



HAL
open science

Étude par analyse d'images des milieux granulaires : Caractérisation des contacts et de l'homogénéité

Jean-Michel Missiaen

► **To cite this version:**

Jean-Michel Missiaen. Étude par analyse d'images des milieux granulaires : Caractérisation des contacts et de l'homogénéité. Génie des procédés. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1989. Français. NNT : 1989INPG4202 . tel-00845161

HAL Id: tel-00845161

<https://theses.hal.science/tel-00845161>

Submitted on 16 Jul 2013

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.

THESE

présentée par

Jean-Michel MISSIAEN

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

ET DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE

(Spécialité : GENIE DES PROCEDES)

**ETUDE PAR ANALYSE D'IMAGES DES MILIEUX GRANULAIRES :
CARACTERISATION DES CONTACTS ET DE L'HOMOGENEITE**

soutenue à SAINT - ETIENNE le 16 octobre 1989

composition du jury :

Messieurs

D. BIDEAU
M. COSTER

Rapporteurs

Madame
Messieurs

J.M. CHAIX
M. SOUSTELLE
G. THOMAS
C. VOILLOT

Examineurs

Thèse préparée au département de Chimie - Physique des Processus Industriels

THESE

présentée par

Jean-Michel MISSIAEN

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

**DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE
ET DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE**

(Spécialité : GENIE DES PROCEDES)

**ETUDE PAR ANALYSE D'IMAGES DES MILIEUX GRANULAIRES :
CARACTERISATION DES CONTACTS ET DE L'HOMOGENEITE**

soutenue à SAINT - ETIENNE le 16 octobre 1989

composition du jury :

Messieurs	D. BIDEAU M. COSTER	Rapporteurs
Madame Messieurs	J.M. CHAIX M. SOUSTELLE G. THOMAS C. VOILLOT	Examineurs

Thèse préparée au département de Chimie - Physique des Processus Industriels

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE GRENOBLE

46 avenue F. Viallet - 38031 GRENOBLE Cedex -

Tél : 76.57.45.00

ANNEE UNIVERSITAIRE 1989

Président de l'Institut
Monsieur Georges LESPINARD

PROFESSEURS DES UNIVERSITES

ENSERG	BARIBAUD	Michel	ENSPG	JOST	Rémy
ENSIEG	BARRAUD	Alain	ENSPG	JOUBERT	Jean-Claude
ENSPG	BAUDELET	Bernard	ENSIEG	JOURDAIN	Geneviève
INPG	BEAUFILS	Jean-Pierre	ENSIEG	LACOUME	Jean-Louis
ENSERG	BLIMAN	Samuel	ENSIEG	LADET	Pierre
ENSHMG	BOIS	Philippe	ENSHMG	LESIEUR	Marcel
ENSEEG	BONNETAIN	Lucien	ENSHMG	LESPINARD	Georges
ENSPG	BONNET	Guy	ENSPG	LONGUEUE	Jean-Pierre
ENSIEG	BRISSONNEAU	Pierre	ENSHMG	LORET	Benjamin
IUFA	BRUNET	Yves	ENSEEG	LOUCHET	François
ENSHMG	CAILLERIE	Denis	ENSEEG	LUCAZEAU	Guy
ENSPG	CAVAIGNAC	Jean-François	ENSIEG	MASSE	Philippe
ENSPG	CHARTIER	Germain	ENSIEG	MASSELOT	Christian
ENSERG	CHENEVIER	Pierre	ENSIMAG	MAZARE	Guy
UFR PGP	CHERADAME	Hervé	ENSIMAG	MOHR	Roger
ENSIEG	CHERUY	Ariette	ENSHMG	MOREAU	René
ENSERG	CHOVET	Alain	ENSIEG	MORET	Roger
ENSERG	COHEN	Joseph	ENSIMAG	MOSSIERE	Jacques
ENSEEG	COLINET	Catherine	ENSHMG	OBLED	Charles
ENSIEG	CORNUT	Bruno	ENSEEG	OZIL	Patrick
ENSIEG	COULOMB	Jean-Louis	ENSEEG	PAULEAU	Yves
ENSERG	COUMES	André	ENSIEG	PERRET	Robert
ENSIMAG	CROWLEY	James	ENSHMG	PIAU	Jean-Michel
ENSHMG	DARVE	Félix	ENSERG	PIC	Etienne
ENSIMAG	DELLA DORA	Jean-François	ENSIMAG	PLATEAU	Brigitte
ENSERG	DEPEY	Maurice	ENSERG	POUPOT	Christian
ENSPG	DEPORTES	Jacques	ENSEEG	RAMEAU	Jean-Jacques
ENSEEG	DEROO	Daniel	ENSPG	REINISCH	Raymond
ENSEEG	DESRE	Pierre	UFR PGP	RENAUD	Maurice
ENSERG	DOLMAZON	Jean-Marc	UFR PGP	ROBERT	André
ENSEEG	DURAND	Francis	ENSIMAG	ROBERT	François
ENSPG	DURAND	Jean-Louis	ENSIEG	SABONNADIERE	Jean-Claude
ENSHMG	FAUTRELLE	Yves	ENSIMAG	SAUCIER	Gabriele
ENSIEG	FOGGIA	Albert	ENSPG	SCHLENKER	Claire
ENSIMAG	FONLUPT	Jean	ENSPG	SCHLENKER	Michel
ENSIEG	FOULARD	Claude	ENSERG	SERMET	Pierre
UFR PGP	GANDINI	Alessandro	UFR PGP	SILVY	Jacques
ENSPG	GAUBERT	Claude	ENSHMG	SIRIEYS	Pierre
ENSERG	GENTIL	Pierre	ENSEEG	SOHM	Jean-Claude
ENSIEG	GENTIL	Sylviane	ENSIMAG	SOLER	Jean-Louis
IUFA	GREVEN	Hélène	ENSEEG	SOUQUET	Jean-louis
ENSIEG	GUEGUEN	Claude	ENSHMG	TROMPETTE	Philippe
ENSERG	GUERIN	Bernard	ENSPG	VINCENT	Henri
ENSEEG	GUYO T	Pierre	ENSERG	ZADWORN Y	François
ENSIEG	IVANES	Marcel			
ENSIEG	JAUSSAUD	Pierre			

SITUATION PARTICULIERE

PROFESSEURS D'UNIVERSITE

DETACHEMENT

ENSIMAG	LATOMBE	J.Claude	Détachement.....	21/10/1989
ENSHMG	PIERRARD	J.Marie	Détachement.....	30/04/1989
ENSIMAG	VEILLON	Gérard	Détachement.....	30/09/1990
ENSIMAG	VERJUS	J.Pierre	Détachement.....	30/09/1989
ENSPG	BLOCH	Daniel	Récteur à c/.....	21/12/1988

SURNOMBRE

INPG	CHIAVERINA	Jean		30/09/1989
ENSHMG	BOUVARD	Maurice.. ..		30/09/1991
ENSEEG	PARIAUD	J.Charles		30/09/1991

PERSONNES AYANT OBTENU LE DIPLOME
d'habilitation à diriger des recherches

BECKER	M.	DANES	F.	GHIBAUDO	G.	MULLER	J.
BINDER	Z.	DEROO	D.	HAMAR	S.	NGUYEN TRONG	B.
CHASSERY	J.M.	DIARD	J.P.	HAMAR	R.	NIEZ	J.J.
CHOLLET	J.P.	DION	J.M.	LACHENAL	D.	PASTUREL	A.
COEY	J.	DUGARD	L.	LADET	P.	PLA	F.
COLINET	C.	DURAND	M.	LATOMBE	C.	ROGNON	J.P.
COMMAULT	C.	DURAND	R.	LE HUY	H.	ROUGER	J.
CORNUEJOLS	G.	GALERIE	A.	LE GORREC	B.	TCHUENTE	M.
COULOMB	J.L.	GAUTHIER	J.P.	MADAR	R.	VINCENT	H.
COURNIL	M.	GENIL	S.	MEUNIER	G.	YAVARI	A.R.
DALARD	F.						

CHERCHEURS DU C.N.R.S.

DIRECTEURS DE RECHERCHE CLASSE 0

LANDAU	Ioan
NAYROLLES	Bernard

DIRECTEURS DE RECHERCHE 1ère CLASSE

ANSARA	Ibrahim	KRAKOWIAK	Sacha
CARRE	René	LEPROVOST	Christian
FRUCHARD	Robert	VACHAUD	Georges
HOPFINGER	Emile	VERJUS	Jean-Pierre
JORRAND	Philippe		

DIRECTEURS DE RECHERCHE 2ème CLASSE

ALEMANY	Antoine	JOUD	Jean-Charles
ALLIBERT	Colette	KAMARINOS	Georges
ALLIBERT	Michel	KLEITZ	Michel
ARMAND	Michel	KOFMAN	Walter
AUDIER	Marc	LEJEUNE	Gérard
BERNARD	Claude	MADAR	Roland
BINDER	Gilbert	MERMET	Jean
BONNET	Roland	MICHEL	Jean-Marie
BORNARD	Guy	MEUNIER	Jacques
CAILLER	Marcel	PEUZIN	Jean-Claude
CALMET	Jacques	PIAU	Monique
CHATILLON	Christian	RENOUARD	Dominique
CLERMONT	Jean-Robert	SENATEUR	Jean-Pierre
COURTOIS	Bernard	SIFAKIS	Joseph
DAVID	René	SIMON	Jean-Paul
DION	Jean-Michel	SUERY	Michel
DRIOLE	Jean	TEODOSIU	Christian
DURAND	Robert	VAUCLIN	Michel
ESCUDIER	Pierre	VENNEREAU	Pierre
EUSTATHOPOULOS	Nicolas	WACK	Bernard
GARNIER	Marcel	YONNET	Jean-Paul
GUELIN	Pierre		

PERSONNALITES AGREEES A TITRE PERMANENT A DIRIGER DES TRAVAUX DE RECHERCHE
(DECISION DU CONSEIL SCIENTIFIQUE)

<u>ENSEEG</u>	HAMMOU MARTIN-GARIN SARRAZIN SIMON	Abdelkader Régina Pierre Jean-Paul
---------------	---	---

<u>ENSERG</u>	BOREL	Joseph
---------------	-------	--------

<u>ENSIEG</u>	DESCHIZEAUX GLANGEAUD PERARD REINISCH	Pierre François Jacques Raymond
---------------	--	--

<u>ENSHMG</u>	ROWE	Alain
---------------	------	-------

<u>ENSIMAG</u>	COURTIN	Jacques
----------------	---------	---------

<u>C.E.N.G</u>	CADET COEURE DELHAYE DUPUY JOUVE NICOLAU NIFENECKER PERROUD PEUZIN TAIEB VINCENDON	Jean Philippe Jean-Marc Michel Hubert Yvan Hervé Paul Jean-Claude Maurice Marc
----------------	--	--

Laboratoire extérieurs :

<u>C.N.E.T.</u>	DEVINE GERBER MERCKEL PAULEAU	Rodericq Roland Gérard Yves
-----------------	--	--------------------------------------



ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT ETIENNE

Directeur	:	M. Philippe	SAINTE RAYMOND
Directeur des Etudes	:	M. Jean	CHEVALIER
Directeur des Recherches	:	M. François	MUDRY
Secrétaire Général	:	M. J. Claude	PLATEK

PROFESSEURS DE 1ère CATEGORIE

MM.	COINDE	Alexandre	Economie
	FORMERY	Philippe	Mathématiques Appliquées
	GOUX	Claude	Métallurgie
	LE COZE	Jean	Matériaux
	LOWYS	Jean-Pierre	Physique
	MATHON	Albert	Gestion
	PERRIN	Michel	Géologie
	PEROCHE	Bernard	Informatique
	PLA	Jean-Marie	Mathématiques
	RIEU	Jean	Mécanique-Résistance des Matériaux
	SOUSTELLE	Michel	Chimie
	VERCHERY	Georges	Mécanique et Matériaux

PROFESSEURS DE 2ème CATEGORIE

MM.	LADET	Pierre	Automatique
	TOUCHARD	Bernard	Physique Industrielle

DIRECTEUR DE RECHERCHE

M.	LESBATS	Pierre	Métallurgie
----	---------	--------	-------------

MAITRES DE RECHERCHE

MM.	BISCONDI	Michel	Métallurgie
	COURNIL	Michel	Chimie
	DAVOINE	Philippe	Hydrogéologie
	DRIVER	Julian	Matériaux
Mle	FOURDEUX	Angeline	Matériaux
MM.	GIRARDOT	Jean-Jacques	Informatique
	GUILHOT	Bernard	Chimie
	KOBYLANSKI	André	Métallurgie
	LALAUZE	René	Chimie
	LANCELOT	Francis	Génie Electrochimique-Biotechnologie
	MONTHEILLET	Franck	Matériaux
	THEVENOT	François	Génie des Matériaux
	THOMAS	Gérard	Chimie
	TRAN MINH	Cahn	Génie Electrochimique-Biotechnologie

PERSONNALITE HABILITEE A DIRIGER LES TRAVAUX DE RECHERCHE.

M.	MAGNIN	Thierry	Matériaux
----	--------	---------	-----------

PROFESSEUR A L'U.E.R. DE SCIENCES DE SAINT-ETIENNE

M.	VERGNAUD	Jean-Marie	Chimie des Matériaux
----	----------	------------	----------------------

Je remercie toutes les personnes qui m'ont aidé dans ce travail, ainsi que les membres du jury, qui ont bien voulu accepter de l'examiner et de le juger.

SOMMAIRE

	page
INTRODUCTION	1
1^{ère} PARTIE : ETUDES BIBLIOGRAPHIQUES ET MODELISATION	3
I. L'EMPILEMENT DE GRAINS IDENTIQUES	5
A. PARAMETRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT	5
1. Compacité - Porosité	
2. Paramètres décrivant le voisinage des grains	
a. Coordinance	
b. Paramètres décrivant le proche voisinage des grains	
c. Fonction de distribution radiale	
3. Paramètres décrivant la géométrie du milieu poreux	
a. Distribution de taille des pores obtenue par un découpage	
b. Distribution de taille des pores obtenue par ouverture	
c. Paramètre de taille globale : le rayon hydraulique	
4. Encombrement d'un grain	
B. ETUDE D'UN CAS IDEAL : L'EMPILEMENT ALEATOIRE DE SPHERES DE MEME RAYON R	10
1. Influence du mode de construction sur la compacité de l'empilement	
a. Equilibre mécanique d'un empilement de sphères	
α . Empilement construit grain par grain sous pesanteur	
β . Empilement construit collectivement	
b. Empilements de référence	
α . L'empilement de compacité minimale ou empilement très peu dense	
β . L'empilement construit grain par grain sous pesanteur	
γ . L'empilement de compacité maximale ou empilement dense	
c. Description des empilements obtenus lors de processus de mélangeage ou de transvasement - Optimisation de la compacité	
2. Etude de quelques autres caractéristiques de l'empilement	
a. Coordinance	
α . L'empilement construit grain par grain	
β . L'empilement très peu dense	
γ . De l'empilement construit grain par grain à l'empilement dense - Distribution de coordinances	

- b. Analyse de voisinage par partition
 - α . Plans radicaux
 - β . Partition par zones d'influence
- c. Fonction de distribution radiale
- d. Géométrie du milieu poreux
 - α . Distribution de taille des pores obtenue par un découpage
 - β . Distribution de taille des pores obtenue par ouverture
- e. Distribution de la porosité locale

C. LES EMPILEMENTS DE GRAINS REELS - ECARTS AU MODELE IDEAL 32

- 1. Effet de paroi
- 2. Effet d'une dispersion de taille des sphères
- 3. Effet de la non sphéricité des grains
- 4. Inhomogénéité - Anisotropie dans les empilements de grains

II. L'EMPILEMENT DE GRAINS DISCERNABLES 39

A. PARAMETRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT 39

- 1. Compacité C - Porosité \emptyset
- 2. Paramètres décrivant le voisinage des grains
 - a. Coordinances
 - b. Fractions de contacts
 - c. Analyse par partition
 - d. Fonction de distribution radiale
- 3. Paramètres décrivant la géométrie du milieu poreux
- 4. Encombrement d'un grain

B. HOMOGENEITE DU MELANGE 41

B₁ Analyse de l'homogénéité d'un mélange

- 1. Analyse macroscopique de l'homogénéité - Les concepts de l'analyse
 - a. L'intensité de ségrégation
 - b. L'échelle de ségrégation

- 2. **Analyse microscopique de l'homogénéité**
 - a. L'intensité de ségrégation
 - α . Théorie de Lacey
 - β . Extensions de la théorie de Lacey
 - b. L'échelle de ségrégation
 - 3. **Vers une analyse intrinsèque de l'homogénéité ?**
 - a. Corrélogrammes de la fonction indicatrice
 - b. Fonction de distribution radiale
- B₂ Etude phénoménologique de l'homogénéisation d'un mélange granulaire**
- 1. Les mélangeurs par agitation
 - 2. Les mélangeurs statiques
- C. ETUDE D'UN CAS IDEAL : LE MELANGE BINAIRE HOMOGENE DE SPHERES - INFLUENCE DES RAPPORTS DE TAILLE ET DE LA COMPOSITION SUR LES PARAMETRES DEFINIS PLUS HAUT** 55
- 1. **Compacité - Porosité**
 - a. Calcul de géométrie statistique
 - b. Calcul fondé sur l'encombrement d'un grain dans l'empilement
 - α . Les limites de variation du volume granulaire apparent
 - β . Les mélanges réels
 - c. Analyse critique des modèles
 - 2. **Coordinances**
 - a. Coordinance moyenne globale
 - b. Coordinances moyennes de chaque espèce et fractions de contacts
 - α . Calcul de géométrie statistique
 - β . Calculs fondés sur l'encombrement d'un grain dans un empilement
 - β .1 Modèle de Bideau (1983)
 - β .2 Modèle de Suzuki et Oshima (1983)
 - c. Analyse critique des modèles
 - α . Coordinances moyennes de chaque espèce
 - β . Fractions de contacts
 - 3. **Nombres de contacts par unité de volume**
 - 4. **Aires de séparation par zones d'influence**
- D. LES EMPILEMENTS DE GRAINS REELS - ECARTS AU MODELE IDEAL** 73
- 1. **Effets d'une inhomogénéité de composition**

2.	Effets de la non-sphéricité des grains	
a.	Grains de forme anisotrope	
b.	Grains de forme polyédrique	
III.	ANALYSE PAR SIMULATION NUMERIQUE DES EFFETS D'UN MODE DE CONSTRUCTION COLLECTIF SUR LES PARAMETRES DE L'EMPILEMENT	77
A.	ALGORITHME DE LA SIMULATION	77
B.	PRINCIPE DES MESURES EFFECTUEES	80
1.	Mesure de la compacité	
2.	Mesure des coordinances	
C.	ANALYSE D'UN EMPILEMENT DE DISQUES IDENTIQUES - INFLUENCE DES PARAMETRES DE LA SIMULATION	83
1.	Influence du pas du déplacement	
2.	Influence de la compacité initiale pour un empilement construit collectivement - L'empilement de compacité minimale	
D.	ANALYSE D'UN MELANGE BINAIRE DE DISQUES - INFLUENCE DU RAPPORT DE TAILLE ET DE LA COMPOSITION	88
1.	Compacité et coordinance moyenne globale	
2.	Coordinances moyennes de chaque espèce	
3.	Fractions de contacts	
II ^{ème}	PARTIE : ETUDE D'UN EMPILEMENT DE GRAINS DE WO ₃ ET DE NiO	93
IV.	LES METHODES D'ANALYSE	97
A.	L'ANALYSE D'IMAGES	97
1.	Notions de stéréologie	
a.	Relations fondamentales de la stéréologie	
α.	Stéréologie d'un ensemble de dimension 3	
β.	Stéréologie des surfaces	

- γ. Stéréologie des lignes
 - b. Application de la stéréologie à l'analyse texturale en section d'un ensemble Y
 - α. Analyse locale
 - α.1 Y a une structure isotrope, aléatoire et homogène
 - β.2 Y n'a pas une structure isotrope, aléatoire et homogène
 - β. Analyse globale
 - c. Application de la stéréologie à l'analyse individuelle en section d'objets tridimensionnels
 - d. Extensions
 - α. Paramètres stéréologiques obtenus par projection
 - β. Estimation des paramètres d'une distribution de taille pondérée en volume
 - e. Limites de la stéréologie
- 2. L'analyse automatique d'images**
- a. Traitement de l'image numérique
 - α. Filtrage par produit de convolution
 - α.1 Filtres passe-bas
 - α.2 Filtres passe-haut
 - β. Filtrage par transformation morphologique
 - β.1 Filtres morphologiques
 - β.2 Filtres passe-haut par transformation morphologique
 - b. Seuillage
 - c. Traitement de l'image binaire
 - α. Opérateurs logiques
 - β. Opérateurs morphologiques
 - d. Mesures sur l'image binaire
- 3. Mise en oeuvre de l'analyse des mélanges WO_3 - NiO**
- a. Mode opératoire général
 - b. Acquisition des images
- 4. Principe des mesures effectuées**
- a. Compacité - Fractions volumiques
 - b. Mesures granulométriques
 - α. Granulométrie par ouverture linéaire
 - β. Granulométrie par ouverture bidimensionnelle
 - γ. Granulométrie par la méthode de Miles
 - c. Aires de séparation par zones d'influence
 - α. Approche stéréologique
 - β. Etude par analyse d'images

d.	Analyse de l'homogénéité par la méthode de la distribution de la composition numérique	
α.	Approche générale	
β.	Etude par analyse d'images	
5.	Analyse critique de quelques résultats - Recherche des meilleures conditions opératoires et limites pratiques de validité des courbes S (d)	
a.	Influence de la résolution de l'image	
b.	Etude des courbes S (d)	
B.	L'ANALYSE THERMOMAGNETIQUE	134
1.	Principe de l'analyse	
2.	Mode opératoire	
V.	ANALYSE DE MELANGES GRANULAIRES DE WO₃ ET NiO	135
A.	ETUDE D'UN EMPILEMENT DE GRAINS "IDENTIQUES" DE WO₃ - INFLUENCE DU MODE DE CONSTRUCTION SUR LES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT	135
1.	L'empilement lâche	
a.	Compacité	
b.	Analyse des contacts	
2.	L'empilement obtenu par agitation à sec	
a.	Compacité	
b.	Analyse des contacts	
3.	L'empilement obtenu par agitation en humide	
a.	Compacité	
b.	Analyse des contacts	
4.	Effet d'une vibration sur un empilement lâche	
-	Conclusion de l'étude du mode de construction	
B.	ETUDE D'UN MELANGE BINAIRE DE GRAINS DE WO₃ ET DE NiO	137
1.	Influence des conditions de mélangeage sur les paramètres d'un mélange binaire de grains de même diamètre	138
a.	Mélangeage par agitation à sec	
α.	Etude préliminaire	

