'Équation 58 dans le plan (σ_n, τ) :

$$\left(\sigma_n - \frac{\sigma_{xx} + \sigma_{yy}}{2} \right)^2 + \tau^2 = \left(\frac{\sigma_{xx} - \sigma_{yy}}{2} \right)^2 + \sigma_{xy}^2 \quad \text{Équation 58}$$

Cette équation forme un cercle dans le plan (σ_n, τ) , décalé le long de l'axe σ_n , comme le montre la Figure 113. Tous les points du cercle de Mohr représentent des états de contraintes à des plans d'angles θ différents. Tracer le cercle permet de déterminer immédiatement les contraintes axiales maximales et minimales aux endroits où la contrainte de cisaillement est nulle.

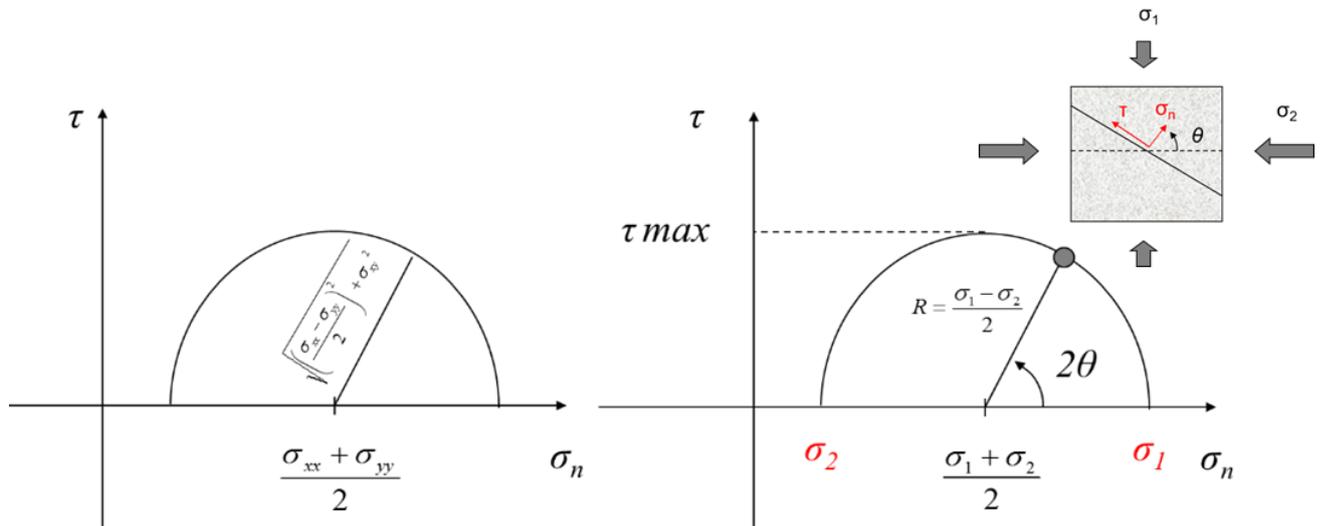


Figure 113 : Représentation graphique du cercle de Mohr et des contraintes appliquées sur le milieu granulaire.

Cette équation représente celle d'un cercle de type : $(\sigma_n - A_x)^2 + \tau^2 = R^2$ dans le repère (σ_n, τ) , on obtient ainsi le cercle de :

- Centre A $\left[\frac{\sigma_1 + \sigma_2}{2} ; 0 \right]$.
- Et de rayon R équivalent à $\frac{\sigma_1 - \sigma_2}{2}$.