- β. Evolution de quelques caractéristiques du mélange avec le temps de mélangeage
 - β.1 Etude cinétique
 - β.2 Etude par analyse d'image
 - Analyse de l'homogénéité
 - Analyse des aires de séparation
 - Analyse granulométrique
 - Analyse de la compacité et des fractions volumiques
 - β.3 Interprétation des résultats
- b. Mélangeage par agitation en humide
 - α. Evolution de quelques caractéristiques du mélange avec le temps de mélangeage
 - Analyse de l'homogénéité
 - Analyse des aires de séparation
 - Analyse granulométrique
 - Analyse de la compacité et des fractions volumiques
 - β. Interprétation des résultats
- c. Conclusion de l'étude des conditions de mélangeage

2. Etude par analyse d'images de l'influence des diamètres des grains sur les caractéristiques d'un mélange binaire de grains réalisé par agitation à sec

156

- a. Introduction
- b. Etude expérimentale
 - α. Conditions de l'étude
 - β. Résultats
 - Analyse de l'homogénéité
 - Analyse granulométrique
 - Analyse de la compacité et des fractions volumiques
 - Analyse des aires de séparation et des nombres de contacts
 - Analyse des aires de contact
- c. Conclusion de l'étude des mélanges binaires

CONCLUSION

169

ANNEXES

ANNEXE 1 : PARTITION D'UN EMPILEMENT	171
a. Polyèdres de coordinances	
b. Partition par zones d'influence	
c. Partition de Voronoï	
d. Plans radicaux	
e. Graphe de Delaunay	
ANNEXE 2 : CALCUL DE L'AIRES ELEMENTAIRE DE SEPARATION PAR ZONES D'INFLUENCE A UNE DISTANCE d POUR 2 SPHERES DE RAYON R_1 ET R_2 EN CONTACT	175
ANNEXE 3 : LES ELEMENTS D'ECHANTILLONNAGE EN STEREOLOGIE	177
1. Section I.U.A.	
2. Intercept linéaire I.U.A.	
3. Point uniforme et aléatoire	
ANNEXE 4 : LA MORPHOLOGIE MATHEMATIQUE	179
A. TRANSFORMATIONS MORPHOLOGIQUES D'UNE IMAGE BINAIRE	
1. Quelques définitions	
2. L'érosion, la dilatation et quelques autres...	
3. L'amincissement et l'épaississement	
4. La transformation conditionnelle	
5. La transformation géodésique	
B. TRANSFORMATIONS MORPHOLOGIQUES D'UNE IMAGE EN NIVEAUX DE GRIS	
1. L'érosion, la dilatation et quelques autres...	
2. L'amincissement, l'épaississement	
ANNEXE 5 : GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE	193
A. PRINCIPE GENERAL DE L'ANALYSE GRANULOMETRIQUE	
1. La distribution en nombre	
2. La distribution en mesure	
B. GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE	
1. Granulométrie par ouverture linéaire	
2. Granulométrie par ouverture bidimensionnelle	

NOTATIONS

A. ACQUISITION DES IMAGES

1. Acquisition
2. Correction de l'image avec la souris
3. Correction de l'image inverse avec la souris
4. Segmentation avec la souris
5. Elimination d'objets avec la souris
6. Elimination automatique de petits objets
7. Fermeture

**B. ANALYSE DE LA DISTRIBUTION DES INTERCEPTS
LINEAIRES**

**C. MESURE GRANULOMETRIQUE PAR LA METHODE
DE MILES**

**D. AIRES DE SEPARATION PAR ZONES D'INFLUENCE
A LA DISTANCE d**

**E. ANALYSE DE LA DISTRIBUTION DE LA COMPOSITION
NUMERIQUE**

**ANNEXE 7 : ANALYSE STATISTIQUE DE LA DISTRIBUTION DE
LA COMPOSITION NUMERIQUE DE PRELEVEMENTS
A NOMBRE DE PARTICULES CONSTANT N**

217

**A. CALCUL DES VARIANCES DES MESURES POUR UN
MELANGE HOMOGENE**

1. Variance de $N_p(N_2)$
2. Variance de $\sigma^2(n_2)$

B. ANALYSE STATISTIQUE

1. de $\sigma^2(n_2)$
2. de $N_p(N_2)$

NOTATIONS

221

GLOSSAIRE

225

BIBLIOGRAPHIE

227

INTRODUCTION

L'étude des empilements aléatoires de particules a des applications dans différents domaines de la science. En physique fondamentale, d'abord, puisqu'elle sert à modéliser la structure des liquides (Bernal 1964) ou des métaux et alliages métalliques amorphes (Finney 1977). En physico-chimie du solide également, puisqu'elle peut être utile à la compréhension des propriétés des milieux granulaires non consolidés.

L'étude des propriétés de tels milieux a elle-même de nombreuses applications. Suivant le type de propriété étudiée, on aura besoin de connaître telle ou telle caractéristique de l'empilement :

- les caractéristiques liées à la géométrie du milieu poreux intergranulaire contrôlent l'écoulement d'un fluide dans ce milieu et interviennent dans des applications aussi diverses que l'extraction des pétroles, la chromatographie, la filtration des liquides, la réaction d'un fluide avec un solide divisé... Elles influent également sur la conductivité (thermique ou électrique) d'un fluide placé dans l'espace poreux.
- les caractéristiques liées à l'arrangement des grains dans l'empilement seront importantes pour comprendre la cinétique d'une réaction solide-solide ou du frittage d'une poudre ; pour étudier la percolation des mélanges de grains conducteurs et de grains isolants, de grains durs et de grains mous, etc... ; pour expliquer les propriétés mécaniques d'un milieu granulaire.

Parfois, ces 2 types de caractéristiques interviennent simultanément, comme dans le cas des réactions solide-solide avec dégagement gazeux.

Le problème auquel nous nous intéressons spécialement est relatif à la cinétique d'une réaction solide-solide. Ropital (1984) a montré que la vitesse α_1 de début de réaction entre 2 solides 1 et 2, exprimée par rapport au solide 1, pouvait être reliée aux caractéristiques de l'empilement par :

$$\alpha_1 = K \frac{S_{12}}{N_1 R_1^3} \quad (1)$$

où K est une constante, R_1 désigne le rayon des grains 1, N_1 le nombre de grains 1 et S_{12} l'aire de contact entre grains 1 et grains 2 (dans la suite, ces 2 dernières grandeurs seront rapportées à l'unité de volume, ce qui ne modifie pas la validité de l'équation (1)). N_1 et R_1 sont des paramètres descriptifs du système granulaire et peuvent être contrôlés par l'expérimentateur. S_{12} est un paramètre caractéristique de l'empilement des grains et va dépendre de plusieurs facteurs :

- le mode de construction de l'empilement
- l'état d'homogénéité du mélange

- les paramètres descriptifs du système granulaire (taille et morphologie des grains, composition du mélange, etc...).

Le but que nous nous fixons dans ce travail est d'essayer de comprendre les effets de ces différents facteurs sur les caractéristiques d'un empilement de grains et particulièrement sur les aires de contact.

Dans une première partie, nous ferons la synthèse des résultats de la littérature concernant le sujet, et nous présenterons quelques modèles capables de calculer les caractéristiques d'un empilement de grains. Nous verrons également comment on peut caractériser complètement l'état d'homogénéité d'un mélange. Enfin, nous étudierons les effets du mode de construction de l'empilement sur ses caractéristiques à l'aide d'une simulation numérique à 2 dimensions.

Dans une deuxième partie, nous présenterons les résultats d'analyses d'empilements de grains de WO_3 et de NiO . Nous décrirons tout d'abord le mode opératoire utilisé, fondé sur l'analyse d'images de sections de l'empilement. Puis nous étudierons l'influence du mode de construction d'un empilement de grains de WO_3 sur ses caractéristiques. Nous analyserons ensuite des mélanges binaires de grains de WO_3 et de NiO . Nous verrons comment évoluent l'homogénéité et les caractéristiques du mélange avec le temps de mélangeage. Nous étudierons également l'influence d'un paramètre descriptif du système granulaire, le rapport de taille des grains, sur les caractéristiques de l'empilement. Dans chaque cas, nous essaierons de corréler les résultats obtenus avec les modèles théoriques proposés dans la première partie.

lère PARTIE

Etude bibliographique et modélisations

Considérons un ensemble de N grains. Notre problème est de décrire l'arrangement de ces grains dans l'espace, quand on les place, avec un mode de construction donné, en état d'équilibre sous pesanteur. Nous étudierons uniquement les paramètres qui décrivent la configuration de l'empilement. Nous ne nous intéresserons pas aux propriétés physiques de l'empilement telles que le coefficient de compression, la perméabilité d'un fluide dans l'espace poreux, etc...

Nous définirons un certain nombre de paramètres et de fonctions caractéristiques de l'empilement. On dira qu'un paramètre ou une fonction est caractéristique si la réalisation de différents empilements, en suivant un mode de construction donné, conduit à la même valeur du paramètre ou de la fonction aux fluctuations statistiques près, et si la modification du mode de construction est susceptible d'induire une modification de la valeur du paramètre ou de la fonction. Ainsi, la position des grains dans l'espace n'est en général pas un paramètre caractéristique de l'empilement. En fait, quand le mode de construction présente un aspect aléatoire, on ne pourra caractériser l'empilement que par des paramètres globaux (compacité, nombre de contacts entre grains) ou par la distribution au sein de l'empilement d'un paramètre local (par exemple : la distribution des nombres de contacts par grain).

Nous étudierons tout d'abord l'empilement de grains identiques. Puis nous analyserons quelques caractéristiques de l'empilement de grains discernables. Enfin, nous verrons, à l'aide d'une simulation numérique, quels peuvent être les effets d'un mode de construction collectif sur les caractéristiques de l'empilement.



CHAPITRE I. L'EMPILEMENT DE GRAINS IDENTIQUES

Dans ce chapitre, on considère un empilement de N grains, tous de même taille, même forme, et constitués de la même espèce chimique. Dans un premier temps, nous définirons un certain nombre de paramètres ou fonctions caractéristiques de l'empilement. Nous étudierons ensuite ces paramètres ou fonctions dans le cas idéal de l'empilement aléatoire de grains parfaitement sphériques. Enfin, nous verrons quelques écarts au modèle rencontrés dans les empilements de grains réels.

A. PARAMETRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT

On a coutume de représenter un empilement de grains comme la réunion de deux espaces complémentaires : l'espace des grains et l'espace poreux intergranulaire. Ces deux espaces sont topologiquement différents : le premier est discontinu, le second est continu. Cette différence essentielle implique que l'étude du milieu poreux est radicalement différente de celle du milieu granulaire. Pour pouvoir appliquer les mêmes méthodes d'analyse aux deux milieux, on réalise parfois un découpage arbitraire du milieu poreux en éléments de volume disjoints que l'on appelle "pores". On peut alors effectuer une mesure de la distribution de taille de pores ou de la distribution de forme des pores. Cependant, il ne faut jamais perdre de vue que la distribution obtenue est entièrement dépendante du découpage initial. Ce découpage n'est pas une opération nécessaire. On peut faire une analyse de taille globale sur le milieu poreux comme nous le verrons. Concernant l'espace des grains, la distribution de taille ou de forme est sans équivoque puisqu'on analyse des objets individuels. Elle n'est d'ailleurs pas un paramètre caractéristique de l'empilement, mais un paramètre descriptif du système granulaire.

L'importance relative de l'espace des grains et de l'espace des pores est une première caractéristique de l'empilement.

1. COMPACITE - POROSITE

On appelle compacité de l'empilement la fraction de l'espace qui est occupée par les grains et porosité de l'empilement la fraction de l'espace qui est inoccupée. Dans la suite, on notera C la compacité et \emptyset la porosité. On a la relation immédiate :

$$C = 1 - \emptyset$$

Si l'on mesure la compacité (ou la porosité) dans des éléments de volume placés en différents points de l'empilement, on peut évaluer la distribution de la compacité (ou de la porosité) locale au sein de l'empilement. Cette distribution est liée au choix des éléments de volume bien sûr. Haughey et Beveridge (1969) utilisent par exemple des sphères de rayon fixé centrées au centre des grains. On pourra utiliser aussi les éléments de volume définis par partition* (Annexe 1).

2. PARAMETRES DECRIVANT LE VOISINAGE DES GRAINS

a. Coordinance (de contact)

On appelle coordinance d'un grain le nombre de contacts entre le grain considéré et les autres grains de l'empilement. La coordinance moyenne z des grains est un paramètre caractéristique de l'empilement. De même la distribution des coordinances des grains.

b. Paramètres décrivant le proche voisinage des grains

- Coordinance de proche voisinage :

Expérimentalement, il est parfois difficile de distinguer un contact réel d'un proche voisinage (sauf dans le cas des empilements simulés par ordinateur où la seule limite est la précision des calculs). Aussi, certains auteurs déterminent une coordinance de proche voisinage en comptant les grains séparés par une distance inférieure à 5 % du diamètre (Bernal et Mason 1960, Scott 1962). Cette coordinance est sensiblement plus forte que la coordinance de contact. Nous n'utiliserons pas ce paramètre, qui est fortement lié à la distance de voisinage choisie.

- Analyse par partition :

La partition par zones d'influence, ou par les plans radicaux dans le cas de sphères (Annexe 1) permet d'analyser le voisinage des grains. Considérons la partition par zones d'influence d'un empilement de disques à 2 D (figure 2a de l'Annexe 1). Les noeuds de la partition sont par construction équidistants de 3 grains. Par conséquent, on passe d'un noeud à l'autre en suivant une ligne de la partition qui est équidistante de 2 grains. On appellera cette ligne "ligne de séparation par zones d'influence" de 2 grains. Le nombre de lignes de séparation autour d'un grain est égal au nombre de voisins de ce grain relativement à la partition. De même à 3 D, les noeuds de la partition sont, par construction, équidistants de 4 grains. On passe d'un noeud à l'autre en suivant une ligne de la partition qui est équidistante de 3 grains. Les lignes de la partition sont les bords des surfaces de la partition qui sont équidistantes de 2 grains. On appellera ces surfaces "surfaces de séparation par zones d'influence" de 2 grains. Le nombre de surfaces de séparation autour d'un grain est égal au nombre de voisins de ce grain relativement à la partition.

Analyser la distribution des nombres de voisins d'un grain relativement à la partition par zones d'influence revient donc à analyser la distribution des nombres de surfaces de séparation autour d'un grain. Dans le cas de sphères, analyser la distribution des nombres de voisins d'un grain relativement à la partition par les plans radicaux revient à analyser la distribution des nombres de faces des polyèdres de cette partition.

A partir de la partition par zones d'influence, nous définissons la fonction $S(d)$ qui mesure, par unité de volume, l'aire de la partie des surfaces de séparation par zones d'influence dont les points sont situés à une distance inférieure à $d/2$ des bords des grains. Cette fonction, que nous appellerons aire de séparation des grains à une distance d , nous permettra une étude expérimentale du voisinage des grains par analyse d'images (§ IV.A.4.c). Quand d tend vers 0, l'aire de séparation par zones d'influence tend vers l'aire de contact par unité de volume que nous noterons S_c .

c. Fonction de distribution radiale (FDR)

La fonction de distribution radiale $g(r)$ permet d'analyser l'environnement d'un grain à différentes distances. Considérons un grain de l'empilement de centre C , et une famille de couronnes sphériques centrées sur C et d'épaisseur dr . La fonction de distribution radiale $g(r)$ du grain considéré est égale au nombre de centres de grains par unité de volume qui sont compris dans la couronne entre r et $r + dr$, divisé par le nombre moyen de grains par unité de volume dans l'empilement. Dans la pratique, on calcule cette fonction pour une série de grains de l'empilement, et on fait la moyenne. Pour des sphères, cette fonction est nulle pour les valeurs de r inférieures à 2 fois le rayon R des sphères ; elle présente un pic pour $r \approx 2R$ caractéristique de la première sphère de coordination des grains (contacts ou proche voisinage) ; elle présente un deuxième pic en général plus étalé pour $r \approx 4R$ caractéristique de la deuxième sphère de coordination des grains (figure 1). En général, la FDR fournit des renseignements très précieux sur l'existence éventuelle d'un ordre à courte distance, comme nous le verrons au § B.2.c.

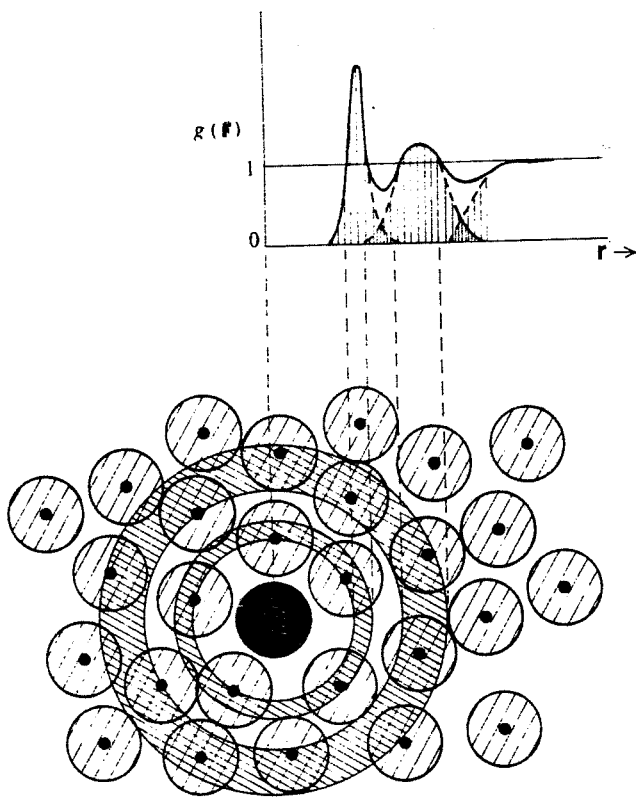


Figure 1 :
Fonction de distribution radiale à 2 D
(d'après Ziman 1979)

Cette fonction est aussi appelée fonction de corrélation de paires car elle représente aussi la fraction de paires de particules séparées par une distance r relativement à la fraction théorique dans un réseau aléatoire de points de même densité numérique.

3. PARAMETRES DECRIVANT LA GEOMETRIE DU MILIEU POREUX

Dans ce chapitre, nous citerons simplement quelques méthodes classiques de mesure de taille dans le milieu poreux.

a. Distribution de taille des pores obtenue par un découpage

Si l'on est capable de découper le milieu poreux en éléments de volume disjoints, on peut étudier la distribution de taille des "pores" ainsi obtenus. Bernal (1962) analyse par exemple la distribution de taille des cavités ("holes") de la partition par les polyèdres de coordinance (Annexe 1). Frost et Raj (1982) étudient les cavités tétraédriques de la partition de Delaunay (Annexe 1).

b. Distribution de taille des pores obtenue par ouverture

Le principe de la granulométrie par ouverture est décrit dans l'annexe 5. L'ouverture est réalisée soit dans l'espace poreux tridimensionnel, soit dans une section 2 D ou 1 D de cet espace. Elle utilise un élément géométrique qui est le plus souvent la sphère dans l'espace 3 D, le disque dans l'espace 2 D et le segment dans l'espace 1 D. En faisant varier la taille de l'élément géométrique d'ouverture, on peut obtenir la distribution des éléments géométriques maximaux inclus dans le milieu. On peut ainsi déterminer suivant l'espace d'échantillonnage utilisé :

- α. la distribution des sphères maximales incluses dans le milieu poreux à 3 D.
- β. la distribution des disques maximaux inclus dans une section 2 D du milieu poreux.
- γ. la distribution des segments maximaux inclus dans une section 1 D du milieu poreux.

c. Paramètre de taille globale : le rayon hydraulique

Considérons l'écoulement d'un fluide dans un conduit rectiligne dont la section perpendiculaire à l'écoulement est constante (par exemple un tube cylindrique). On appelle rayon hydraulique R_H du conduit le rapport de la surface A sur le périmètre L_2 du conduit mesuré sur une section perpendiculaire à l'écoulement :

$$R_H = \frac{A}{L_2}$$

Pour un conduit cylindrique, R_H est égal à la moitié du rayon du cylindre, aussi certains auteurs notent $R_H = 2A/L_2$.

Si on note t la longueur du conduit, on remarque que :

$$R_H = \frac{A \times t}{L_2 \times t} = \frac{\text{Volume du conduit}}{\text{Surface du conduit}}$$

Par analogie, on définit le rayon hydraulique m d'un milieu poreux comme le rapport du volume des pores sur la surface des pores. Par conséquent, $m = \emptyset/S_V$, où S_V est la surface spécifique des pores (ou des grains) exprimée par unité de volume de l'empilement.

Debbas et Rumpf (1966) préfèrent définir un rayon hydraulique moyen m^* , mesuré sur une section perpendiculaire à la direction moyenne de l'écoulement dans le milieu poreux :

$$m^* = \frac{A}{L_2}$$

En rapportant A et L_2 à l'unité d'aire dans la section :

$$m^* = \frac{A_A}{L_A}$$

Dans la mesure où le milieu poreux est isotrope, on peut relier A_A et L_A à \emptyset et S_V par des relations stéréologiques (§ IV.A.1.a.) :

$$A_A = \emptyset \quad \text{et} \quad L_A = \frac{\Pi}{4} S_V$$

Donc :

$$m^* = \frac{4 \emptyset}{\Pi S_V} = \frac{4}{\Pi} m$$

m ou m^* sont des paramètres utilisés dans l'étude de l'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux mais ils n'apportent pas d'information nouvelle concernant la description du milieu poreux puisqu'ils ne dépendent que de \emptyset . En effet, lorsque la forme et la taille des grains sont fixées, S_V ne dépend que de \emptyset ($S_V = 3(1 - \emptyset)/R$ pour des sphères de rayon R).

4. ENCOMBREMENT D'UN GRAIN (Ben Aim 1970)

Notons V^a le volume apparent occupé par l'empilement (à distinguer du volume de matière V). On appelle volume granulaire apparent d'un grain, noté $\overline{V^a}$, le rapport du volume apparent V^a de l'empilement sur le nombre de grains de l'empilement. C'est aussi l'accroissement moyen de volume que l'on observe lorsqu'on introduit un grain dans l'empilement :

$$\overline{V^a} = \left(\frac{dV^a}{dN} \right)$$

Il permet d'affecter à chaque grain une fraction du volume apparent de l'empilement. C'est l'analogue du volume molaire pour les mélanges liquides.

On définit le coefficient d'encombrement moyen d'un grain comme étant le rapport du volume granulaire apparent $\overline{V^a}$ sur le volume granulaire \overline{V} (volume d'un grain) :

$$e = \frac{\overline{V^a}}{\overline{V}} = \frac{1}{\overline{V}} \left(\frac{dV^a}{dN} \right)$$

Ce paramètre n'est pas utilisé dans l'étude des empilements monotailles. En effet, il est alors simplement égal à l'inverse de la compacité. Il prendra toute son importance dans le cas d'empilements à plusieurs tailles comme nous le verrons plus loin.

B. ETUDE D'UN CAS IDEAL : L'EMPILEMENT ALEATOIRE DE SPHERES DE MEME RAYON R

Dans un souci de modélisation, on représente souvent les grains d'un empilement par des sphères. Cette approche décrit relativement bien les empilements de grains réels.

1. INFLUENCE DU MODE DE CONSTRUCTION SUR LA COMPACTITE DE L'EMPILEMENT

Dans la mesure où la taille et la forme des grains sont maintenant fixées, les caractéristiques de l'empilement ne dépendront que de la manière dont il a été construit. Dans ce paragraphe, nous étudierons l'influence du mode de construction sur la compacité de l'empilement final. L'étude des autres caractéristiques de l'empilement sera faite dans le paragraphe suivant. Nous présenterons d'abord quelques généralités sur les états d'équilibre mécanique d'un empilement et leur stabilité.

a. Equilibre mécanique d'un empilement de sphères

α. Empilement construit grain par grain sous pesanteur

Considérons un empilement réalisé en déposant lentement les grains un à un. Chaque grain devra trouver individuellement une position d'équilibre stable. La condition d'équilibre stable d'un solide impose l'existence d'au moins 3 points d'appui. Pour des polyèdres, un contact face-face suffit à assurer l'équilibre stable. Pour des sphères, les contacts étant ponctuels, chaque sphère devra s'appuyer sur trois autres sphères. Une sphère qui tombe sur la couche superficielle d'un empilement va heurter une sphère en place, puis rouler sur celle-ci en suivant la plus grande pente jusqu'à entrer en contact avec une deuxième sphère. Elle continuera alors de rouler en s'appuyant sur les deux sphères jusqu'à entrer en contact avec une troisième sphère et elle s'immobilisera. Pour qu'une sphère ait plus de trois points d'appui, il faudrait qu'elle s'immobilise en entrant en contact simultanément avec 2 sphères, ce qui est peu probable. On peut donc admettre que **dans un empilement réalisé grain par grain, chaque sphère apporte 3 contacts à l'empilement.** Si l'empilement compte N sphères, il se forme donc 3 N contacts. Chaque contact comptant pour 2 grains, la **coordinance moyenne d'un tel empilement est 6.**

β. Empilement construit collectivement

Dans la mesure où l'empilement n'est plus réalisé grain par grain mais collectivement, on ne peut plus appliquer la condition d'équilibre d'un solide. En effet, il peut se créer collectivement des structures stables où les sphères ont moins de 3 points d'appui. C'est ce qu'on appelle "les effets de voûte" (figure 2). Les effets de voûte diminuent la compacité et la coordinance moyenne de l'empilement.

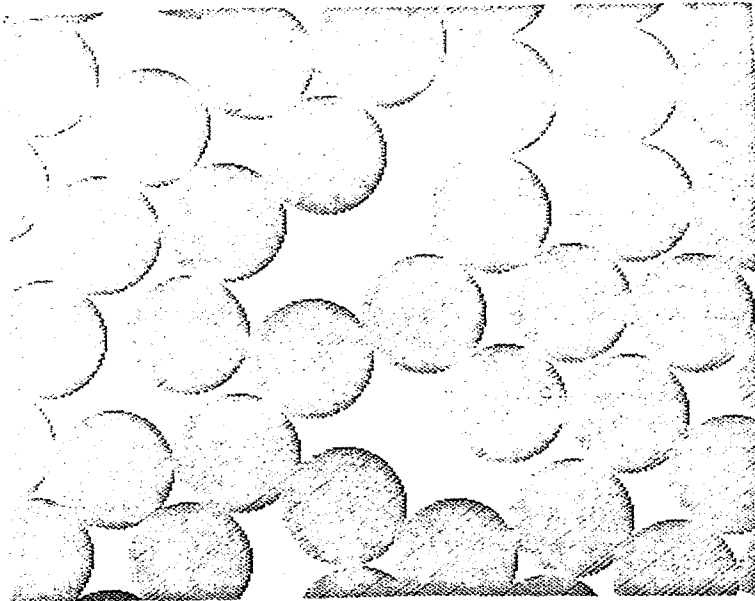


Figure 2 :
Effets de voûte dans un empilement de disques construit collectivement selon l'algorithme décrit au § III.

Ces deux types d'équilibre ne présenteront pas la même stabilité. En général, l'équilibre des voûtes à l'intérieur d'un empilement réalisé collectivement est instable : il suffit de déplacer légèrement une sphère de la voûte pour détruire celle-ci. Cependant, de tels déplacements peuvent être rendus difficiles si les forces de pression et d'adhésion entre les grains en contact sont grandes vis à vis de la force de pesanteur. Ceci peut être le cas notamment pour les fines particules ou pour les grains polyédriques. Néanmoins, il suffit en général d'un faible apport local d'énergie mécanique pour détruire une voûte dans un empilement de grains sphériques. Les grains se réarrangent alors dans une configuration d'énergie potentielle plus faible, et la compacité augmente.

En revanche, l'empilement réalisé grain par grain est en équilibre stable puisque chaque sphère de l'empilement est en équilibre stable. Cependant cet état d'équilibre ne correspond pas en général au minimum de l'énergie potentielle globale de l'empilement. Par un réarrangement collectif, on peut abaisser le centre de gravité moyen des grains. Cette opération conduit souvent à augmenter l'énergie potentielle de pesanteur de certains grains et à diminuer celle de certains autres de manière que le bilan soit globalement négatif (figure 3).

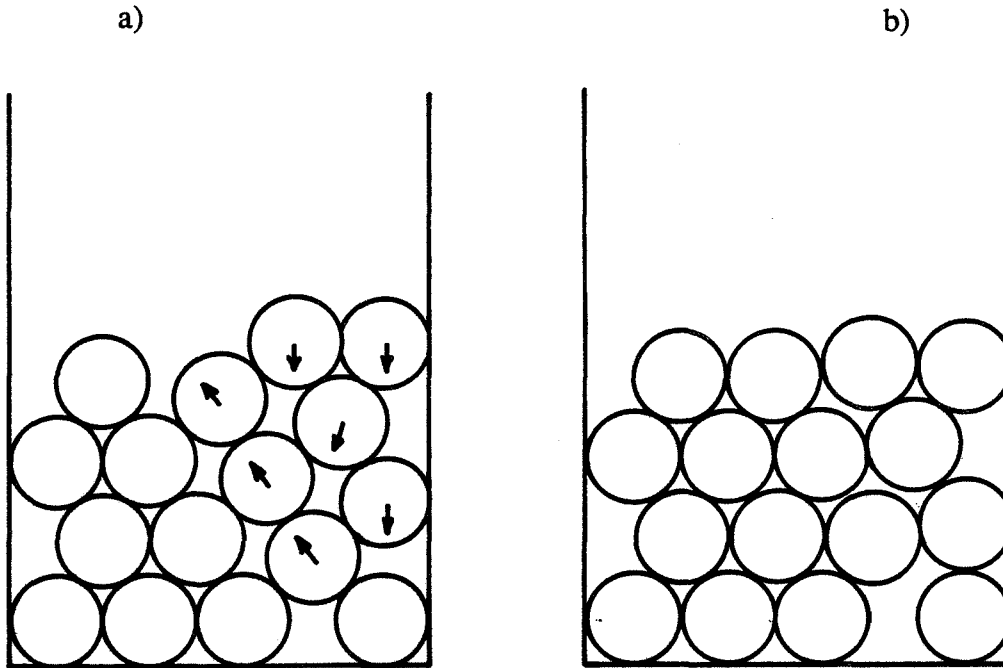


Figure 3 :

Réarrangement d'un empilement réalisé grain par grain.

Les flèches indiquent le déplacement du centre de gravité des grains quand on passe de a/ à b/.

Ce type de réarrangement collectif nécessite un apport global d'énergie mécanique à l'empilement, de préférence de manière discontinue. L'application d'une vibration ou d'un cisaillement alternatif sera en général efficace. Une pression uniaxiale aura en revanche peu d'effets.

b. Empilements de référence

Compte-tenu de ces considérations sur les différents états d'équilibre d'un empilement de sphères et sur leur stabilité, nous pouvons définir les empilements de référence suivants.

α. L'empilement de compacité minimale ou empilement très peu dense :

$$C = 0,52 - 0,56$$

Cet empilement contient un maximum de configurations d'équilibre collectif (voûtes). Notons d_0 la densité du flux de particules en chute à l'instant qui précède la formation de l'empilement exprimée en volume de solide par unité de volume total. Les configurations d'équilibre collectif seront d'autant plus nombreuses dans l'empilement formé vis à vis des configurations d'équilibre individuel que d_0 sera grande. La limite correspondra au cas où d_0 tend vers C.

L'empilement aléatoire de compacité minimale est alors parfaitement défini mais peu de travaux existent dans la littérature concernant cet empilement. On pourrait par exemple simuler numériquement un tel empilement et déterminer précisément ses caractéristiques. A notre connaissance, une telle simulation n'a jamais été réalisée à 3 D. Nous présenterons dans le troisième chapitre de cette partie, une simulation numérique d'un tel empilement que nous avons réalisée à 2 D.

Dans la pratique, on peut construire un tel empilement en plaçant les grains dans un fluide qui se déplace à contre-courant, en diminuant lentement la vitesse du fluide. La compacité minimale ainsi atteinte est moins bien définie. Elle va dépendre de la stabilité des configurations d'équilibre collectif créées donc de la nature du matériau et de la taille des sphères.

Wakeman (1975) mesure une compacité de 0,52 environ pour des billes de verre de 50 microns de diamètre. Cette compacité augmente très vite avec le diamètre des sphères (figure 4). Des résultats similaires ont été obtenus par d'autres auteurs (Steinour 1944, Ergun et Orning 1949, Leva 1959).

On obtient également une densité de chute d_0 très grande en retournant brusquement un empilement de sphères. Epstein et Young (1962) observent une compacité de 0,56 environ pour de tels empilements réalisés avec des billes de verre de 80 et 700 μm de diamètres. Des résultats similaires ont été obtenus par d'autres auteurs (Happel 1949 ; Oman et Watson 1944).

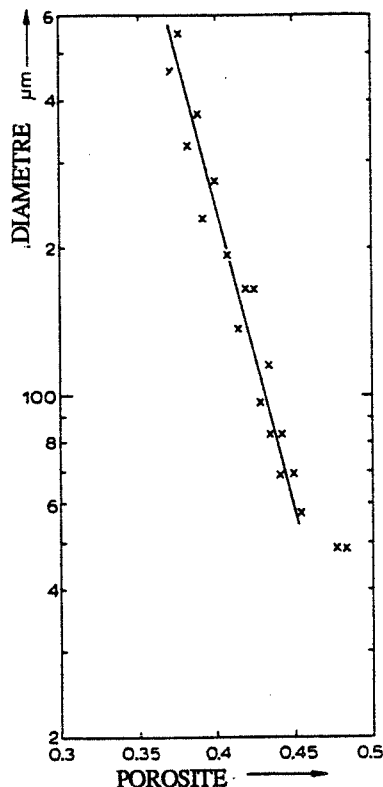


Figure 4 :
Variation de la porosité d'un empilement sédimenté avec le diamètre des sphères.
(D'après Wakeman 1975)

β . L'empilement construit grain par grain sous pesanteur : $C = 0,58 - 0,59$

Cet empilement a été défini précédemment. Ses caractéristiques ont été déterminées par des simulations numériques. L'algorithme utilisé, dit "à addition séquentielle" (Clarke et Wiley 1987), consiste à placer les sphères une à une. Chaque sphère ajoutée est positionnée de façon aléatoire au-dessus de l'empilement. Elle est ensuite amenée, suivant la direction verticale, en contact avec une sphère de la couche superficielle de l'empilement formé. Puis, on recherche sa position d'équilibre stable en appui sur trois sphères. L'empilement ainsi réalisé a une compacité comprise entre 0,58 et 0,59 (Tory et alii 1968, Visscher et Bolsterli 1972, Tory et alii 1973, Schlüssler et Walter 1986, Powell 1988).

A notre connaissance, il n'existe pas dans la littérature d'études d'empilements réels construits grain par grain. L'empilement qui s'en rapproche le plus est l'empilement lâche ("loose packing") obtenu en versant les grains avec une faible hauteur de chute et avec un faible

débit. Cet empilement a une compacité qui varie entre 0,59 et 0,61 selon la taille des sphères et le type de matériau utilisé (Scott 1960, Bernal, Mason 1960, Macrae 1961). Cependant, cet empilement présente des différences par rapport à l'empilement aléatoire réalisé grain par grain qui peuvent s'expliquer par les phénomènes suivants :

- le grain qui tombe à la surface de l'empilement formé possède une énergie cinétique, même faible, qui lui permet de rouler et de trouver une position d'équilibre d'énergie potentielle plus faible que s'il avait été placé de manière aléatoire.
- le mode de construction collectif, même si le débit de particules est faible peut entraîner la formation de voûtes locales.

Ces deux phénomènes ont des effets opposés sur la compacité de l'empilement. Aussi, la distribution de paramètres locaux tels que la porosité ou la coordinance sera plus large dans l'empilement lâche que dans l'empilement construit grain par grain, comme nous le verrons plus loin. Le premier phénomène explique la compacité plus forte de l'empilement lâche. L'existence de voûtes aura également des effets sur certaines caractéristiques de ces empilements que nous décrirons plus loin.

Pour obtenir une description des empilements lâches par simulation numérique, différents auteurs introduisent dans l'algorithme de simulation décrit précédemment un critère de "choix du site". Chaque sphère ajoutée n'est plus alors placée de façon aléatoire mais dans un site d'énergie potentielle faible. Les simulations de ce type conduisent à des empilements de compacité 0,60 - 0,61 (Bennett 1972, pour un empilement construit sous l'action d'une force centrale, Matheson 1974, Powell 1980).

γ . L'empilement de compacité maximale (ou dense) : $C = 0,64$

Nous avons vu précédemment qu'en apportant de l'énergie mécanique à un empilement, on augmente sa compacité en diminuant l'énergie potentielle globale. On peut tendre ainsi vers une compacité limite ($\approx 0,64$). Cette valeur n'est pas la valeur maximale que l'on peut atteindre : l'empilement cubique face centré ou hexagonal compact a une compacité $C = 0,74$. On n'a d'ailleurs jamais pu prouver mathématiquement que cette valeur constituait une borne supérieure pour la compacité des empilements de sphères mais on l'admet généralement. Les empilements de compacité comprise entre 0,64 et 0,74 présentent un ordre à longue distance, comme nous le verrons sur plusieurs exemples.

L'empilement de compacité maximale ("close packing") a des caractéristiques très bien définies. Certains auteurs les ont mesurées sur des empilements de grains réels, d'autres sur des empilements simulés par ordinateur, d'autres enfin les ont calculées théoriquement.

Empilements réels :

Scott (1960) a déterminé de façon rigoureuse la compacité d'un empilement de billes d'acier de 300 μm de diamètre environ soumis à une vibration pendant 2 mn. Il s'affranchit des effets de bords dus aux parois du récipient cylindrique en faisant varier le diamètre de ce récipient et en extrapolant la compacité mesurée pour un diamètre infini. Il obtient la valeur $C = 0,6366 \pm 0,0004$ (Scott, Kilgour 1969). Rutgers (1962) mesure une compacité de 0,64 environ pour des empilements similaires réalisés avec des billes de nylon de 3 mm de diamètre environ.

Debbas et Rumpf (1966) ont étudié plus précisément l'influence de l'amplitude de la vibration et du temps de vibration avec des empilements de billes de plomb de 1 mm de diamètre environ. Pour une amplitude fixée, on atteint la compacité maximale après quelques minutes de vibration. La compacité maximale augmente quand l'amplitude de vibration augmente. Au maximum, Debbas et Rumpf obtiennent une compacité de 0,66 environ. Mais l'empilement est alors inhomogène et présente des zones de structure ordonnée. Chrétien (cité dans Fies 1978) obtient des résultats comparables.

L'application d'une pression uniaxiale sur un empilement lâche provoque une augmentation de compacité, mais très faible (du moins tant que la pression appliquée n'est pas suffisante pour permettre une déformation plastique des sphères). On peut atteindre l'empilement dense en appliquant des cycles de pression (Oger 1987). Selon cet auteur, l'application d'une pression a pour effet un réarrangement collectif rendu possible par une légère déformation élastique des sphères. Après relâchement de la pression, l'empilement a une compacité plus grande : la déformation de l'empilement est de type plastique bien que la déformation des sphères soit purement élastique. A chaque cycle de pression, un réarrangement collectif s'opère et Oger obtient ainsi une compacité maximale de 0,635.

L'application d'un cisaillement périodique à un empilement dense conduit à une augmentation de compacité mais il apparaît alors des zones ordonnées (Scott, Charlesworth 1964, pour un cisaillement plan ; Rutgers 1962 pour un cisaillement entre 2 cylindres).

- **Empilements simulés par ordinateur :**

Les simulations numériques d'empilements denses se font généralement en utilisant un algorithme dit "à réarrangement collectif" (Clarke, Wiley 1987). Le principe est de partir de N points distribués au hasard dans l'espace et de faire croître les sphères à partir de ces points. Quand deux sphères se coupent, leurs centres sont écartés l'un de l'autre dans la direction de la droite qui les joint. On arrête le processus quand on ne peut plus réduire les intersections. En diminuant le diamètre de certaines sphères ou en déplaçant légèrement les centres de manière aléatoire, on peut poursuivre le processus de croissance. Ce type d'algorithme peut présenter des variantes suivant les auteurs mais on obtient toujours une compacité qui converge vers une valeur maximale voisine de 0,64 : Mason (1967) obtient une valeur de 0,634 ; Jodrey et Tory (1981) une valeur de 0,636 ; Clarke et Wiley (1987) trouvent une compacité maximale comprise entre 0,637 et 0,645 ; par un algorithme un peu différent, Jodrey et Tory (1985) arrivent à la valeur maximale de 0,649 et l'empilement obtenu ne présente pas de zones ordonnées.

- **Calcul théorique :**

Des calculs théoriques que nous ne développerons pas ici donnent une valeur de la compacité maximale des empilements aléatoires de sphères. Finney et Gotoh (1974) trouvent $0,636 \pm 0,001$. Berryman (1983) donne $0,64 \pm 0,02$.

Tout concorde donc pour affirmer que **la compacité maximale d'un empilement aléatoire de sphères est voisine de 0,64**. Les valeurs supérieures à cette limite correspondent à des empilements présentant des structures ordonnées.

c. Description des empilements obtenus lors de processus de mélange et de transvasement - Optimisation de la compacité

Les empilements de grains réels résultent en général d'un processus de mélangeage ou de transvasement. D'après les considérations précédentes concernant les états d'équilibre d'un empilement et leur stabilité, pour un système granulaire donné, les caractéristiques de l'empilement vont dépendre de deux paramètres :

- la densité d_0 du flux de particules en chute à l'instant qui précède la formation de l'empilement
- l'énergie mécanique d'impact apportée à l'empilement par chaque particule en chute. Cette énergie va dépendre de la densité des particules, de leur taille, et de la hauteur de chute.

Tout serait alors très simple si ces paramètres avaient des effets indépendants. Or il n'en est rien. Macrae (1961) a clairement montré quelle était leur influence sur les caractéristiques de l'empilement. Il construit expérimentalement des empilements de grains sphériques de 1 mm de diamètre environ en faisant varier la hauteur de chute et l'intensité de dépôt des particules, c'est-à-dire le nombre de particules déposées par unité de temps et par unité de surface de l'empilement. La hauteur de chute est proportionnelle à l'énergie mécanique d'impact apportée à l'empilement par chaque particule. L'intensité de dépôt, pour une hauteur de chute donnée est proportionnelle à la densité d_0 du flux de particules en chute. Pour une hauteur de chute et une intensité de dépôt faibles, on retrouve les caractéristiques de l'empilement lâche : la compacité C_0 varie entre 0,59 et 0,61 suivant les matériaux.

Pour une hauteur de chute fixée, la variation de la compacité de l'empilement final avec l'intensité de dépôt présente un maximum (figure 5). Ce comportement peut s'expliquer de la manière suivante :

- L'augmentation de l'intensité de dépôt a pour effet, dans un premier temps, une augmentation de l'énergie mécanique d'impact apportée par unité de temps à l'empilement. Les couches superficielles de l'empilement formé peuvent alors se mettre en vibration, ce qui permet, par un réarrangement collectif, d'atteindre des configurations d'énergie potentielle globale plus faible, comme nous l'avons vu au § a. La compacité augmente alors. Rutgers (1962) observe un comportement analogue.
- Pour les valeurs plus fortes de l'intensité de dépôt, la densité d_0 du flux de particules en chute est telle que la mise en vibration des couches superficielles devient impossible car les particules se bloquent collectivement en arrivant à la surface de l'empilement. La compacité décroît alors. King (1897-1898) observe le même type de variation.

Pour une intensité de dépôt fixée, la compacité de l'empilement final augmente avec la hauteur de chute car l'énergie mécanique apportée par chaque particule augmente. Elle tend rapidement vers une valeur limite (figure 6). La compacité maximale atteinte dépend des propriétés du matériau. Macrae parvient à obtenir des compacités de l'ordre de 0,66 - 0,67 avec des billes de verre ou d'acier mais il observe alors des domaines ordonnés.

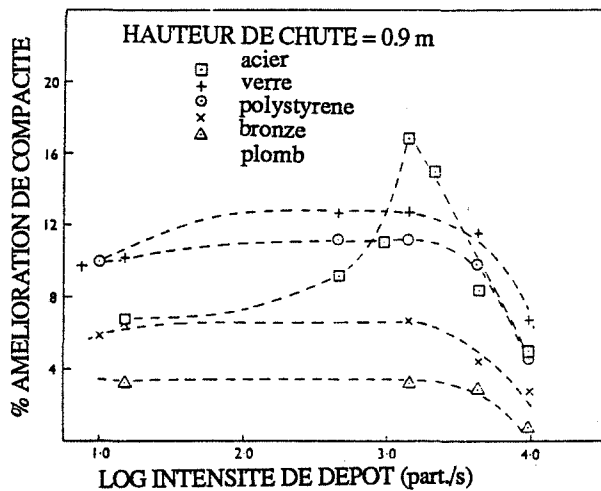


Figure 5 :
Variation du % "d'amélioration" de la compacité $((C - C_0)/(1 - C_0))$ avec l'intensité de dépôt des particules.
(D'après Macrae 1961)

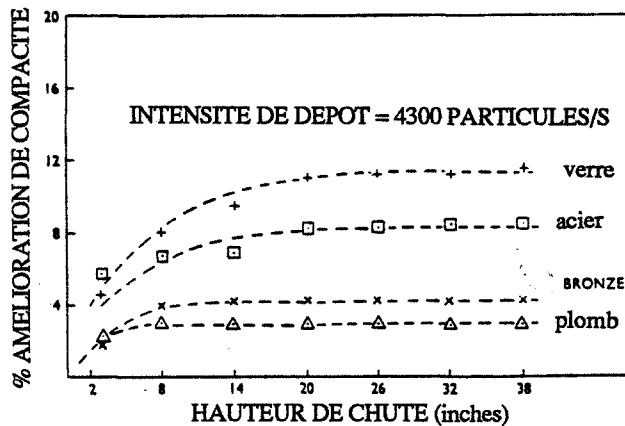


Figure 6 :
Variation du % "d'amélioration" de la compacité avec la hauteur de chute.
(D'après Macrae 1961)

Les résultats de Macrae montrent qu'on peut optimiser la compacité d'un empilement en contrôlant soigneusement les conditions expérimentales utilisées lors de sa construction. On obtiendra la compacité maximale en opérant avec une hauteur de chute suffisante (palier de la courbe de la figure 6), et une intensité de dépôt ni trop forte, ni trop faible.