ANNEXE B : TENSIOMETRE

Rappel du principe

Rappelons que la tension de surface γ (N.m⁻¹) d'un matériau est la somme de deux composantes [Fowkes, 1962] :

- La composante polaire (interaction acide-base) γ^p
- La composante dispersive (force de Van der Waals) γ^d

L'interaction d'un échantillon solide avec un liquide peut être décrite selon l'équation proposée par Owens et Wendt [Owens, 1969]. Cette équation permet de calculer l'énergie libre de surface d'un échantillon solide γ_{SV} . Thermodynamiquement, cette équation peut être interprétée comme suit : chaque substance cherche l'énergie la plus basse possible. Cette énergie dépend de l'énergie nécessaire pour rompre séparément les liaisons de chaque phase et donc les interactions entre elles [Owens, 1969 - Rudawska, 2009].

$$\gamma_{SL} = \gamma_{SV} + \gamma_{LV} - 2 \left[\sqrt{(\gamma_{SV}^d \gamma_{LV}^d)} + \sqrt{(\gamma_{SV}^p \gamma_{LV}^p)} \right] \quad \text{Équation 59}$$

Avec :

γ_{SL} l'énergie de surface de l'interface liquide solide (mJ.m⁻²),

γ_{SV} l'énergie de surface de la vapeur solide (mJ.m⁻²),

γ_{LV} l'énergie de surface de la vapeur liquide (mJ.m⁻²).

En combinant l'Équation 59 avec l'équation de Young, l'énergie de surface d'un échantillon solide (γ_{SV}) peut être déterminée avec l'Équation 60 :

$$\frac{\gamma_{LV}(\cos \theta + 1)}{2 \sqrt{\gamma_{LV}^d}} = \sqrt{\gamma_{SV}^p} \cdot \sqrt{\frac{\gamma_{LV}^p}{\gamma_{LV}^d}} + \sqrt{\gamma_{SV}^d} = \mathbf{m} \cdot \sqrt{\frac{\gamma_{LV}^p}{\gamma_{LV}^d}} + \mathbf{p} \quad \text{Équation 60}$$

Où θ est l'angle de contact.

D'après cette dernière équation, les deux paramètres à déterminer sont l'énergie de surface dispersive du solide γ_{SV}^d et l'énergie de surface polaire du solide γ_{SV}^p .

Comme expliqué dans le Chapitre 1, la méthode de Washburn, connue sous le nom de méthode de montée capillaire, permet de déterminer l'angle de contact en analysant la remontée capillaire du liquide dans la poudre.

Mode opératoire

Le tensiomètre Krüss est un équipement qui permet de déterminer l'énergie de surface libre de la poudre avec la méthode de montée capillaire.

Des tubes de verre de Krüss d'un diamètre de 1 cm et munis d'un filtre au fond ont été utilisés dans ces expériences. Le filtre utilisé est en papier et est interchangeable. Chaque tube contient une même masse de poudre tassée afin d'atteindre une porosité constante et donc un conditionnement correct. Pour le tassement, on effectue des tapotements réguliers pendant 2 minutes (attention cette méthode est dépendante de l'opérateur). Une fois le lit de poudre tassée obtenu, le tube est attaché au tensiomètre. En fonction du paramètre à déterminer, un liquide spécifique est placé en dessous du tube. Puis, lors de la mise en contact du tube avec le liquide, ce dernier va pénétrer dans le lit de poudre et l'évolution de la masse de liquide est mesurée par le tensiomètre d'où le nom de montée capillaire.

Afin de déterminer l'angle de contact θ , il est nécessaire de déterminer la constante de capillarité (C_{CAP}) caractéristique du lit de poudre. Pour cela, on utilise un premier liquide, l'heptane, qui mouille entièrement la poudre : dans ce cas l'angle de contact peut être supposé nul ($\cos \theta = 1$). Connaissant la constante C_{CAP} et en utilisant l'eau et le diiodométhane dont on connaît les composantes dispersives et polaires, on détermine l'angle de contact θ . Après avoir déterminé C_{CAP} et θ d'après l'Équation 60, en

traçant $\frac{\gamma_{LV}(\cos \theta + 1)}{2\sqrt{\gamma_{LV}^d}}$ en fonction de $\sqrt{\frac{\gamma_{LV}^p}{\gamma_{LV}^d}}$ on détermine l'énergie de surface dispersive du solide γ_{SV}^d avec

l'ordonnée à l'origine p et l'énergie de surface polaire du solide γ_{SV}^p avec le coefficient directeur m (Figure 114). On peut ainsi déterminer l'énergie libre totale de la surface de la poudre, en additionnant les composantes dispersives et polaires de la poudre.