A l'inverse, si la hauteur de chute est faible et l'intensité de dépôt importante, les phénomènes de blocage collectif deviennent prépondérants et la compacité atteinte est faible. La compacité mesurée par Macrae pour les intensités de dépôt importantes n'est jamais inférieure à la compacité de l'empilement lâche (le % d'amélioration des courbes des figures 5 et 6 est toujours positif). Cependant, il est probable que de telles valeurs puissent être atteintes avec des particules plus fines, ou en utilisant une intensité de dépôt plus grande (à hauteur de chute fixée) de manière à augmenter la densité d_0 des particules en chute. (La valeur expérimentale maximale de d_0 utilisée par Macrae n'est que de 0,18 environ). C'est en tout cas ce qu'on observe dans

les empilements réalisés par sédimentation dans un fluide ou en retournant brusquement un empilement (§ 2. a.) c'est-à-dire quand la densité d_0 du flux de particules en chute est grande et la hauteur de chute est faible.

L'optimisation de compacité des empilements de sphères de même taille par le contrôle de la hauteur de chute et de l'intensité de dépôt est relativement délicate à appliquer. De plus, la densification observée par Macrae est probablement moins nette avec des fines particules. La méthode qui est généralement utilisée pour fabriquer un empilement dense et homogène consiste à verser les grains lentement et par faible quantité, en tassant et vibrant après chaque versement (King 1897, Ben Aim 1970, Lemaître 1985, Oger 1987). Le versement s'effectue à l'aide d'un alimenteur vibrant. Les grains sont dispersés dans une chambre de mélangeage, constituée de tamis en série (Wyllie et Gregory 1955) ou d'un réseau de balles élastiques (Ben Aim 1970) avant de tomber à la surface de l'empilement. L'utilisation de plusieurs alimenteurs vibrants permet de réaliser des mélanges par cette méthode (figure 7).

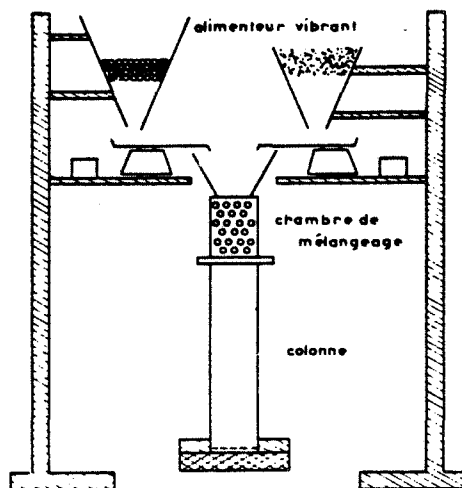


Figure 7 :
Montage expérimental utilisé par Ben Aim (1970) pour la réalisation d'empilements denses.

2. ETUDE DE QUELQUES AUTRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT

Les résultats que l'on trouve dans la littérature concernant les caractéristiques des empilements, autres que la compacité, sont relatifs essentiellement aux empilements réalisés grain par grain, aux empilements lâches et aux empilements denses. On admet généralement que les empilements de compacité comprise entre 0,59 et 0,64 ont des propriétés intermédiaires entre celles de l'empilement lâche et celles de l'empilement dense. Les empilements très peu denses ($C < 0,58$) sont en revanche très mal connus.

Nous allons maintenant étudier quelques caractéristiques d'un empilement. Nous porterons un intérêt tout particulier aux paramètres qui nous seront utiles dans la suite, c'est-à-dire les paramètres décrivant le voisinage des grains. Dans certains cas, nous nous contenterons de citer des références bibliographiques, afin de ne pas surcharger cette présentation.

a. Coordinance

Le nombre maximal de sphères que l'on peut placer en contact autour d'une sphère est 12 (Hoppe 1874). Dans l'empilement ordonné compact (CFC ou HC), toutes les sphères ont une coordinance égale à la valeur maximale 12. Dans l'empilement aléatoire, on observe en revanche une distribution de valeurs de la coordinance et la valeur moyenne est très nettement inférieure à la valeur maximale (de l'ordre de la moitié).

α. L'empilement construit grain par grain

La condition d'équilibre mécanique individuel de chaque grain impose, nous l'avons vu, une coordinance moyenne z égale à 6 pour cet empilement.

Les valeurs mesurées sur les empilements construits grain par grain simulés par ordinateur varient entre 6 et 6,4 (Tory, Cochrane 1968, Vischer et Bolsterli 1972, Powell 1980). L'introduction d'un critère arbitraire de "choix de site" ne doit d'ailleurs pas modifier cette valeur car ce critère ne supprime pas la condition d'équilibre mécanique individuel de chaque grain. Matheson (1974) simule un empilement grain par grain sous pesanteur en plaçant chaque sphère dans le site accessible le plus bas et mesure une coordinance moyenne de 5,991. L'utilisation d'un algorithme de construction sous force centrale et non plus sous pesanteur conduit également à une valeur de la coordinance égale à 6 (Bennett 1972).

β. L'empilement très peu dense

Dans les configurations d'équilibre collectif, certaines sphères ont moins de trois points d'appui. La coordinance moyenne de l'empilement doit alors être inférieure à 6. Il n'existe pas, à notre connaissance, d'étude de la coordinance des empilements aléatoires très peu denses. Oger (1987) obtient une coordinance minimale de 4,75 en enlevant les liaisons qui ne sont pas nécessaires à l'équilibre mécanique des sphères dans un empilement hexagonal compact orienté de manière que la pesanteur ne soit pas parallèle aux axes cristallographiques du réseau. Nous verrons, dans la troisième partie de ce chapitre, à l'aide d'une simulation à 2 dimensions que l'introduction de configurations d'équilibre collectif diminue effectivement la coordinance moyenne de l'empilement.

γ. De l'empilement construit grain par grain à l'empilement dense

On admet généralement aujourd'hui que **la coordinance moyenne d'un empilement aléatoire de sphères ne peut dépasser la valeur 6** de l'empilement réalisé grain par grain (Bennett 1972, Finney 1974, Powell 1980, Oger 1987). Il n'existe pas de preuve formelle de ce fait. Bennett (1972) en donne une justification intéressante, basée sur des considérations d'équilibre mécanique :

Considérons un empilement de sphères construit à partir d'un noyau initial constitué de trois sphères en contact (leurs centres formant un triangle équilatéral). Chaque sphère est ajoutée de manière aléatoire dans un site d'équilibre mécanique sous force centrale (en contact avec 3 sphères déjà placées). On obtient ainsi un empilement réalisé grain par grain sous force centrale. Si le nombre de sphères de l'empilement est N , les liaisons étant créées de manière aléatoire elles constituent $3N - 6$ contraintes indépendantes pour les $3N$ coordonnées des sphères. Les 6 degrés de liberté du système permettent la translation et la rotation de l'empilement dans son ensemble, mais le déplacement relatif des sphères les unes par rapport aux autres nécessite la cassure d'une ou plusieurs liaisons. Le processus de compaction de l'empilement pour former un empilement dense nécessite donc de casser et de reformer des liaisons entre les sphères. Pendant ce processus, des particules se déplacent à l'intérieur de l'empilement. A un instant

donné, il est peu probable qu'il se forme plus d'une nouvelle liaison dans l'empilement. Par conséquent, si les contraintes introduites par les liaisons sont indépendantes, le système se figera dès que le nombre de liaisons sera égal à $3N - 6$. Le nombre de liaisons peut dépasser la valeur $3N - 6$ seulement s'il apparaît des liaisons redondantes, c'est-à-dire qui ne sont pas nécessaires à l'équilibre mécanique des grains. Ceci ne se produit que dans le cas où l'on observe des alignements réguliers de particules correspondant à l'apparition de structures ordonnées dans l'empilement (figure 8).

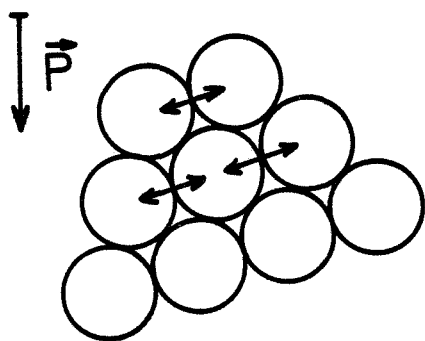


Figure 8 :
Liaisons redondantes dans un empilement 2 D sous pesanteur.

Un certain nombre de résultats confirment l'hypothèse de Bennett. En ce qui concerne les empilements simulés, l'algorithme de construction grain par grain conduit à une coordinance moyenne voisine de 6, comme nous l'avons vu. Pour les empilements denses, il semble que seuls Jodrey et Tory (1985) se soient intéressés à la coordinance moyenne : ils trouvent aussi une valeur voisine de 6.

L'étude de la coordinance moyenne des empilements réels est plus délicate car elle est liée à la précision de la mesure de position des sphères. Deux méthodes de mesure sont utilisées :

- La première a été employée pour la première fois, semble-t-il, par Smith, Foote et Busang (1929) et consiste à marquer les contacts en versant un liquide sur l'empilement. Smith, Foote et Busang versent de l'acide acétique sur un empilement de billes de plomb. L'acide est ensuite lentement évacué par rinçage à l'eau, sauf autour des points de contact où il est retenu par capillarité. Après quelques heures, un dépôt circulaire d'acétate de plomb marque les contacts et on peut compter ceux-ci. Bernal et Mason (1960) utilisent une méthode analogue avec de la peinture. L'inconvénient est que l'on prend en compte non seulement les sphères en contact mais aussi les sphères en proche voisinage. Smith et alii mesurent ainsi une coordinance qui varie de 7 à 9 quand la compacité passe de 0,56 à 0,64. Bernal et Mason précisent que leur méthode tolère une distance de séparation entre sphères égale à 5 % du diamètre. Ils mesurent alors une coordinance moyenne de 5,5 pour l'empilement lâche ($C = 0,60$) et de 6,4 pour l'empilement dense ($C = 0,64$). Leurs résultats sont donc plus précis que ceux de Smith et alii. Quoiqu'il en soit, cette méthode surestime toujours la coordinance. Par conséquent, les résultats de Bernal et Mason correspondent vraisemblablement à une coordinance de l'empilement dense voisine de 6 et de l'empilement lâche inférieure à 5,5. Cette dernière valeur indique l'existence de configurations d'équilibre collectif dans l'empilement lâche.

- La deuxième méthode consiste à enrober l'empilement dans une résine et à déterminer successivement la position exacte de chaque sphère par un dispositif optique. Un tel dispositif est décrit par Bernal, Cherry, Finney et Knight (1970). Cette méthode est laborieuse (60-70 sphères seulement sont analysées par heure) mais elle permet de déterminer toutes les caractéristiques de l'empilement. Finney (1970) a effectué une telle analyse sur un empilement dense de 8 000 sphères ! Nous nous référons dans la suite à cet empilement sous l'appellation "empilement dense de Finney". Mason (1968) et Finney et Gotoh (1974) analysent le nombre moyen de voisins d'une sphère d'un empilement dense en fonction de la distance entre centres (figure 9). Les résultats (concernant des empilements différents) sont en bonne concordance et la valeur extrapolée pour une distance entre centres égale au diamètre permet d'estimer la coordinance moyenne. Les résultats de Finney, qui sont plus précis (Bernal, Cherry, Finney et Knight 1970), donnent une valeur légèrement inférieure à 6. Malheureusement, une telle étude n'a pas été menée, semble-t-il, sur un empilement lâche.

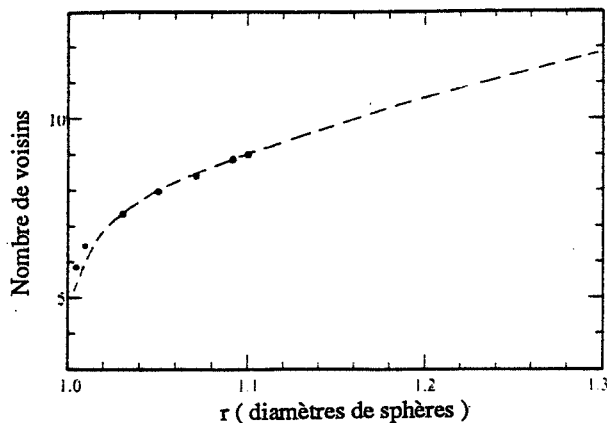


Figure 9 :

Variation du nombre de voisins dans un empilement dense avec la distance entre centres.

--- Mason (1968)

... Finney et Gotoh (1974)

Pour conclure, nous avons vu que les résultats expérimentaux comme les études théoriques tendent à montrer que la **coordinance moyenne d'un empilement aléatoire de sphères est au maximum égale à 6**. La mesure de valeurs inférieures à 6 est indicatrice de l'existence de configurations d'équilibre collectif. Oger (1987) propose une limite inférieure théorique de 4,75. On a donc :

$$4,75 \leq z \leq 6$$

(1)

L'empilement réalisé grain par grain et l'empilement dense ont tous deux une coordinance moyenne de 6. L'empilement lâche a une coordinance moyenne inférieure à 6. Par tassement et vibrations, il est probable qu'on tende très vite vers la valeur 6, avant d'avoir atteint la compacité maximale, car les configurations d'équilibre collectif sont peu stables. L'hypothèse de Bennett suggère en tout cas que l'on peut passer d'un empilement réalisé grain par grain ($C \approx 0,58$) à un empilement dense ($C = 0,64$) en gardant la coordinance moyenne égale à 6. Aussi, les modèles qui tentent de relier la coordinance moyenne d'un empilement à sa compacité (Haughey et Beveridge 1969, Dixmier 1978, Ouchiyama et Tanaka 1980, Chermant, Coster et Jernot 1984, Nikolenko et Koval'chenko 1986) n'ont pas de validité physique dans le cas général.

Distribution de coordinance :

Les courbes de distribution de coordinance des grains sont symétriques, tant dans l'empilement réalisé grain par grain que dans l'empilement lâche ou dans l'empilement dense (Bernal et Mason 1960, Powell 1980). Les courbes de distribution de Bernal et Mason, obtenues par la méthode de "peinture" des contacts, sont décalées vers les fortes coordinances par rapport à celle de Powell, qui est obtenue par simulation numérique d'un empilement construit grain par grain, car la méthode de peinture surévalue le nombre de contacts.

b. Analyse de voisinage par partition

La partition par les plans radicaux ou par zones d'influence (Annexe 1) fournit des informations sur le voisinage des grains.

α. Plans radicaux :

La partition par les plans radicaux constitue un ensemble de polyèdres particuliers dont on peut analyser la distribution des nombres de faces N_f et des nombres de sommets par face N_s . Les valeurs moyennes \bar{N}_f et \bar{N}_s sont reliées par la relation (Medvedev et Naberukhin 1985) :

$$\bar{N}_s = 6 - \left(\frac{12}{\bar{N}_f}\right)$$

\bar{N}_f représente le nombre moyen de voisins d'une sphère relativement à la partition. Dans le cas de l'empilement ordonné compact (CFC ou HC), $\bar{N}_f = 12$.

Coxeter (1958) a étudié théoriquement les empilements aléatoires de polyèdres et propose la valeur 13,56 pour \bar{N}_f . Selon Bernal (1964), cette étude convient assez mal au cas de la partition d'empilements de sphères.

Les études expérimentales concernent essentiellement les empilements denses. L'empilement dense de Finney (1974) a un nombre moyen de faces $\bar{N}_f = 14,28$; Rahman (1966) trouve une valeur sensiblement égale. Clarke et Wiley (1987) calculent une valeur de 14,1 pour un empilement dense simulé par ordinateur. Voloshin et alii (1985) étudient un empilement cubique face centré "perturbé", c'est-à-dire dont les grains ont été légèrement déplacés de façon aléatoire. Ils trouvent $\bar{N}_f = 14,18$.

Selon Finney (1970), le nombre moyen \bar{N}_f de faces des polyèdres de la partition par les plans radicaux augmente quand la compacité diminue. Dans le cas limite d'un gaz, que l'on peut représenter par un ensemble de points répartis aléatoirement dans l'espace, Meijering (1953) a calculé une valeur limite exacte : $\bar{N}_f = 15,54$. Mais nous ne disposons pas de données expérimentales concernant les empilements réalisés grain par grain ou les empilements lâches.

Nous retiendrons de ces résultats que le nombre moyen de proches voisins d'une sphère dans un empilement aléatoire dense relativement à la partition par les plans radicaux est voisin de 14.

B. Partition par zones d'influence

Nous ne connaissons pas d'études de la partition par zones d'influence d'un empilement de sphères. Nous présentons ici un modèle personnel donnant une expression théorique de l'aire de séparation des grains à une distance d dans un empilement de sphères de même rayon R (pour la définition de ce paramètre, voir § A. 2. b.).

Cette aire peut se calculer en faisant la somme sur toutes les paires de sphères de l'empilement distantes de $\delta < d$ des aires de séparation élémentaires à une distance d .

$$S(d) = \int_0^d N(\delta) s(\delta, d) d\delta \quad (2)$$

$N(\delta) d\delta =$ nombre de paires de sphères par unité de volume séparées par une distance comprise entre δ et $\delta + d\delta$.

$s(\delta, d) =$ aire élémentaire de séparation à une distance d de deux sphères séparées par une distance δ .

Dans la mesure où d est faible, $s(\delta, d)$ peut être calculée dans le cas de deux sphères isolées séparées par une distance δ (figure 10) (Dans un empilement, l'aire de séparation élémentaire entre deux sphères tend vers une limite quand d augmente, du fait de la présence des autres sphères).

$N(\delta) d\delta$ peut s'exprimer grâce à la fonction de distribution radiale $g(r)$:

$$N(\delta) d\delta = N_v^2 \times 4 \Pi r^2 g(r) dr$$

où N_v représente le nombre moyen de sphères par unité de volume et $r = 2R + \delta$.

La fonction $4 \Pi r^2 g(r)$ présente un maximum pour $r = 2R$ ($\delta = 0$). Son évaluation sur des empilements simulés par ordinateur montre qu'elle décroît d'un facteur au moins égal à 10 quand δ passe de 0 à $R/2$ (voir par exemple la figure 11).

On pourra donc assimiler $N(\delta)$ à une fonction de Dirac centrée sur 0. Pour les faibles valeurs de d ($d < R/2$), on écrira :

$$S(d) \approx N(0) s(0, d) \quad (3)$$

$N(0)$ est le nombre de paires de sphères en contact par unité de volume que nous noterons dans la suite N_C .

$s(0, d)$ est la surface élémentaire de séparation à une distance d de deux sphères en contact.

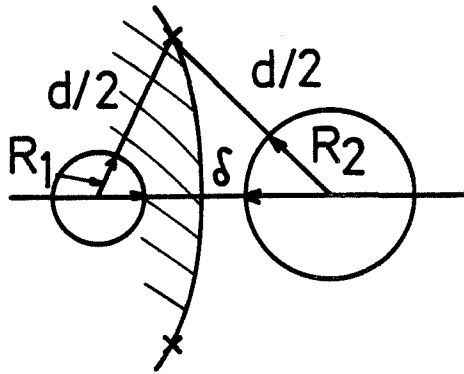


Figure 10 :

Surface de séparation élémentaire à une distance d entre 2 sphères de rayons R_1 et R_2 .

(Vue en coupe).

Evaluation de N_C :

Le produit du nombre de grains par unité de volume N_v par la coordonnée moyenne d'une sphère z est égal à 2 fois le nombre de contacts par unité de volume :

$$N_C = \frac{N_v z}{2} \quad (4)$$

Le nombre de grains par unité de volume peut être relié à la compacité de l'empilement et au rayon des sphères par :

$$N_v = \frac{C}{\frac{4}{3} \pi R^3} \quad (5)$$

et donc

$$N_C = \frac{3 C z}{8 \pi R^3} \quad (6)$$

Evaluation de $s(0, d)$:

$s(0, d)$ a été calculé en Annexe 2 :

$$s(0, d) = \frac{\pi R^2}{4} \left[4 \frac{d}{R} + \left(\frac{d}{R}\right)^2 \right] \quad (7)$$

En reportant (6) et (7) dans (3), on obtient :

$$S(d) \approx \frac{3 C z}{32 R} \left[4 \frac{d}{R} + \left(\frac{d}{R}\right)^2 \right] \quad (8)$$

Les différentes approximations avancées limitent la validité de l'équation (8) au cas des faibles valeurs de d ($d < R/2$ au moins). On ne retiendra alors que la partie linéaire de l'équation. L'allure parabolique de l'équation (8) ne correspond d'ailleurs pas au cas réel puisque $S(d)$ tend vers une limite quand d tend vers l'infini, qui est l'aire totale des surfaces de séparation par zones d'influence de l'empilement. Pour $d = R/2$, on commet une erreur de 11 % seulement en négligeant le terme du second ordre dans l'équation (8) :

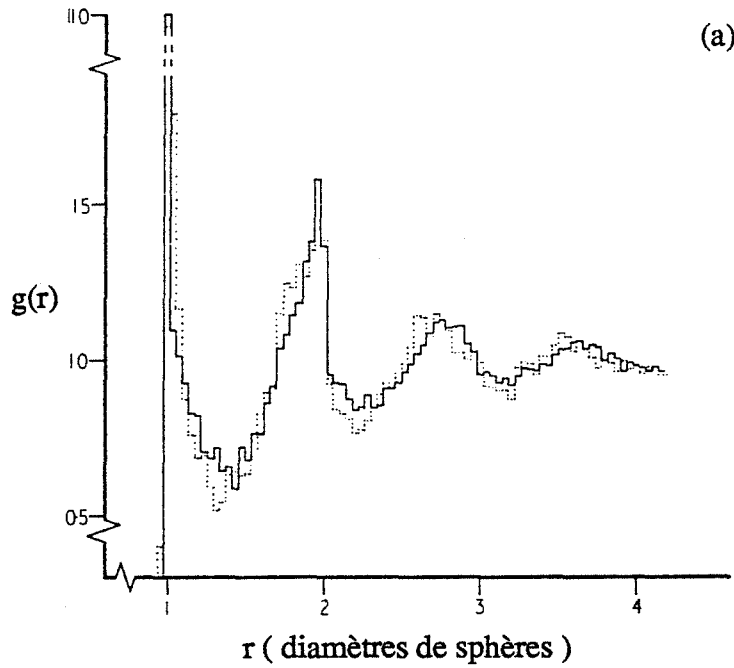
$$S(d) \approx \frac{3 C z}{8 R^2} d \quad \left(d < \frac{R}{2}\right) \quad (9)$$

Pour un mode de construction donné, la compacité et la coordinance moyenne de l'empilement sont en général bien connues. On a alors une expression théorique de l'aire de séparation à une distance d .

c. Fonction de distribution radiale

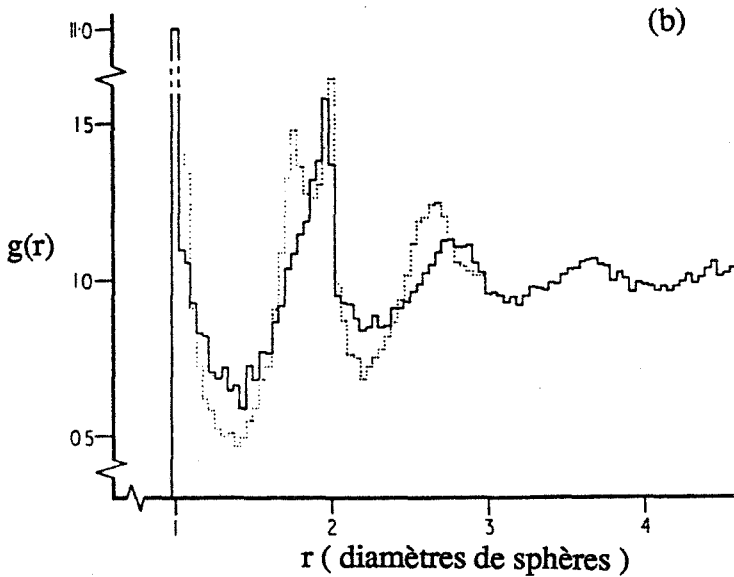
Matheson (1974) compare la fonction de distribution radiale d'un empilement de sphères simulé par ordinateur avec d'une part celle de l'empilement lâche de Scott (1960) et d'autre part celles de l'empilement dense de Finney (1970) (Figure 11).