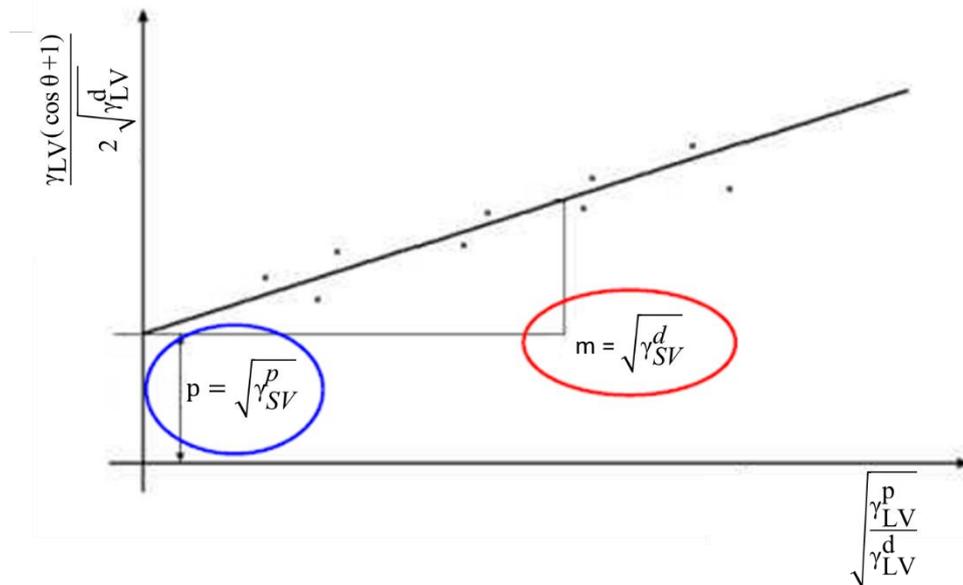


Figure 114 : Détermination graphique de l'énergie de surface dispersive du solide γ_{SV}^d et l'énergie de surface polaire du solide γ_{SV}^p .

Toutes les analyses ont été effectuées à une température ambiante. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 18. On négligera la tension de surface polaire, on prendra en compte la tension de surface dispersive qui est plus représentative du matériau et permet la détermination de la constante de Hamaker pour une poudre donnée [Castellanos, 2005]. Pour toutes les poudres composées majoritairement d'UO₂ (UO₂ VS et UO₂ VH), on peut voir que la tension de surface dispersive est similaire (environ 24 mJ.m⁻²) à la différence de la poudre constituée d'U₃O₈ VS, qui correspond à une poudre de nature différente que l'UO₂, dont la tension de surface dispersive est plus faible (environ 13 mJ.m⁻²).

Tableau 18 : Résultats obtenus au tensiomètre pour différentes poudres d'oxyde d'uranium.

Poudre	Tension de surface (mJ.m ⁻²)	Tension de surface dispersive (mJ.m ⁻²)	Tension de surface polaire (mJ.m ⁻²)
U ₃ O ₈ VS	21,4	13,3	8,1
UO ₂ VS	57,9	24,6	33,3
UO ₂ VH	38	23,6	14,4

Cette étude permet de confirmer que la nature de la poudre influence les interactions physico-chimiques entre les particules. C'est un point essentiel à prendre en compte lors d'étude de poudres de natures différentes (compositions chimiques différentes).