L'empilement simulé est réalisé grain par grain sous pesanteur, avec un critère de choix de site : chaque sphère est placée dans le site tétraédrique disponible ayant l'énergie la plus basse ; l'empilement a alors une compacité égale à 0,606.



(a)

Figure 11 :
Fonction de distribution radiale d'un empilement simulé grain par grain (—), d'un empilement lâche (a ...) et d'un empilement dense (b ...).
(D'après Matheson 1974)



(b)

L'absence de singularité de la FDR pour $r : \sqrt{2}$, distance caractéristique de la diagonale d'un octaèdre régulier, indique que la structure octaédrique est rare dans les empilements aléatoires. Nous verrons plus loin que les unités de base de l'empilement sont essentiellement des tétraèdres. D'une manière générale, l'absence de pics définis à $\sqrt{2}$, $\sqrt{5}$ et $\sqrt{7}$, caractéristiques des empilements compacts ordonnés, ainsi que la diminution de l'amplitude des oscillations de la FDR quand r dépasse 2 diamètres prouvent l'inexistence d'ordre à longue distance dans les empilements aléatoires.

La FDR de l'empilement dense présente des singularités pour $r = 1 ; 1,63 ; 1,73$ et 2 diamètres de sphères. Le décrochement pour $r = 1,63$ est assez mal défini. Ces résultats sont confirmés par d'autres auteurs (Jodrey et Tory 1981, Clarke et Wiley 1987). Bennett (1972) explique ce fait par la présence dans cet empilement de configurations particulières de sphères en contact, qui conduisent à une discontinuité dans la distribution des distances entre sphères (figure 12). Par exemple, la distance entre les sphères extrêmes d'un triplet de sphères en contact ne peut dépasser la valeur 2 (figure 12a).

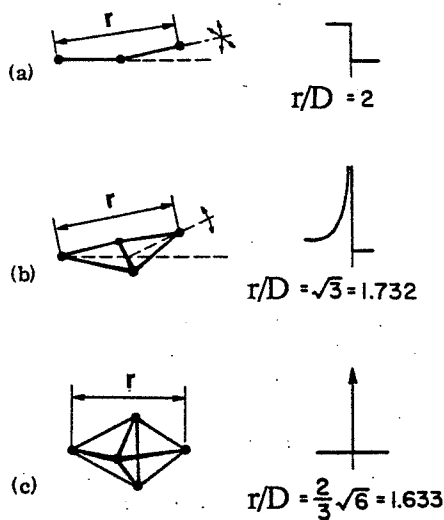


Figure 12 :

Configurations de sphères en contact créant des discontinuités dans la FDR (deux points reliés par une ligne représentent deux sphères en contact).

(D'après Bennett 1972)

La FDR de l'empilement réalisé grain par grain ne présente pas de singularités à 1,63 et 1,73 (figure 11a), indiquant l'inexistence des configurations (b) et (c) de la figure 12 dans ces empilements. Tory et alii (1973) obtiennent le même résultat. La FDR de l'empilement lâche de Scott présente en revanche une amorce de pic à $\sqrt{3}$ (figure 11a) et les maxima à $\sqrt{5}$ et $\sqrt{7}$ tendent à se rapprocher de ceux de la FDR de l'empilement dense. Matheson explique ces différences par le fait que le roulement des sphères à la surface de l'empilement lors de sa construction crée quelques configurations caractéristiques d'un empilement vibré. De ce point de vue, l'empilement lâche est intermédiaire entre l'empilement réalisé grain par grain et l'empilement dense.

Les empilements simulés par ordinateur avec un algorithme de construction sous force centrale sont en général inhomogènes (Matheson 1974) : ils sont plus denses et plus ordonnés autour de la sphère centrale. La FDR de ces empilements présente en général un pic plus ou moins large à $\sqrt{3}$ (Bennett 1972, Adams et Matheson 1972).

En résumé, l'analyse de la FDR montre que le passage de l'empilement réalisé grain par grain à l'empilement dense se traduit par l'apparition d'un ordre à courte distance. L'empilement dense ne présente cependant pas d'ordre à longue distance.

d. Géométrie du milieu poreux

α . Distribution de taille des pores obtenue par un découpage

Nous étudierons la distribution des polyèdres de coordinance et des polyèdres du graphe de Delaunay (Annexe 1).

Polyèdres de coordinance (ou cavités polyédriques)

Ce sont les polyèdres obtenus en joignant les centres des sphères en contact. C'est à Bernal (1964) que l'on doit l'analyse de ces polyèdres, qu'il nomme cavités polyédriques ("polyhedral holes"). L'analyse, faite sur des empilements aléatoires denses de billes d'acier par la méthode de "peinture des contacts" inclut les proches voisins avec une tolérance égale à 5 % du diamètre des sphères. Les polyèdres obtenus sont de 5 types (figure 13). Ce sont des deltaèdres, c'est-à-dire des polyèdres à faces triangulaires et dont les arêtes sont égales. On note une très nette prédominance des cavités tétraédriques (73 %).

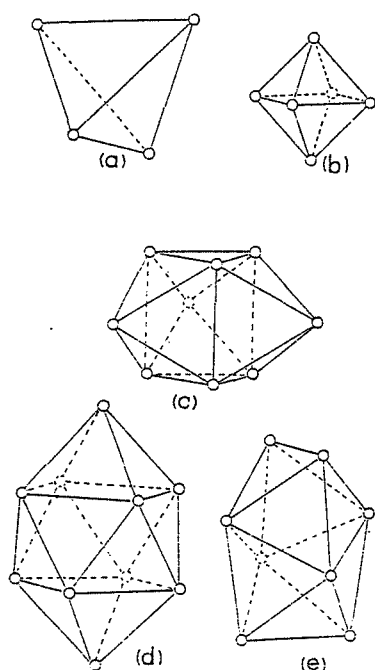


Figure 13 :

Les cinq cavités polyédriques définies par Bernal (1964).

Types de polyèdres denses

Fréquence dans les empilements aléatoires

(a) tétraèdre	73	%
(b) demi-octaèdre	20,3	%
(c) prisme trigonal	3,2	%
(d) Antepisme d'Archimède	0,4	%
(e) Dodécaèdre tétragonal	3,1	%

Bernal note la présence de quelques polyèdres plus grands que les cinq polyèdres canoniques qu'il explique par l'existence de voûtes ("domes"). L'empilement qu'il étudie a une compacité de 0,62 semble-t-il (du moins s'il s'agit bien du même empilement que celui présenté par Bernal et Mason en 1960). Il n'est donc pas parfaitement dense, ce qui peut justifier l'existence de voûtes. Il est probable que ces cavités non répertoriées soient plus nombreuses dans l'empilement lâche. De même les trois derniers polyèdres, qui sont moins denses. Nous ne connaissons pas de telle étude sur les empilements lâches.

Graphe de Delaunay :

On l'obtient en joignant les centres des sphères voisines relativement à la partition par les plans radicaux. Il est constitué exclusivement de tétraèdres.

Frost et Raj (1982) ont calculé numériquement, à partir des coordonnées des sphères de l'empilement dense de Finney, la distribution de taille de ces tétraèdres. Ils représentent la taille d'un tétraèdre par le rayon k_o de la sphère maximale que l'on peut inclure à l'intérieur du tétraèdre, en contact avec les 4 sphères placées aux sommets. Ils expriment ce "rayon de la cavité" sous la forme de fraction du rayon des sphères de l'empilement. La valeur minimale k_c de k_o correspond au cas du tétraèdre régulier : $k_c = 0,22$. La figure 14 montre la distribution des valeurs de k_o calculée. Oger (1987) propose une fonction analytique qui modélise bien cette distribution (figure 14) :

$$p(k_o) = A (k_o - k_c) e^{-\frac{(k_o - k_c)}{(k_m - k_c)}} \quad (10)$$

où k_m représente le maximum de la courbe.

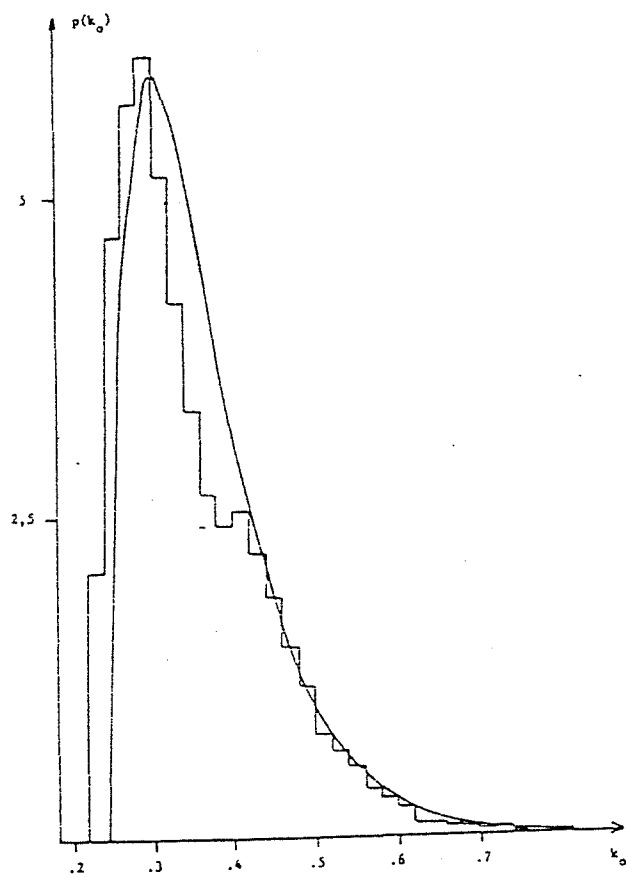


Figure 14 :
Distribution des rayons des cavités
dans l'empilement dense de Finney.
(D'après Frost et Raj 1982)
La courbe représente l'équation (10).
(Oger 1987)

β . Distribution de tailles des pores obtenue par ouverture

En utilisant la transformation d'ouverture par une sphère de rayon λ , on peut définir une fonction de distribution de taille des pores $G(\lambda)$ (Annexe 5). $G(\lambda)$ représente alors la fraction de l'espace poreux dans laquelle on peut inclure une sphère de rayon λ .

Gotoh et alii (1986) définissent une fonction granulométrique un peu différente, que nous noterons $G'(\lambda)$. Elle représente la fraction de l'espace total dans laquelle on peut inclure une sphère de rayon λ qui ne contienne aucun des centres des sphères de l'empilement (figure 15).

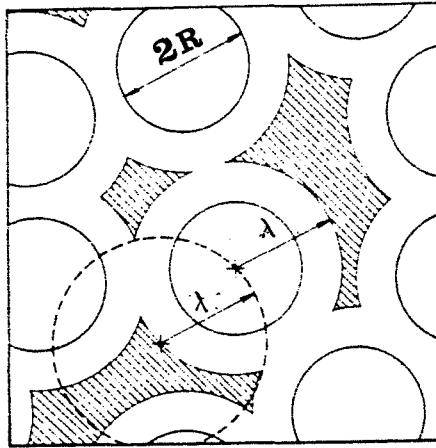


Figure 15 :

Illustration à 2 D de la distribution granulométrique utilisée par Gotoh et alii.

Les parties hachurées correspondent à $G'(\lambda)$.

(D'après Gotoh et alii 1986).

Nous pouvons relier les distributions G et G' par :

$$(1 - C) G(\lambda) = G'(\lambda + R) \quad (\lambda \geq 0)$$

Gotoh et alii calculent théoriquement la distribution $G'(\lambda)$ en utilisant une expression théorique de la fonction de distribution radiale d'un fluide. La distribution $G(\lambda)$ que nous avons calculée à partir de G' est une fonction de la compacité C et du rayon R des sphères de l'empilement.

$$G(\lambda) = \exp \left[\frac{C}{(1-C)^2} \left[1 - \frac{5}{2}C + \frac{9}{2}C \left(1 + \frac{R}{\lambda}\right)^2 - (1+2C) \left(1 + \frac{\lambda}{R}\right)^3 \right] \right] \quad (11)$$

Gotoh et alii ont comparé leur loi de distribution théorique à celle calculée d'une part avec l'empilement simulé grain par grain de Tory et alii (1973), d'autre part avec l'empilement dense de Finney (1970). L'accord est relativement satisfaisant ce qui laisse à penser que l'équation (11) décrit bien la géométrie de l'espace poreux d'un empilement de sphères de même taille à différentes compacités, du moins si l'empilement ne contient pas trop de voûtes.

Nous ne connaissons pas d'étude théorique analogue de granulométrie par ouverture par des disques sur une coupe plane ou par des segments sur un intercept linéaire ce qui est regrettable car ce sont ces distributions que l'on peut mesurer par analyse d'images.

e. Distribution de la porosité (ou de la compacité) locale

Haughey et Beveridge (1966) font un calcul semi-empirique de la distribution de la porosité locale mesurée dans des cellules sphériques de rayon donné centrées au centre des sphères de l'empilement. Leur calcul utilise les distributions de proches voisins (distance entre centres inférieure à 1,05 diamètre) mesurées par différents auteurs (Bernal et Mason 1960 pour un empilement lâche et un empilement dense, Wadsworth 1960 pour un empilement versé de compacité intermédiaire). La figure 16 montre les distributions qu'ils obtiennent avec des cellules de rayon $2R$: la distribution de la porosité locale de l'empilement dense est plus étroite que celle de l'empilement lâche.

Tory et alii (1973) calculent la distribution de porosité locale dans des cellules sphériques de rayon donné placées de manière aléatoire dans un empilement simulé grain par grain (les cellules ne sont plus placées systématiquement au centre des grains). Ils obtiennent des courbes assez symétriques qu'ils modélisent par une loi de distribution normale (figure 17).

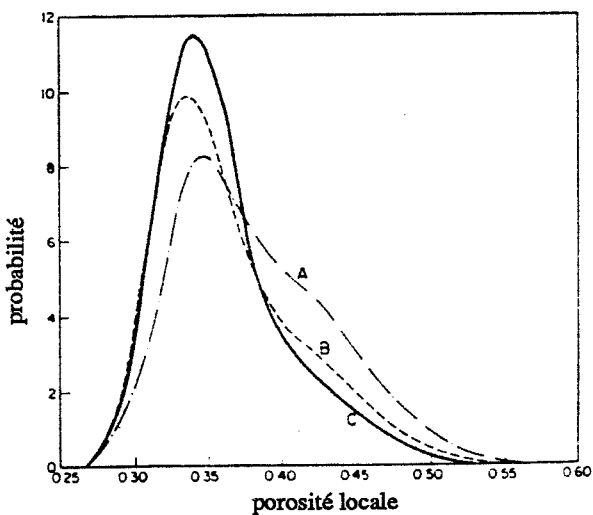


Figure 16 :

Distribution théorique de la porosité locale calculée dans des cellules de rayon $2R$,

- A. Empilement lâche
- B. Empilement versé
- C. Empilement dense.

(D'après Haughey et Beveridge (1966))

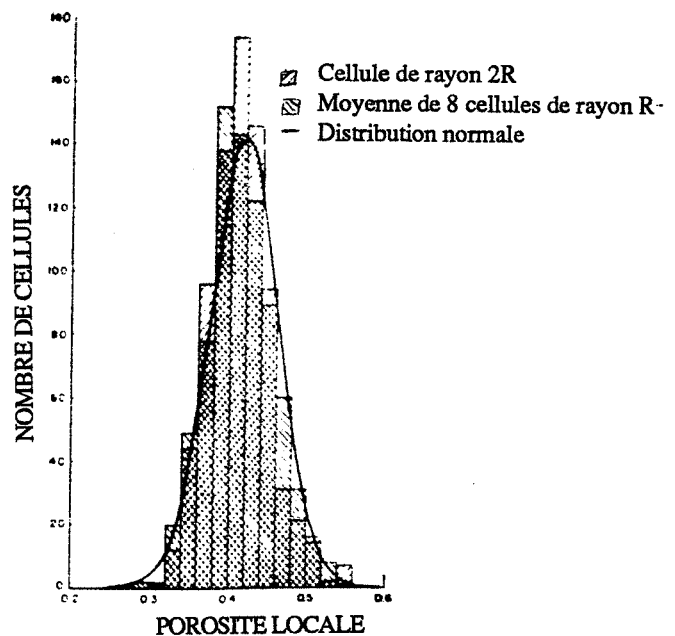


Figure 17 :

Distribution de la porosité locale calculée dans des cellules de rayon $2R$, pour un empilement simulé grain par grain.

(D'après Tory et alii (1973))

Tory et alii (1973) comparent leurs résultats à ceux de Haughey et Beveridge pour des cellules de rayon $2R$, bien que le mode de placement des cellules ne soit pas le même dans les deux cas. L'allure de leur courbe de distribution est plus proche de celle de l'empilement dense de Haughey et Beveridge, bien que la porosité moyenne soit plus grande (0,415 au lieu de

0,36). En fait, même si la porosité moyenne de l'empilement lâche est plus faible (0,40) que celle de l'empilement réalisé grain par grain de Tory et alii, la distribution de porosité locale dans l'empilement lâche est bien plus large, probablement du fait de l'existence de voûtes dans cet empilement.

C. LES EMPILEMENTS DE GRAINS REELS - ECARTS AU MODELE IDEAL

Nous citerons dans ce paragraphe quelques effets susceptibles d'induire un écart aux caractéristiques de l'empilement aléatoire de sphères que nous avons décrit dans le paragraphe précédent.

1. EFFET DE PAROI

Tout d'abord, l'empilement réel n'est jamais infini. Il est réalisé dans un récipient dont les parois peuvent avoir un effet sur ses caractéristiques. Nous avons vu comment Scott (1960) s'affranchit de cet effet en mesurant la compacité dans des cylindres de différents diamètres et en extrapolant ses mesures pour un diamètre infini. Pratiquement, une telle méthode est lourde à mettre en oeuvre et il est préférable de pouvoir prévoir l'influence de l'effet de paroi sur les caractéristiques de l'empilement.

Benenati et Brosilow (1962) ont étudié la variation de la porosité locale d'un empilement de sphères au voisinage d'une paroi plane (figure 18). Cette porosité est mesurée dans des couches planes de faible épaisseur parallèles à la paroi. La présence de la paroi induit un ordre à courte distance dans l'empilement qui se traduit par une variation sinusoïdale amortie de la porosité avec la distance à la paroi. Cette variation s'estompe à une distance de l'ordre de 3 à 4 fois le diamètre des sphères. Dans la pratique, on évitera donc d'effectuer des mesures locales à une distance de la paroi du récipient inférieure à 4 fois le diamètre des sphères.

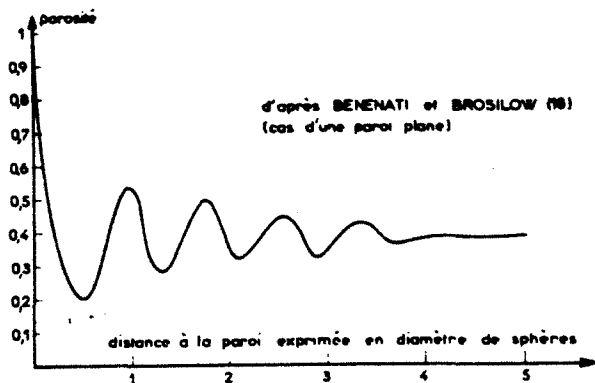


Figure 18 :
Variation de la porosité locale en fonction de la distance à une paroi plane.
(Benenati et Brosilow 1962)

Par ailleurs, de nombreux auteurs ont étudié l'influence de l'effet des parois du récipient sur la porosité totale de l'empilement (Brown et Hawksley 1946, Mac Geary 1961, Ben Aïm 1970). Nous retiendrons l'expression théorique calculée par Ben Aïm en fonction du rapport d/D du diamètre des sphères sur le diamètre du récipient pour un récipient cylindrique d'une part, et pour un récipient sphérique d'autre part :

$$\frac{1 - \emptyset}{1 - \emptyset_0} \# 1 + 0,6 \frac{d}{D} \text{ (cylindrique)} \quad (12)$$

$$\frac{1 - \emptyset}{1 - \emptyset_0} \# 1 + 0,9 \frac{d}{D} \text{ (sphérique)} \quad (13)$$

\emptyset_0 représentant la porosité de coeur de l'empilement.

Ben Aïm a comparé les expressions théoriques obtenues avec différents résultats expérimentaux et trouve un bon accord. Pratiquement, lorsqu'on opère avec un récipient cylindrique de diamètre supérieur à 20 fois le diamètre des sphères, l'erreur faite sur la mesure de la porosité sera inférieure à 5 %. L'utilisation d'un récipient trop petit aura un autre effet néfaste : l'empilement est moins homogène du point de vue de ses caractéristiques. Chan et Ng (1986) ont montré que le profil de variation de la porosité locale de l'empilement présente des fluctuations importantes quand la taille du récipient diminue.

2. EFFET D'UNE DISPERSION DE TAILLE DE SPHERES

Dans un empilement réel, les grains présentent toujours une dispersion de taille, si faible soit-elle.

Wakeman (1975) a étudié comment variait la porosité d'empilements de billes de plomb présentant une loi de distribution des diamètres de type log-normal avec l'écart type géométrique de la loi de distribution σ_g . Il réalise d'une part des empilements très peu denses (par sédimentation dans un fluide), d'autre part des empilements denses. Dans les deux cas, la porosité diminue quand l'écart type de la loi de distribution augmente. Pour l'empilement dense, Wakeman compare la variation mesurée à une loi empirique proposée par Sohn et Moreland (1968) :

$$\emptyset = a - \frac{b}{\sigma_g} \quad (14)$$

Il observe la même loi de variation pour deux valeurs différentes du diamètre moyen (195 et 327 microns). Les constantes a et b qu'il obtient ont pour valeur :

$$a = 0,958 \text{ et } b = 0,275.$$

Sohn et Moreland précisent que l'équation (14) n'est valable que pour $\sigma_g \geq 1,5$ (la limite pour $\sigma_g = 1$, qui correspond à l'empilement monotaille, donnerait d'ailleurs une porosité de 0,317 au lieu de 0,36). Pour l'empilement très peu dense, la porosité ne varie pas tant que $\sigma_g \leq 1,4$. Elle diminue ensuite quand σ_g augmente. Les valeurs de la porosité dépendent alors beaucoup de la taille des sphères, comme nous l'avons vu (§ B. 1. b.α.).

Nous retiendrons que d'une manière générale, l'effet d'une dispersion de taille des sphères est d'augmenter la valeur de la compacité par rapport à la valeur que nous avons définie pour l'empilement de grains identiques.

3. EFFET DE LA NON-SPHERICITE DES GRAINS

L'influence de la forme des grains sur les caractéristiques de l'empilement est un sujet complexe dont nous n'aborderons ici que quelques aspects. Tout d'abord, nous ne traiterons que le cas des grains convexes, qui est le plus courant. En simplifiant, on peut dire que la forme d'un grain réel peut se différencier de la sphère par deux aspects importants :

- l'anisotropie qui caractérise le fait que la taille de l'objet dépend de façon sensible de la direction dans laquelle on la mesure. L'ellipsoïde, par exemple est une forme anisotrope.
- la régularité de sa surface, caractérisée, entre autres, par l'existence de points anguleux.

Nous ne connaissons pas d'étude de l'influence de chacun de ces paramètres pris indépendamment. Un certain nombre de résultats concerne cependant les empilements de grains non sphériques.

Sohn et Moreland (1968) ont mesuré la compacité d'empilements denses de grains de sable de provenances différentes dont ils caractérisent la forme par la "sphéricité" moyenne ψ des grains (Wadell 1929). Ce paramètre est le rapport de l'aire de la sphère de même volume qu'un grain sur l'aire du grain. Ils utilisent des distributions de taille log-normales et les résultats qu'ils obtiennent en fonction de l'écart-type géométrique de la loi de distribution sont représentés sur la figure 19, ainsi que ceux de Wakeman pour des grains parfaitement sphériques. Comme pour les grains sphériques, la compacité augmente avec σ_g . Pour une largeur de distribution donnée, la compacité est d'autant plus grande que les grains ont une forme proche de la sphère.

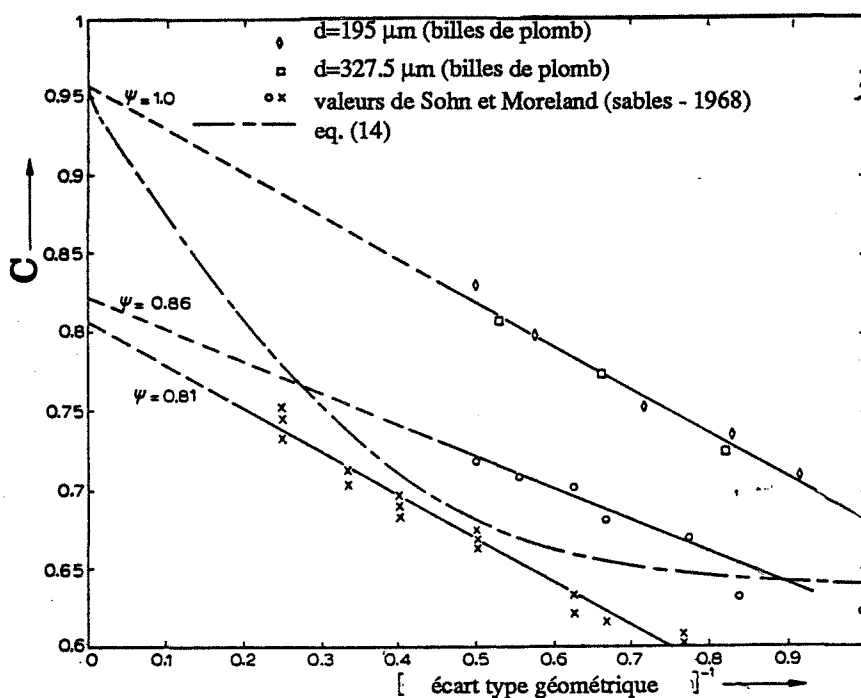


Figure 19 :
Variation de la compacité avec l'écart type géométrique de la distribution pour des grains de différentes sphéricités ψ . (D'après Wakeman 1975)

Concernant les grains polyédriques, le point important est l'existence de faces planes qui modifie les conditions d'équilibre de l'empilement. En effet, la force de liaison (force de frottement + force d'adhésion) est bien plus grande pour un contact plan que pour un contact ponctuel. Ainsi, un grain pourra être en équilibre sous pesanteur avec une seule liaison d'appui (figure 20). De ce fait, les configurations d'équilibre collectif seront plus stables avec des grains polyédriques qu'avec des grains sphériques.

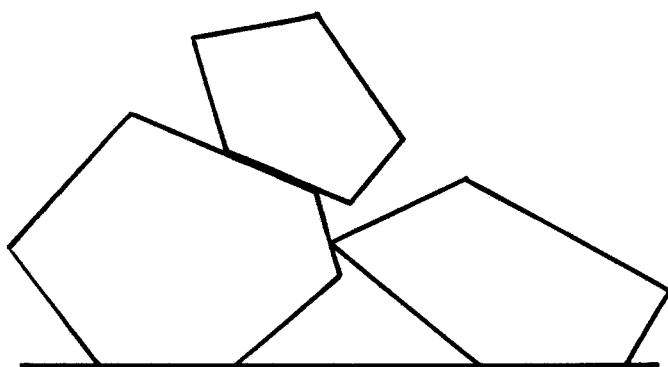


Figure 20 :
Représentation à 2 D de l'équilibre sous pesanteur d'un grain polyédrique.

Ammi et alii (1987) ont étudié des empilements aléatoires de polygones à 2 D et ont montré qu'on pouvait atteindre une compacité aussi faible que 0,78 avec des pentagones, alors que la compacité de l'empilement aléatoire de disques identiques à 2 D est de 0,82 (voir § III.). Celle-ci augmente avec le nombre de faces des polygones, c'est-à-dire quand la forme se rapproche de celle du disque.

Meldau et Stach (1934) observent sur des coupes d'empilements de sphères d'une part, de grains de forme plutôt polyédrique d'autre part, que les voûtes sont plus nombreuses dans l'empilement de grains polyédriques (figure 21). La vibration d'un tel empilement conduit à ce que Meldau et Stach appellent la "conjonction" de particules ("conjonction") c'est-à-dire la mise en commun de faces de contact par glissement ou rotation des grains (figure 22). Cet effet est d'autant plus marqué si les grains sont anisotropes (plaquettes) et les grains ont alors tendance à s'orienter suivant le plan horizontal de manière à trouver une position d'équilibre la plus stable possible. La compacité augmente alors. Malheureusement, Meldau et Stach n'ont pas cherché à mesurer ce paramètre.

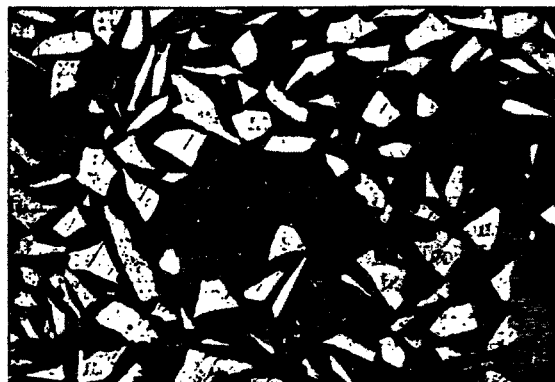


Figure 21 :
Vue en coupe d'un empilement lâche de grains d'antracite mettant en évidence un effet de voûte.

a)



b)



Figure 22 :

Vue en coupe d'empilements vibrés de grains d'anhracite. La figure (a) montre l'orientation privilégiée des grains anisotropes suivant la direction horizontale, la figure (b) la "conjonction" de grains moins anisotropes.

La coordinance moyenne dans les empilements lâches de polyèdres est probablement plus faible que dans les empilements de sphères bien que nous n'ayons pas de preuve expérimentale de ce fait à 3 D. Ammi et alii (1987) mesurent une coordinance moyenne de 3,30 sur un empilement de pentagones à 2 D. Comme la compacité, celle-ci augmente avec le nombre de faces des polygones pour tendre vers la valeur 4 mesurée pour des empilements aléatoires de disques.

Pour conclure ce paragraphe, retenons que **la compacité des empilements de particules non sphériques est en général plus faible que celle des empilements de sphères** (sauf peut-être en ce qui concerne l'empilement vibré de polyèdres). Il est probable que la coordinance de l'empilement lâche de particules polyédriques soit également plus faible que celle de l'empilement lâche de sphères.

4. INHOMOGENEITE - ANISOTROPIE DANS LES EMPILEMENTS

Les caractéristiques de l'empilement ne sont pas toujours dispersées de façon uniforme dans l'espace. On observe parfois des directions privilégiées, ou des zones qui présentent des caractéristiques sensiblement différentes des caractéristiques moyennes de l'empilement. Ces inhomogénéités peuvent avoir plusieurs origines :

- l'effet de paroi (voir § 1.)
- l'effet de la pesanteur :

La réalisation de l'empilement sous pesanteur implique peut-être que la direction verticale est une direction privilégiée de l'empilement. Tory, Church et alii (1973) se sont penchés sur le problème en analysant la distribution des distances entre sphères en contact en

projection sur l'axe vertical dans un empilement simulé grain par grain sous pesanteur. Cette distribution a une valeur moyenne R si l'empilement est isotrope. Ils observent en fait une valeur légèrement supérieure ($1,1 R$). Il est probable que cette anisotropie soit le fait de la régularité du mode de construction et cet effet est sûrement moins marqué dans les empilements réels.

Un autre effet de la pesanteur peut être l'inhomogénéité de l'empilement suivant sa hauteur. Macrae (1961) remarque que l'empilement lâche, réalisé en faisant rouler lentement la poudre dans un cylindre, est homogène suivant la hauteur. Debbas et Rumpf (1966) observent par contre que la compacité est plus faible dans la partie haute d'un empilement lâche. Il faut noter toutefois que ces auteurs utilisent des billes de plomb de diamètre supérieur au millimètre, par conséquent, d'une part l'énergie mécanique apportée par les particules en chute est grande, d'autre part la pression exercée sur les couches inférieures de l'empilement est importante.

L'effet de la pesanteur sur des grains anisotropes peut conduire à une orientation préférentielle de ces grains, comme nous l'avons vu pour des grains polyédriques (figure 27).

- Apparition de structures ordonnées :

Nous avons vu que dans certaines conditions, apparaissait un ordre à longue distance au sein de l'empilement (§ B. 1. b. γ). Cet ordre est souvent localisé. Macrae (1961) note par exemple sur des empilements vibrés trop longtemps l'apparition de structures ordonnées dans le haut de l'empilement. L'emploi d'un mode de construction par couche (§ B. 1. c.) conduit en général à un empilement plus homogène.

CHAPITRE II. L'EMPILEMENT DE GRAINS DISCERNABLES.

Dans ce chapitre, nous supposons que les particules constituant l'empilement ne sont plus toutes identiques mais sont discernables par leur nature chimique, par leur forme, par leur taille, etc... Nous dirons alors que l'empilement contient plusieurs "espèces". Nous commencerons par étendre les paramètres caractéristiques définis au chapitre I au cas de l'empilement de grains discernables. Puis nous étudierons le problème de l'homogénéité de l'empilement. Enfin, nous analyserons quelques caractéristiques de l'empilement dans le cas idéal d'un empilement homogène de sphères de différents rayons. Par souci de simplification, nous étudierons des empilements contenant 2 espèces seulement. Certains résultats sont cependant aisément transposables au cas d'un empilement contenant plus de 2 espèces.

A. PARAMETRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT

Nous représenterons par un indice i les paramètres caractéristiques de l'espèce i ($i = 1$ ou 2), par le double indice ij les paramètres caractéristiques d'un couplage des deux espèces i et j . Certains paramètres définis au § I. restent valables ici. Nous ne les redéfinirons pas. Les notations utilisées sont rassemblées à la fin de la thèse.

1. COMPACTITE C - POROSITE \emptyset

2. PARAMETRES DECRIVANT LE VOISINAGE DES GRAINS

a. Coordinances

En plus de la coordinance moyenne globale z , on définit la coordinance moyenne z_i de l'espèce i qui est le nombre moyen de contacts par grain de l'espèce i . La coordinance moyenne z se déduit des coordinances moyennes z_i par :

$$z = \sum_i n_i z_i \quad (1)$$

où n_i est la fraction numérique des grains de l'espèce i .

On définit également la coordinance partielle moyenne z_{ij} qui est le nombre moyen de contacts i - j par grain de l'espèce i . z_{ij} et z_{ji} sont reliés par :

$$n_i z_{ij} = n_j z_{ji} \quad (2)$$

Les coordinances moyennes se déduisent des coordinances partielles par :

$$z_i = \sum_j z_{ij} \quad (3)$$

b. Fractions de contacts

On appellera fraction de contacts i - j , notée t_{ij} , le rapport du nombre de contacts entre grains i et grains j sur le nombre total de contacts. Les fractions de contacts sont reliées aux coordinances partielles (Dodds 1975) :

$$t_{ii} = \frac{n_i z_{ii}}{z}$$

$$t_{ij} = \frac{n_i z_{ij} + n_j z_{ji}}{z} = \frac{2 n_i z_{ij}}{z} = \frac{2 n_j z_{ji}}{z}$$
(4)

c. Analyse par partition

La partition par zones d'influence, ou par les plans radicaux dans le cas de sphères, peut être appliquée à l'étude d'empilements de grains discernables (Annexe 1). Comme dans le cas de l'empilement de grains identiques, elle fournit des renseignements sur le voisinage des grains (§ I. A. 2. b.). Les surfaces de séparation de la partition par zones d'influence (resp. les faces des polyèdres de la partition par les plans radicaux) peuvent être distinguées suivant le type de grains i et j qu'elles séparent. Ainsi, analyser la distribution des nombres de voisins j d'un grain i relativement à la partition par zones d'influence revient à analyser la distribution des nombres de surfaces de séparation i - j autour des grains i . Dans le cas de sphères, analyser la distribution des nombres de voisins j d'un grain i relativement à la partition par les plans radicaux revient à analyser la distribution des nombres de faces i - j des polyèdres de la partition.

A partir de la partition par zones d'influence, nous définissons la fonction $S_{ij}(d)$ qui mesure, par unité de volume, l'aire de la partie des surfaces de séparation i - j par zones d'influence dont les points sont situés à une distance inférieure à $d/2$ des bords des grains. Cette fonction, que nous appellerons aire de séparation des grains i - j à une distance d nous permettra une étude expérimentale du voisinage des grains par analyse d'images (§ IV. 4. C.). Quand d tend vers 0, l'aire de séparation par zones d'influence tend vers l'aire de contact entre grains par unité de volume.

d. Fonction de distribution radiale (FDR)

Comme nous l'avons fait pour la coordinance, il est facile d'étendre la définition de la FDR donnée au § I. A. 2. c. au cas de l'empilement de grains discernables. On définit alors la fonction de distribution radiale $g_i(r)$ de l'espèce i . La fonction de distribution globale se déduit des $g_i(r)$ par :

$$g(r) = \sum n_i g_i(r)$$

On peut également définir des fonctions de distribution radiale partielles $g_{ij}(r)$. $g_{ij}(r)$ et $g_{ji}(r)$ sont reliées par :

$$n_i g_{ij}(r) = n_j g_{ji}(r)$$

3. PARAMETRES DECRIVANT LA GEOMETRIE DU MILIEU POREUX

Les paramètres que nous avons définis au § I. A. 3. ne faisaient aucune hypothèse sur la géométrie des grains. Ils peuvent donc tout aussi bien être appliqués à l'étude de l'empilement de grains discernables.

4. ENCOMBREMENT D'UN GRAIN (BEN AIM 1970)

On appelle volume granulaire (apparent) partiel des grains de l'espèce i , notée \overline{V}_i^a , la dérivée partielle du volume apparent de l'empilement par rapport à N_i :

$$\overline{V}_i^a = \left(\frac{d V^a}{d N_i} \right)_{N_j} \quad (5)$$

Il permet d'affecter à chaque grain de l'espèce i une fraction de volume de l'empilement. C'est l'analogue du volume molaire partiel pour les mélanges liquides.

Le volume granulaire apparent \overline{V}^a , tel qu'il a été défini au § I. A. 4. s'exprime alors par :

$$\overline{V}^a = \sum_i n_i \overline{V}_i^a \quad (6)$$

On appelle coefficient d'encombrement e_i d'un grain i le rapport du volume granulaire partiel \overline{V}_i^a sur le volume granulaire \overline{V}_i de l'espèce i (volume d'un grain) :

$$e_i = \frac{\overline{V}_i^a}{\overline{V}_i} = \frac{1}{\overline{V}_i} \left(\frac{d V^a}{d N_i} \right)_{N_j} \quad (7)$$

Ce paramètre prendra toute son importance dans l'étude de la compacité des mélanges binaires de sphères.

B. HOMOGENEITE DU MELANGE

Dans ce paragraphe, nous supposons que l'empilement est constitué de deux espèces 1 et 2, discernables par leur nature chimique, par la forme ou par la taille de leurs grains, etc... Notre problème est de définir l'état d'homogénéité du mélange.

Dans un premier temps, nous définirons les concepts de "l'analyse macroscopique" de l'homogénéité. Puis nous verrons comment on peut utiliser ces concepts dans une étude plus générale de l'homogénéité des mélanges. Enfin, nous décrirons quelques-uns des mécanismes qui régissent l'homogénéisation des mélanges granulaires.

B₁. ANALYSE DE L'HOMOGENEITE D'UN MELANGE

L'analyse que nous présentons peut s'appliquer tout aussi bien aux mélanges granulaires qu'aux mélanges liquides ou gazeux. Nous appellerons particule la plus petite entité capable d'un mouvement propre dans le mélange. Ainsi, les particules pourront représenter aussi bien les grains d'un empilement que les molécules d'un gaz ou d'un liquide.

1. Analyse macroscopique de l'homogénéité - les concepts de l'analyse

On peut définir l'homogénéité d'un mélange, de façon simple et presque intuitive, sous la forme suivante :

Définition :

Un mélange est dit homogène si sa composition, mesurée en différents points placés uniformément dans le mélange, ne varie pas.

Cette définition appelle 3 remarques :

1. La notion d'homogénéité, ainsi définie, n'est pas une notion intrinsèque. Elle est liée à une mesure.
2. Pratiquement, la mesure de la composition $h(x)$ en un point x n'est pas possible. On effectue la mesure dans des volumes élémentaires V_x prélevés en différents points x . On dira qu'on fait **une analyse par prélèvements**. L'analyse va alors dépendre de la taille V des prélèvements effectués (voir § 2.).
3. La définition suppose que l'on néglige les variations statistiques de la composition, qui subsistent même lorsque le mélange est homogène (voir § 2.).

Pour pouvoir appliquer la définition précédente, supposons que l'on effectue des prélèvements dont la taille V est grande vis-à-vis de la taille des particules du mélange, mais petite vis-à-vis de l'échelle d'analyse, c'est-à-dire qu'on ne cherchera pas à mettre en évidence des phénomènes de ségrégation à une échelle inférieure à la taille des prélèvements. On dira alors que l'on fait une analyse macroscopique de l'homogénéité. Les prélèvements contenant un grand nombre de particules, on conçoit que les fluctuations statistiques de la composition pourront être négligées vis-à-vis des fluctuations dues à une ségrégation (ceci sera démontré au § 2.).

Avec ces hypothèses, Danckwerts (1953), caractérise la ségrégation dans un mélange par deux paramètres.

a. L'intensité de ségrégation

Ce paramètre caractérise l'amplitude des fluctuations de la composition au sein du mélange. Il sera relié à la variance de la composition $\sigma^2(h(x))$. Considérons deux cas limites.

α. Ségrégation totale

Dans ce cas, on suppose que les deux espèces 1 et 2 occupent les domaines disjoints de taille grande devant V (Figure 1). On peut alors considérer que la ségrégation est totale à l'échelle V : la composition $h(x)$ dans chaque prélèvement vaudra 0 ou 1. Supposons que $h_2(x)$ mesure la composition volumique de l'espèce 2 au point x , et notons $P = E(h_2(x))$ la composition volumique moyenne. Les prélèvements effectués auront alors une probabilité P d'avoir une composition $h_2(x) = 1$, et une probabilité $(1-P)$ d'avoir une composition $h_2(x) = 0$. La variance $\sigma^2(h_2(x))$, que nous noterons σ_0^2 , vaudra donc :

$$\sigma_0^2 = P(1-P)^2 + (1-P)(0-P)^2 = P(1-P) \quad (8)$$

β. Mélange homogène

Dans ce cas, par définition, la composition est la même en tout point du mélange, on a donc :

$$\sigma^2 (h_2 (x)) = 0$$

Dans la pratique, on aura :

$$\sigma^2 (h_2 (x)) \ll \sigma_0^2$$

Danckwerts définit alors l'intensité de ségrégation I du mélange sous la forme :

$$I = \frac{\sigma^2 (h_2 (x))}{\sigma_0^2} \quad (9)$$

I vaut 1 quand la ségrégation est totale et 0 pour un mélange homogène.