GLOSSAIRE

Notations

A0 : Poudre avec 0% m de fines

AS0 : Poudre sphéroïdisée 0% m de fines

B10 : Poudre avec 10% m de fines

BAG : Boite à Gants

C30 : Poudre avec 30% m de fines

D50 : Poudre avec 50% m de fines

E100 : Poudre avec 100% m de fines

ES100 : Poudre sphéroïdisée avec 100% m de fines

HR : Humidité relative

MEB : Microscope Electronique à Balayage

N_p : Nombre de coordination

PB : Poudre broyée

PBS : Poudre broyée sphéroïdisée

UO₂ : Dioxyde d'uranium

VdW: Van der Waals

VFR : Variable Flow Rate

VH : Voie humide

VS : Voie sèche

Grandeurs

AIF : Angle de frottement interne (°)

AIFE : Angle de frottement interne effectif (°)

AIFS : Angle de frottement interne stationnaire (°)

BFE : Basic Flow Energy (J)
C : Cohésion (Pa)
CBD : Compressibility Bulk Density (g.m^{-3})
F : Force (N)
FH : Force de cohésion (N)
FI : Facteur d'écoulement
FRI : Flow Rate Index
k : Perméabilité (m^2)
m : Masse (g)
R : Rayon de la particule (m)
Rt : Résistance à la traction (m)
SE : Specific Energy (J.g^{-1})
SI : Stability Index
V : Volume (m^3)
 γ : Tension de surface (J.m^{-2})
 ε : Porosité
 κ : Coefficient de déformation élastique-plastique
 ρ : Masse volumique (g.m^{-3})
 σ : Contrainte normale (Pa)
 σ_1 : Contrainte de consolidation majeure (Pa)
 σ_c : Contrainte de cohésion (Pa)
 σ_{pre} : Contrainte de préconsolidation (Pa)
 τ : Contrainte de cisaillement (Pa)
 ΔP : Perte de charge (Pa)

Étude de l'influence des caractéristiques physiques des poudres UO₂ sur leurs propriétés rhéologiques

Le combustible nucléaire pressenti pour les réacteurs de quatrième génération à neutrons rapides refroidis au sodium présente différentes caractéristiques qui le différencient du combustible utilisé dans les Réacteurs à Eau Pressurisée, notamment : une structure homogène (U,Pu)O₂, une géométrie annulaire et une forte teneur en PuO₂. Le procédé de fabrication des pastilles de combustible comprend la réalisation d'un mélange UO₂/PuO₂ par cobroyage suivie d'une mise en forme par pressage. Cependant, le mélange UO₂/PuO₂ cobroyé n'a pas les propriétés adaptées à un remplissage reproductible des moules de presses annulaires. Il s'agit donc d'identifier une opération intermédiaire, entre le cobroyage et la mise en forme, pour faciliter le remplissage des moules. Pour orienter le choix de cette opération, une étude à effets séparés a été réalisée sur des granulés d'UO₂, considérés représentatifs de la poudre broyée en première approche. Les caractéristiques physiques cibles qui ont été étudiées sont la granulométrie et la morphologie (état de surface) de la poudre. Ainsi, des mélanges de granulés de tailles différentes ont été caractérisés pour évaluer l'influence de la quantité de fines (particules inférieures à 100 µm) sur les propriétés rhéologiques. En parallèle une intercomparaison entre les cellules de cisaillement de volumes et de types différents (Cellule de Schulze et FT4) a été effectuée afin d'avoir un bon compromis entre la quantité de poudre utilisée et la qualité des résultats. Un premier objectif a été de déterminer quelle proportion de fines est acceptable. Par ailleurs, pour évaluer l'effet de l'état de surface des granulés, une opération de type sphéroïdisation a été réalisée. Elle conduit à modifier la rugosité des granulés. Il a été montré que le taux de fines et la rugosité de surface sont deux paramètres influents qui permettent de modifier les propriétés rhéologiques. Notamment dans le cadre de ces travaux, la présence de fines de moins de 100 µm ne semble pas avoir d'impact négatif sur la mise en écoulement jusqu'à une proportion proche de 10%_m. Par contre d'autres propriétés telle que la perméabilité sont sensibles à la proportion de fines même en dessous de 10%_m. Une opération de sphéroïdisation permet d'améliorer les propriétés de mise en écoulement de la poudre même au-delà de 10%_m de fines. Ces résultats font apparaître deux modes d'action possibles qui sont la sélection granulométrique et la sphéroïdisation, cette dernière semblant la plus adaptée pour notre application.

Mots clés : remplissage, poudre, caractéristiques physiques, écoulement, cisaillement, rhéologie, uranium