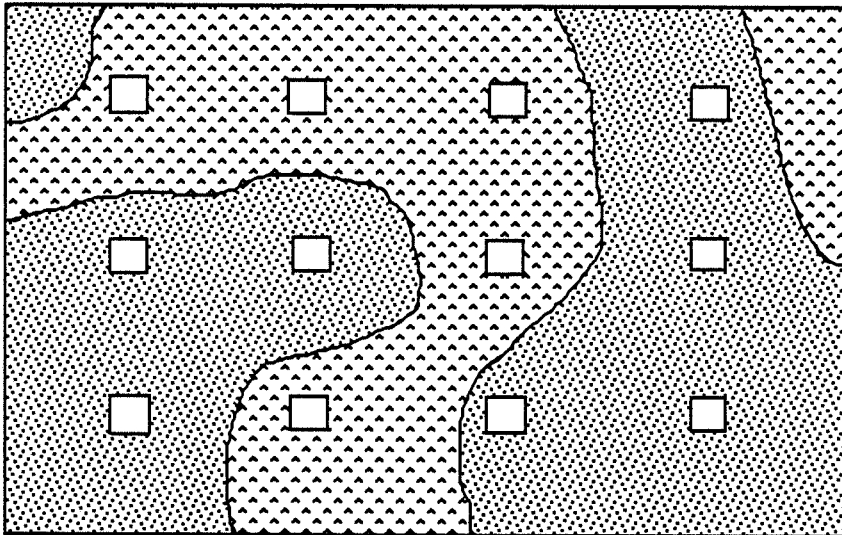


Figure 1 :
Ségrégation totale dans un mélange binaire.
Les carrés figurent les prélèvements.

b. L'échelle de ségrégation

L'intensité de ségrégation ne suffit pas, en général, pour décrire l'état d'homogénéité d'un mélange (sauf si $I = 0$). Dans le cas d'une ségrégation totale par exemple (Figure 1), la taille des domaines va également avoir une importance.

Quelques définitions :

On définit la **covariance** de la composition à la distance r par :

$$\text{Cov} (r) = E \{ (h_2 (x) - P) (h_2 (x + r) - P) \} = E \{ h_2 (x) h_2 (x + r) \} - P^2 \quad (10)$$

Serra (1982) utilise la fonction $C (r)$ qu'il appelle "**covariance non centrée**" :

$$C (r) = E \{ h_2 (x) h_2 (x + r) \} \quad (11)$$

Cette fonction sera très utile dans un cas particulier (§ 3.).

A partir de la covariance, Danckwerts (1953) définit un **coefficient de corrélation** de $h_2(x)$ à la distance r :

$$R(r) = \frac{E \{ (h_2(x) - P) (h_2(x+r) - P) \}}{E (h_2(x) - P)^2} = \frac{\text{Cov}(r)}{\sigma^2(h_2(x))} \quad (12)$$

L'échelle de ségrégation :

Quand r tend vers 0, les mesures de la composition sont corrélées : $h_2(x)$ et $h_2(x+r)$ ont des valeurs voisines. $R(r)$ tend alors vers 1.

A l'inverse, quand r tend vers l'infini, les mesures de $h_2(x)$ et $h_2(x+r)$ sont indépendantes et $R(r)$ tend en général vers 0 (Figure 2). Une valeur limite négative est indicatrice d'une ségrégation à large échelle.

La rapidité avec laquelle $R(r)$ tend vers 0 est liée à l'**échelle de ségrégation** du mélange. Danckwerts définit une échelle linéaire de ségrégation χ sous la forme :

$$\chi = \int_0^{\infty} R(r) dr \quad (13)$$

La figure 2 illustre la notion d'échelle de ségrégation pour un système bidimensionnel présentant des amas sous forme de disques (ségrégation totale : $I = 1$).

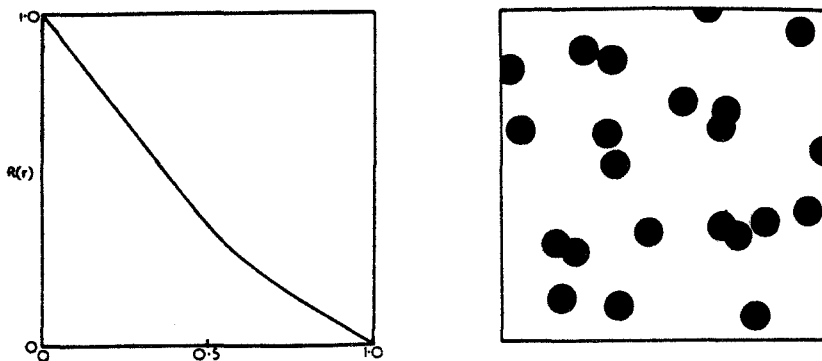


Figure 2 :

Mélange binaire ($I = 1$) présentant des amas sous forme de disques de diamètre D .
 $\chi/D = 0,42$

(D'après Danckwerts 1953).

L'analyse macroscopique présente l'inconvénient de ne pas permettre une étude de l'homogénéité à l'échelle de la particule. Cette étude est particulièrement importante dans le cas où le mélangeage a pour but de favoriser une réaction chimique entre particules 1 et particules 2.

2. Analyse microscopique de l'homogénéité

L'analyse que nous décrivons maintenant est une généralisation de l'analyse par prélèvements, telle que nous l'avons décrite au § 1. On suppose qu'on effectue N_p prélèvements dans le mélange, chaque prélèvement contenant le même nombre de particules N . On dira alors qu'on fait une analyse à l'échelle de N particules. La valeur de N peut être aussi petite qu'on le désire, si bien qu'on pourra mener l'analyse jusqu'à l'échelle d'une particule. Quand N est petit, les fluctuations statistiques de la composition ne peuvent plus être négligées. On ne peut plus alors appliquer la définition du § 1.

a. L'intensité de ségrégation

Il nous faut alors comparer la variance $\sigma^2(h_2(x))$ d'une part à la variance σ_0^2 d'un mélange à ségrégation totale, d'autre part à la variance $\sigma^{*2}(h_2(x))$ d'un mélange homogène.

α. Théorie de Lacey (1943)

Lacey fait une analyse de la variance de la composition numérique des prélèvements. Nous noterons $n_2 = h_2(x)$ la composition numérique des particules 2 dans un prélèvement, $p = E(n_2)$ l'espérance mathématique de la composition numérique des particules 2, N_2 le nombre de particules 2 dans un prélèvement ($N_2 = n_2 N$) et $N_p(N_2)$ le nombre de prélèvements contenant N_2 particules 2. N étant constant, il est équivalent d'analyser la distribution $N_p(N_2)$ ou la distribution $N_p(n_2)$.

α.1 Ségrégation totale

Dans le cas d'une ségrégation totale, chaque prélèvement contient N particules 2 avec la probabilité p , et 0 particules 2 avec la probabilité $1 - p$:

$$\begin{aligned} N_{p0}(N) &= p N_p \\ N_{p0}(0) &= (1 - p) N_p \\ N_{p0}(N_2) &= 0 \quad \forall N_2 \neq 0, N \end{aligned} \quad (14)$$

La variance de n_2 s'exprime alors comme au § 1. a. α. :

$$\sigma_0^2(n_2) = p(1 - p) \quad (15)$$

α.2 Mélange homogène

Supposons que l'on tire au hasard une particule dans le mélange. La probabilité d'obtenir une particule 2 est égale à p . Par conséquent, la probabilité de tirer N_2 particules 2 sur N tirages indépendants suit la loi binomiale.

$$P(N_2) = C_N^{N_2} p^{N_2} (1 - p)^{N - N_2} \quad (16)$$

Si le mélange est homogène, on peut considérer chaque prélèvement comme un tirage aléatoire de N particules dans le mélange (les positions relatives des particules dans le mélange sont indépendantes). La proportion de prélèvements contenant N_2 particules peut alors être exprimée à partir de la relation (16) et :

$$N_{P^*}(N_2) = N_P C_N^{N_2} p^{N_2} (1-p)^{N-N_2} \quad (17)$$

Lacey (1943) exprime la variance de la composition d'un ensemble de prélèvements suivant la loi binomiale :

$$\sigma^{*2}(n_2) = \frac{p(1-p)}{N} \quad (18)$$

Notons que lorsque le nombre de particules par prélèvement est grand, σ^{*2} peut être négligé devant σ_0^2 ce qui justifie l'hypothèse faite au § 1. A l'inverse, quand N diminue, l'écart entre les deux variances décroît, ce qui va rendre l'analyse de l'homogénéité plus difficile. A la limite, quand $N = 1$, les valeurs de $\sigma^2(n_2)$ et $N_P(N_2)$ sont les mêmes pour le mélange homogène et pour le mélange à ségrégation totale ! L'analyse par la méthode des prélèvements devient alors impossible.

Lacey (1954) définit une intensité de ségrégation I sous la forme :

$$I = \frac{\sigma^2 - \sigma^{*2}}{\sigma_0^2 - \sigma^{*2}} \quad (19)$$

I vaut alors 0 pour le mélange homogène et 1 pour le mélange à ségrégation totale. Pratiquement, l'expression (19) est assez peu utilisée. On préfère en général étudier le rapport σ^2/σ^{*2} . Un processus normal de mélangeage voit ce rapport décroître jusqu'à une valeur inférieure ou égale à 1 (nous verrons au § b. comment on peut obtenir une valeur inférieure à 1).

La mesure de $N_P(N_2)$ et de $\sigma^2(n_2)$ sera d'autant plus précise qu'elle est réalisée sur un grand nombre de prélèvements. On trouvera en Annexe 7, un calcul de l'écart-type de ces estimations. L'analyse de la distribution $N_P(N_2)$ fournit plus d'informations que l'analyse de la variance seule, qui est couramment pratiquée.

β. Extensions de la théorie de Lacey à l'analyse de la composition massique

La mesure d'une composition numérique est en général assez délicate. On préfère parfois utiliser la composition massique m_2 , que l'on peut mesurer par analyse chimique. m_2 et n_2 sont reliées par :

$$\frac{1}{m_2} = 1 + \frac{1 - n_2}{n_2} \frac{\overline{M}_2}{\overline{M}_1} \quad (20)$$

où \overline{M}_1 et \overline{M}_2 représentent les masses moyennes des particules 1 et 2 (masses granulaires) dans le prélèvement.

En utilisant des relations approximatives donnant la variance d'un produit ou d'un rapport de variables indépendantes, Stange (1954) exprime la variance sur la composition massique m_2 par :

$$\sigma^2(m_2) \approx \frac{P(1-P)}{G} \left[P E(\overline{M}_1) \left(1 + \frac{\sigma^2(\overline{M}_1)}{E^2(\overline{M}_1)}\right) + (1-P) E(\overline{M}_2) \left(1 + \frac{\sigma^2(\overline{M}_2)}{E^2(\overline{M}_2)}\right) \right] \quad (21)$$

où P représente l'espérance mathématique $E(m_2)$, G est la masse moyenne d'un prélèvement, $E(\overline{M}_1)$ et $E(\overline{M}_2)$ sont les espérances mathématiques des masses moyennes des particules 1 et 2 dans le mélange, $\sigma^2(\overline{M}_1)$ et $\sigma^2(\overline{M}_2)$ sont les variances des distributions de masse des particules. L'utilisation d'une telle expression ne peut se faire que sous certaines conditions :

1. L'hypothèse d'indépendance des variables n_2 et $\overline{M}_1, \overline{M}_2$ est discutable. Si dans un prélèvement, la masse granulaire \overline{M}_2 est supérieure à $E(\overline{M}_2)$ par exemple, n_2 aura de fortes chances d'être inférieure à p . L'utilisation de la relation (21) suppose donc une distribution granulométrique étroite de chaque espèce.
2. L'approximation de Stange suppose que les écarts-types des variables sont faibles devant les espérances mathématiques. Cette hypothèse n'est réalisée pour la variable n_2 que si le nombre de grains par prélèvement N est grand (éq. (18)). Autrement dit, la méthode de Stange ne permet pas une analyse microscopique de l'homogénéité.
3. Le calcul de Stange n'est valable que pour des prélèvements contenant tous le même nombre de particules N . Dans la pratique, une telle condition est aussi difficile à remplir que la composition numérique à mesurer et l'on effectue souvent des prélèvements à masse constante ou à volume constant. L'utilisation de l'équation (21) dans ces conditions est alors abusive surtout si les différences de masse entre particules sont importantes. Sommer (1976) propose un modèle exprimant la variance de la composition massique des grosses particules à masse de prélèvements constante, mais qui suppose que les particules ne présentent pas de distribution de taille, et que le rapport $E(\overline{M}_2)/E(\overline{M}_1)$ soit entier :

$$\sigma^2(m_2) = \frac{P(1-P)}{G} E(\overline{M}_2) \quad (22)$$

Pour des rapports non entiers, la condition $G = \text{Constante}$ se traduit par des résultats pratiquement inapplicables (Sommer 1976).

En résumé, la seule approche théorique rigoureuse de l'analyse par prélèvements est celle de Lacey qui analyse la composition numérique de prélèvements à nombre de particules constant.

Aux expérimentateurs de mettre en oeuvre une méthode adaptée à cette analyse.

Nous présenterons au § IV. A. 4. d. une telle méthode appliquée à l'analyse d'images.

b. L'échelle de ségrégation

Nous supposerons dans ce paragraphe qu'on analyse la composition numérique dans des prélèvements à nombre de particules N constant.

Pour déterminer l'échelle de ségrégation, on peut utiliser la variation du coefficient de corrélation $C(r)$ de la composition de deux prélèvements distants de r . L'emploi de cette méthode pour les faibles valeurs de r nécessite des prélèvements à nombre de particules N faible. Dans ce cas, la fluctuation statistique de la composition (éq. 18) est telle que la mise en évidence d'une corrélation entre la composition de deux prélèvements devient pratiquement impossible. Cette méthode ne permet pas une analyse microscopique de l'homogénéité.

Nous présentons maintenant une méthode personnelle d'analyse microscopique de l'homogénéité. Elle est basée sur la comparaison de l'échelle de ségrégation à l'échelle d'analyse (définie par N). La démonstration que nous donnons n'est pas générale ; elle s'appuie sur le traitement de deux cas limites. Il est probable, cependant, que le résultat obtenu ait un caractère plus général.

Cas I : L'échelle de ségrégation est grande vis-à-vis de l'échelle d'analyse

Supposons que le mélange soit constitué de deux domaines homogènes D_{inf} et D_{sup} de composition différente, grands devant la taille des prélèvements (Figure 3). Notons d_{inf} et d_{sup} les fractions du nombre total de particules tombant respectivement dans les domaines D_{inf} et D_{sup} , p_{inf} et p_{sup} les compositions numériques respectives des particules 2 dans les domaines D_{inf} et D_{sup} .

La composition moyenne p vaut alors :

$$p = d_{\text{inf}} p_{\text{inf}} + d_{\text{sup}} p_{\text{sup}}$$

Si les prélèvements sont effectués de manière uniforme dans le mélange, on obtiendra statistiquement $N_P d_{\text{inf}}$ prélèvements dans le domaine D_{inf} et $N_P d_{\text{sup}}$ prélèvements dans le domaine D_{sup} . Le nombre de prélèvements contenant N_2 particules 2 peut alors s'exprimer d'après (16) :

$$N_P(N_2) = N_P d_{\text{inf}} C_N^{N_2} p_{\text{inf}}^{N_2} (1 - p_{\text{inf}})^{N - N_2} + N_P d_{\text{sup}} C_N^{N_2} p_{\text{sup}}^{N_2} (1 - p_{\text{sup}})^{N - N_2} \quad (23)$$

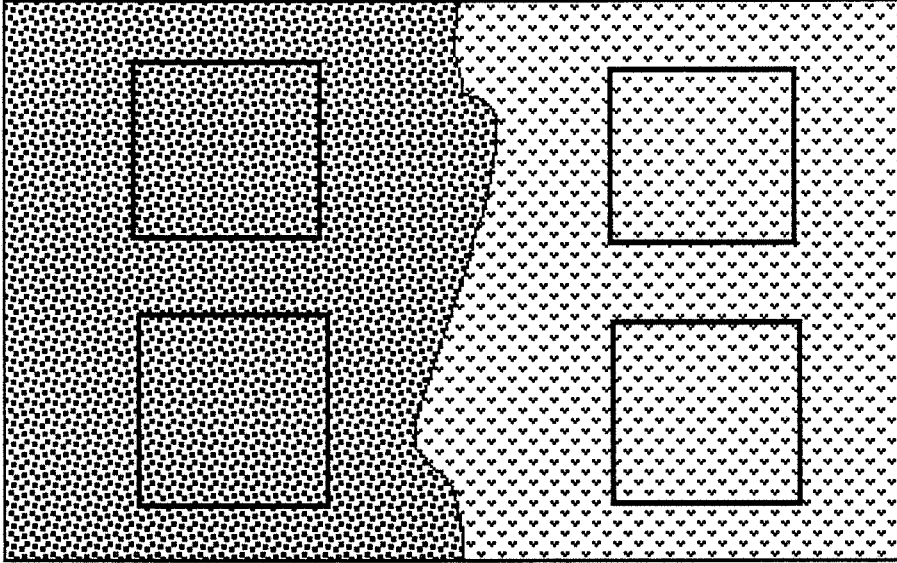


Figure 3 :
Echelle de ségrégation grande devant l'échelle d'analyse
(Les carrés figurent les prélèvements).

Cas II : L'échelle de ségrégation est inférieure à l'échelle d'analyse

Supposons que le mélange soit toujours constitué de deux domaines homogènes D_{inf} et D_{sup} de composition différente, la taille des domaines étant cette fois suffisamment petite pour que chaque prélèvement contienne une partie de chaque domaine (la répartition des 2 domaines est supposée uniforme dans le mélange (Figure 4)). Chaque prélèvement contient alors $N_{\text{inf}} = N d_{\text{inf}}$ particules du domaine D_{inf} et $N_{\text{sup}} = N d_{\text{sup}}$ particules du domaine D_{sup} . La probabilité d'avoir N_2 particules 2 dans le prélèvement est alors la somme des probabilités d'avoir $N_{2\text{inf}}$ particules 2 dans le domaine D_{inf} et $N_{2\text{sup}}$ particules 2 dans le domaine D_{sup} , la somme étant étendue à toutes les valeurs de $N_{2\text{inf}}$ et $N_{2\text{sup}}$ telles que $N_{2\text{inf}} + N_{2\text{sup}} = N_2$:

$$N_P(N_2) = N_P \sum_{N_{2\text{inf}}=0}^{N_{\text{inf}}} \sum_{N_{2\text{sup}}=0}^{N_{\text{sup}}} C_{N_{\text{inf}}}^{N_{2\text{inf}}} P_{\text{inf}}^{N_{2\text{inf}}} (1 - P_{\text{inf}})^{N_{\text{inf}} - N_{2\text{inf}}} C_{N_{\text{sup}}}^{N_{2\text{sup}}} P_{\text{sup}}^{N_{2\text{sup}}} (1 - P_{\text{sup}})^{N_{\text{sup}} - N_{2\text{sup}}} \quad (24)$$

$$\{N_2 = N_{2\text{inf}} + N_{2\text{sup}}\}$$

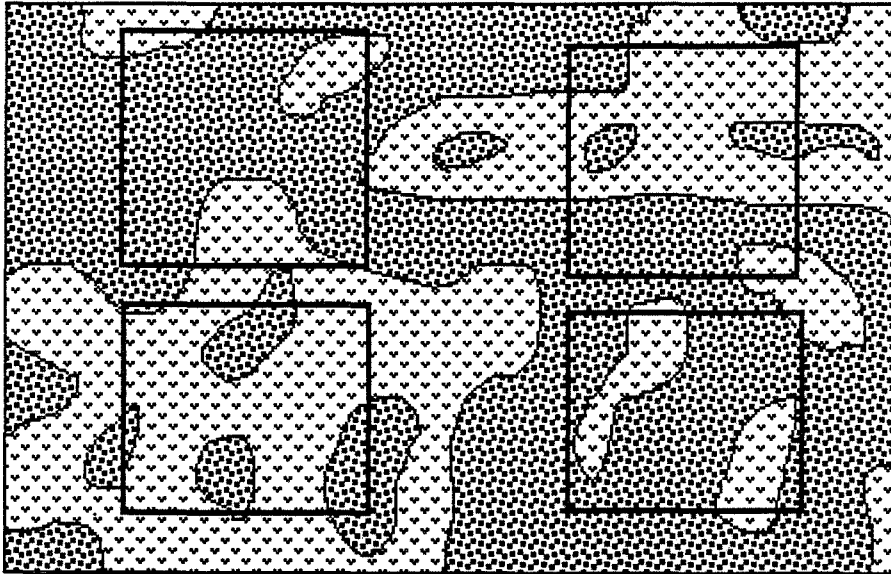


Figure 4 :
Echelle de ségrégation inférieure à la taille des prélèvements
(Les carrés figurent les prélèvements).

L'équation (23) est la moyenne pondérée par d_{inf} et d_{sup} de deux lois de distribution binomiale, l'une centrée sur $N p_{\text{inf}}$, l'autre sur $N p_{\text{sup}}$. La distribution obtenue est alors plus large que celle du mélange de composition uniforme (éq. 17) et sa variance est plus grande (Figure 5a).

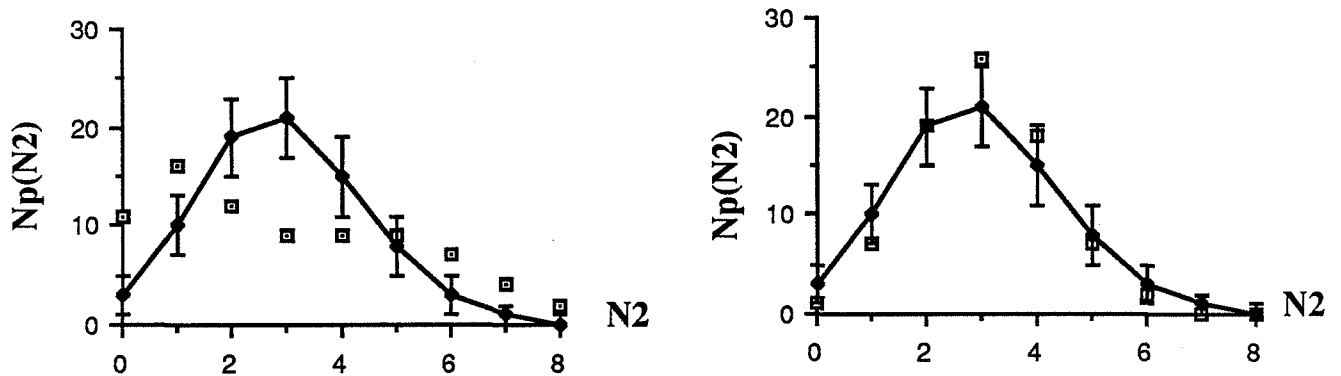
Au contraire, la distribution obtenue à partir de l'équation (24) est centrée sur la même valeur que celle du mélange de composition uniforme, mais elle présente un pic plus étroit, donc une variance plus petite (Figure 5b) comme nous avons pu le vérifier pour différentes valeurs des paramètres d_{sup} et p_{sup} du modèle.

Il est clair que la partition d'un mélange réel en deux ou plusieurs domaines de composition différente n'est souvent pas aussi nette. On admettra cependant que :

L'observation d'une courbe de distribution $N_p(N_2)$ plus large que celle du mélange homogène est indicatrice d'une échelle de ségrégation grande devant l'échelle d'analyse.

A l'inverse, l'observation d'une courbe de distribution $N_p(N_2)$ plus étroite que celle du mélange homogène est indicatrice d'une échelle de ségrégation inférieure à l'échelle d'analyse.

Ainsi, en pratiquant l'analyse à différentes échelles (différentes valeurs de N), on peut avoir une idée de l'échelle de ségrégation du mélange.

a. Cas I : $d_{sup} = 0,5$; $p_{sup} = 0,4$ b. Cas II : $d_{sup} = 0,33$; $p_{sup} = 0,6$ **Figure 5 :**

Comparaison des distributions $N_p(N_2)$ d'un mélange homogène (—) et de mélanges inhomogènes (\square) dans les 2 cas limites I et II ($N = 12$, $p=0,25$).

3. Vers une analyse intrinsèque de l'homogénéité ?

L'analyse de l'homogénéité, telle que nous l'avons présentée aux § 1 et 2 est toujours dépendante d'une échelle, à savoir la taille des prélèvements. Faire une analyse intrinsèque de l'homogénéité n'est possible que si l'on peut faire tendre la taille des prélèvements vers 0.

On peut alors mesurer la composition "en un point", c'est-à-dire dans un élément de volume petit devant la taille des particules du mélange. Ceci est difficilement applicable aux mélanges liquides, où les particules sont des molécules. En revanche on pourra mesurer la composition $h_i(x)$ "en un point" x de l'espèce i dans un mélange granulaire. Elle vaudra soit 0, soit 1 suivant que le point est à l'intérieur d'un grain de l'espèce i ou non. On l'appelle alors fonction indicatrice de l'espèce (Serra 1982).

a. Corrélogrammes de la fonction indicatrice

Considérons la fonction indicatrice $h_2(x)$ de l'espèce 2 dans un mélange binaire. On peut définir un coefficient de corrélation de $h_2(x)$ à partir de l'équation (12). L'échelle de ségrégation χ , obtenue à partir de l'équation (13), donne un ordre de grandeur de la taille moyenne des amas de grains 2. On peut procéder de même pour l'espèce 1. Au début du mélangeage, les espèces 1 et 2 sont séparées (intensité de ségrégation = 1) et la taille des amas de 1 ou de 2 nous donne une indication de l'échelle de ségrégation du mélange. Par contre, quand l'intensité de ségrégation diminue, l'analyse séparée des coefficients de corrélation de $h_1(x)$ et $h_2(x)$ ne fournit que des renseignements partiels sur l'homogénéité du mélange. En particulier, la taille des amas de 1 et 2 tend vraisemblablement vers la taille des amas

statistiquement présents dans le mélange homogène avant que l'intensité de ségrégation ne soit tout à fait nulle.

Avant d'aller plus loin, nous devons préciser les relations qui existent entre le coefficient de corrélation $R(r)$, (éq. (12)) et la covariance non centrée $C(r)$ (éq. (11)) de la fonction indicatrice $h(x)$. A partir des équations (11) et (12), on obtient :

$$C(r) = E(h(x) - P)^2 R(r) + P^2$$

$$\begin{aligned} \text{et : } E(h(x) - P)^2 &= E(h^2(x)) - P^2 \\ &= E(h(x)) - P^2 && (h(x) = 0 \text{ ou } 1) \\ &= P - P^2 \end{aligned}$$

donc :

$$C(r) = (P - P^2) R(r) + P^2 \quad (25)$$

La fonction $C(r)$ est très intéressante dans l'étude de la fonction $h(x)$. Elle représente la probabilité pour que deux points distants de r appartiennent à l'espèce considérée. Elle peut être facilement déterminée par analyse d'images (Coster et Chermant 1985). Serra (1982) définit la **portée de la covariance** sous la forme :

$$\chi = \frac{1}{P - P^2} \int_0^{\infty} (C(r) - P^2) dr$$

Cette définition est strictement équivalente à celle de l'échelle de ségrégation de Danckwerts (éq. (12)). L'étude de la variation $R(r)$ (corrélogramme) est équivalente à celle de la variation de $C(r)$ (covariogramme).

Serra définit également une covariance rectangle $C_{ij}(r)$, qui représente la probabilité pour que deux points distants de r soient l'un à l'intérieur d'un grain de l'espèce i , l'autre à l'intérieur d'un grain de l'espèce j :

$$C_{ij}(r) = E\{h_i(x) h_j(x+r)\}$$

Dans un mélange à 2 espèces de grains, l'étude des covariogrammes $C_{11}(r)$, $C_{22}(r)$ et $C_{12}(r)$ fournit une description de l'arrangement spatial des grains dans l'empilement. Une telle description est fort intéressante mais son application à l'analyse de l'homogénéité nécessiterait de pouvoir comparer les covariogrammes du mélange réel à ceux d'un mélange homogène. Une telle comparaison n'est guère possible analytiquement, à notre connaissance. La seule possibilité nous semble être alors de faire la comparaison avec un schéma booléen, c'est-à-dire un empilement de grains construit à partir d'un ensemble de points générés par un processus aléatoire de Poisson (Serra 1982). Une analyse quantitative, telle qu'on peut la faire en analyse par prélèvements à partir de l'intensité et de l'échelle de ségrégation, reste à définir.

b. Fonction de distribution radiale

Après avoir réduit chaque grain à un point (centre de gravité, centre géodésique...), on peut faire l'analyse des fonctions de distribution radiale $g_{ij}(r)$ dans le mélange (§ A.2.d.). Ces fonctions peuvent être déterminées à 2 dimensions par analyse d'images. Comme les covariogrammes, elles fournissent une description de l'arrangement spatial des grains dans le

mélange. Là encore, la comparaison n'est guère possible qu'avec un ensemble de points générés par un processus aléatoire de Poisson. Et l'analyse quantitative reste à définir.

Pour conclure, nous retiendrons comme analyse de l'homogénéité l'analyse par prélèvements à nombre de particules constant de la distribution de la composition numérique. On pourra alors tester l'homogénéité du mélange en comparant les mesures expérimentales aux expressions théoriques données par les équations (17) (18), sur la base de l'analyse statistique présentée en Annexe 7. L'intensité de ségrégation pourra être estimée à partir de l'équation (19). De plus, l'allure des distributions permettra de comparer l'échelle de ségrégation à l'échelle d'analyse.

B₂. ETUDE PHENOMENOLOGIQUE DE L'HOMOGENEISATION D'UN MELANGE GRANULAIRE

Tout processus d'homogénéisation d'un mélange de deux espèces solides résulte des mécanismes suivants (Lacey 1954), qui seront plus ou moins efficaces suivant le mode de mélangeage utilisé :

1. **La convection** de groupes de particules d'un point à un autre du mélangeur. L'homogénéisation de concentration qui résulte de ce mécanisme est analogue à l'homogénéisation de température par convection observée dans un gaz. Elle n'atteint pas l'échelle microscopique.
2. **La diffusion** de particules individuelles depuis les zones où elles sont en excès vers les zones où elles sont en défaut. Ce mécanisme est analogue à la diffusion moléculaire dans les liquides, l'agitation mécanique jouant ici le rôle de l'agitation thermique (dans les mélanges liquides, l'homogénéisation par diffusion subsiste même en l'absence d'agitation). Elle peut d'ailleurs être décrite par une loi de Fick (Lacey 1954). La diffusion permet d'obtenir un mélange homogène à l'échelle microscopique.
3. **Le cisaillement**, qui a pour effet de briser les amas éventuels de particules dans le mélange. Ce mécanisme n'intervient que dans le cas de particules cohésives. Il est alors indispensable à la réalisation d'un mélange homogène.

La convection entraîne une diminution de l'échelle de ségrégation et de l'intensité de ségrégation à large échelle, l'intensité de ségrégation à faible échelle restant constante. La diffusion entraîne une diminution de l'intensité de ségrégation à faible échelle. La mise en évidence expérimentale des mécanismes qui contrôlent un processus d'homogénéisation est toutefois délicate : l'analyse de l'échelle de ségrégation à l'aide des corrélogrammes ne permet pas d'atteindre l'échelle microscopique ; et l'étude de l'évolution de l'intensité de ségrégation (ou du rapport σ^2/σ^{*2}) à une échelle donnée, qui est couramment pratiquée dans la littérature (Lacey 1954, Stange 1954, Poole et alii 1964) peut décrire globalement le processus d'homogénéisation, mais ne permet pas de déterminer l'importance relative des mécanismes de convection et de diffusion. D'où l'intérêt de l'analyse présentée au § B₁. 2.

Suivant le type de mélangeur utilisé et suivant les caractéristiques des grains, l'efficacité de l'homogénéisation va varier. Des revues spécialisées présentent les performances de différents types de mélangeurs (Perry, 1963). Citons simplement quelques caractéristiques de deux classes de mélangeurs.

1. Les mélangeurs par agitation

Pour ce type de mélangeur, la poudre est placée dans un récipient qui est ensuite fermé puis agité suivant un mouvement plus ou moins complexe. Le "Turbula", que nous utilisons pour réaliser nos mélanges fait partie de cette classe de mélangeurs. On admet généralement que le mélangeage est alors régi par les mécanismes de convection et de diffusion (Danckwerts 1953, Lacey 1954) : le mouvement du mélangeur entraîne le déplacement de "paquets" de grains d'un point à l'autre du récipient (convection) et lorsqu'un tel paquet tombe à la surface de l'empilement au repos, l'énergie d'impact permet aux particules en chute de pénétrer à l'intérieur de celui-ci (diffusion). On admet que l'homogénéisation par convection est alors rapide, et que, très vite, l'homogénéisation est contrôlée par la diffusion (Schofield 1970, Too et alii 1986).

Les mélangeurs par agitation sont peu efficaces dans le cas de particules cohésives car ils ne favorisent pas le cisaillement. On peut rendre ce mécanisme plus efficace en plaçant des billes ou d'autres éléments dans le récipient, mais on risque alors d'une part de broyer les grains, d'autre part de les polluer. Une autre solution dans le cas de particules cohésives est d'ajouter un dispersant liquide qui peut avoir un effet de lubrifiant et favoriser le glissement des grains les uns sur les autres (Perry 1963).

Si les particules sont non cohésives ("free-flowing"), les mélangeurs par agitation permettent d'atteindre une bonne homogénéité du mélange, pourvu que les caractéristiques physiques et morphologiques des grains (densité, forme, état de surface) soient peu différentes. Dans le cas contraire, on peut observer parallèlement une homogénéisation du mélange par les mécanismes précédemment décrits et une démixtion, due à un comportement non symétrique des deux types de grains du fait de leurs caractéristiques différentes (Perry 1963). Cette démixtion se traduit par l'observation d'une ségrégation à large échelle dans le mélange. Rochowechi (1981), en supposant que l'homogénéisation est contrôlée par la diffusion, donne une description théorique de la cinétique de mélangeage : il suppose que l'homogénéisation résulte d'un flux de particules proportionnel au gradient de concentration et dirigé dans le sens contraire (loi de Fick) tandis que la démixtion résulte d'un flux proportionnel au gradient et dirigé dans le même sens. Il compare les résultats de son modèle à ceux obtenus en mélangeant des grains de nature chimique très différente, et montre ainsi l'importance de la démixtion dans ce cas. Il observe aussi sur un exemple que l'importance relative de la démixtion par rapport à l'homogénéisation diminue quand la différence de taille entre grains augmente. Il semblerait donc qu'une différence de taille accélère davantage l'homogénéisation que la démixtion.

2. Les mélangeurs statiques

Pour ce type de mélangeurs, le récipient dans lequel passe la poudre est fixe et contient des éléments rigides également fixes (tiges métalliques - tamis en série - balles élastiques). Le mélangeage se fait en système ouvert : la poudre est introduite en haut du mélangeur et récupérée en bas. Nous avons déjà décrit un tel système au § I. (Figure 7).

Les mécanismes qui régissent un tel mode de mélangeage sont complexes : les paquets de particules qui entrent dans le système sont divisés en 2, puis 4, puis 8, etc... lors de chocs avec les éléments rigides. Les chocs entre paquets de particules à l'intérieur du système permettent également une "diffusion". Toujours est-il que ces systèmes conduisent en général à des mélanges semble-t-il plus homogènes que les mélangeurs par agitation (Ben Aïm 1970).

Herbig et Gottschalk (1986), sur des mélanges de grains de caractéristiques assez différentes, n'observent pas de démixtion avec un mélangeur statique, du moins tant que le rapport de taille entre grains n'excède pas 10.

Malgré leurs qualités incontestables (homogénéisation rapide - faible consommation énergétique - fonctionnement en système ouvert), ce type de mélangeurs est semble-t-il assez peu utilisé dans l'industrie.

C. ETUDE D'UN CAS IDEAL : LE MELANGE BINAIRE HOMOGENE DE SPHERES - INFLUENCE DU RAPPORT DE TAILLE ET DE LA COMPOSITION SUR LES PARAMETRES DÉFINIS PLUS HAUT

Considérons le cas idéal d'un empilement homogène de sphères présentant des rayons R_1 ou R_2 ($R_2 \geq R_1$). Pratiquement, un mélange homogène peut être obtenu par simulation numérique ou, dans le cas de grains réels, en utilisant un montage expérimental du type décrit au § I (Figure 7). Les paramètres descriptifs du système granulaire sont alors les rayons R_1 et R_2 et les compositions numériques n_j , ou volumiques v_j . On notera k_j le rapport de taille R_i/R_j .

Malgré les hypothèses simplificatrices que nous avons faites, l'étude théorique des caractéristiques de l'empilement reste extrêmement complexe. Nous nous bornerons à présenter quelques modèles simples qui décrivent la compacité, les coordinances et les fractions de contacts dans un mélange binaire de sphères. Puis nous comparerons ces modèles à quelques résultats expérimentaux.

1. Compacité - porosité

a. Calcul de géométrie statistique

Sur la base des travaux de Wise (1952) et Hogendijk (1963), Dodds (1980) propose un modèle, fondé sur les principes de la géométrie statistique, qui permet de décrire un certain nombre de caractéristiques d'un empilement de sphères de plusieurs rayons.

L'hypothèse de base du modèle est de considérer que les polyèdres de coordinance, c'est-à-dire les polyèdres obtenus en joignant tous les centres des sphères en contact (Annexe 1, § a.) sont des tétraèdres. Cette hypothèse n'est bien sûr pas réalisée en pratique. Cependant, dans l'empilement monotaille de sphères, 70 % des polyèdres de coordinance sont des tétraèdres (§ I. B. 2. d. α). Aussi, Dodds suppose qu'on peut passer d'un empilement modèle où tous les polyèdres de coordinance sont des tétraèdres à un empilement réel par rupture de certaines liaisons et création de "gaps" entre les sphères (Figure 6). Il fait l'hypothèse que ces ruptures de liaisons se font de manière aléatoire (indifféremment entre sphères 1 et 1, 2 et 2, 1 et 2) si bien que les caractéristiques de l'empilement modèle auront un comportement analogue à celles de l'empilement réel quand on fera varier v_j ou k_j . Par contre, l'empilement modèle étant plus dense que l'empilement réel, on ne pourra pas utiliser les résultats numériques du modèle, à moins d'appliquer une correction d'échelle (voir § 2. b. α).

Dodds calcule alors la distribution des différents types de tétraèdres (i j k l) présents dans l'empilement (i, j, k, l désignant les indices des espèces constituant les 4 sommets d'un tétraèdre, ici 1 ou 2). L'hypothèse du calcul est que la fréquence d'apparition d'une sphère de l'espèce i dans l'ensemble des tétraèdres est égale à n_i/\bar{A}_i , où \bar{A}_i représente l'angle solide moyen sous-tendu à une sphère de l'espèce i par un tétraèdre.

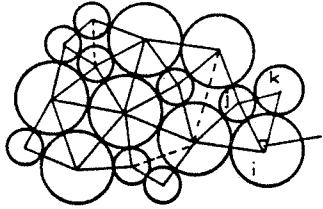


Figure 6 :
Empilement 2 D figurant les "gaps" entre disques (traits pointillés) (Dodds 1980).

A partir de la distribution des tétraèdres, on peut calculer la porosité, puisque la porosité de chaque type de tétraèdre est déterminée. La figure 7 représente la variation de la porosité d'un mélange binaire de sphères avec la fraction volumique v_1 des petites sphères pour différentes valeurs du rapport de taille k_2 .

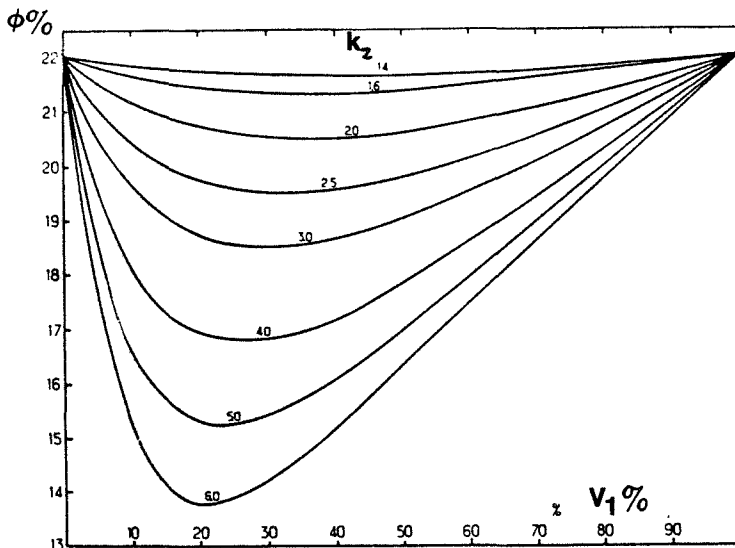


Figure 7 :
Variation de la porosité ϕ avec v_1 pour différentes valeurs du rapport de taille k_2 (D'après Dodds 1980).

b. Calcul fondé sur l'encombrement d'un grain dans l'empilement

La compacité de l'empilement est égale au rapport du volume granulaire sur le volume granulaire apparent :

$$C = \frac{\bar{V}}{V^a} \quad (26)$$

Le volume granulaire est connu puisqu'il vaut :

$$\bar{V} = n_1 \bar{V}_1 + n_2 \bar{V}_2 \quad (27)$$

Par conséquent, l'étude de la compacité est équivalente à celle du volume granulaire apparent. Formellement, cette étude présente bien des analogies avec l'étude du volume molaire dans les solutions binaires liquides. En particulier, le volume granulaire apparent passe par un minimum lorsque la composition du mélange varie.

C'est Furnas (1929) semble-t-il, qui fait le premier cette analogie. Ben Aim (1970) fait une très belle synthèse du problème que nous résumons ici.

Nous noterons C_1 et C_2 les compacités respectives des empilements des espèces pures 1 et 2. Pour des grains sphériques, $C_1 = C_2 = C_0$. L'utilisation de différentes valeurs de C_0 permet d'appliquer le modèle à des empilements construits suivant différents modes (empilement construit grain par grain, empilement dense, etc...).

α. Les limites de variation du volume granulaire apparent

Considérons deux cas limites :

α.1 La "solution idéale"

Par analogie avec les mélanges liquides, on dira que la solution est idéale si \bar{V}^a varie linéairement avec la fraction numérique de grains (Figure 8). Ceci correspond au cas où les volumes granulaires partiels \bar{V}_i^a sont égaux aux volumes granulaires apparents \bar{V}_i^a des espèces pures. On a alors, d'après (6) :

$$\bar{V}^a = n_1 \bar{V}_1^a + n_2 \bar{V}_2^a \quad (28)$$

C'est le cas du mélange de sphères de mêmes rayons. En effet, l'augmentation du volume apparent de l'empilement lorsqu'on y introduit un grain 1 est alors la même que lorsqu'on y introduit un grain 2 et elle est égale à la valeur correspondant aux espèces pures.

C'est aussi le cas d'un mélange où la ségrégation entre les 2 espèces est totale (§ B. 1. a. α.). L'empilement peut alors être considéré comme la juxtaposition des empilements des 2 espèces pures, auquel cas les volumes granulaires partiels sont égaux aux volumes granulaires apparents des espèces pures. Mais le mélange inhomogène ne fait pas l'objet de notre propos pour le moment.

La compacité de la "solution idéale" peut être calculée à partir de (28). On obtient une expression simple de $1/C$ en fonction de la fraction volumique de petites sphères v_1 ($v_1 = n_1 \overline{V}_1/\overline{V}$) :

$$\frac{1}{C} = \left(\frac{1}{C_1} - \frac{1}{C_2}\right) v_1 + \frac{1}{C_2} \quad (29)$$

qui se simplifie pour donner $C = C_0$ dans le cas où $C_1 = C_2 = C_0$.

α.2 Le mélange de compacité maximale ($R_2/R_1 \rightarrow \infty$)

Considérons le cas où le rapport des rayons $k_2=R_2/R_1$ est très grand.

Mécanisme I : Insertion de petites sphères dans le réseau des grosses sphères.

Supposons que l'on insère des petites sphères dans un empilement de grosses sphères. Si le rapport de taille k_2 est suffisamment grand, et si le nombre de petites sphères ajoutées ne dépasse pas une certaine limite, les petites sphères pourront se placer dans les cavités de l'empilement des grosses sphères sans modifier cet empilement. Leur volume granulaire partiel est alors nul et celui des grosses sphères n'est pas modifié par rapport à la valeur \overline{V}_2^a de l'espèce pure. On a alors d'après (6) :

$$\overline{V}^a = (1 - n_1) \overline{V}_2^a \quad (30)$$

La droite représentative de l'équation (30) est tracée sur la figure 8. Seule a un sens physique la partie de cette droite correspondant à une fraction de petites sphères suffisamment faible pour que les grosses sphères restent en contact. A partir de (30), on obtient l'expression de $1/C$:

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_2} - \frac{1}{C_1} v_1 \quad (31)$$

Mécanisme II : Substitution des petites sphères par les grosses

A l'inverse, introduire des grosses sphères dans un empilement de petites revient à substituer un certain nombre de petites sphères par les grosses. Si le rapport de taille k_2 est suffisamment grand, on peut négliger la perturbation créée dans l'empilement des petites sphères au voisinage de la surface externe des grosses sphères (effet de paroi). Dans ce cas, si la fraction de grosses sphères est suffisamment faible pour que celles-ci puissent être considérées comme isolées, l'augmentation du volume apparent de l'empilement est égale au volume des grosses sphères introduites (volume de matière) et $\overline{V}_2^{a'} = \overline{V}_2$. Le volume granulaire partiel des petites sphères n'est pas modifié par rapport à l'espèce pure : $\overline{V}_1^{a'} = \overline{V}_1^a$. On a alors d'après (6) :

$$\overline{V}^a = n_1 \overline{V}_1^a + (1 - n_1) \overline{V}_2 \quad (32)$$

La droite représentative de l'équation (32) est tracée sur la figure 8. Seule a un sens physique la partie de cette droite correspondant à une fraction de grosses sphères suffisamment faible pour que celles-ci soient isolées. A partir de (32), on obtient une expression de $1/C$:

$$\frac{1}{C} = \left(\frac{1}{C_1} - 1\right) v_1 + 1 \quad (33)$$

Si le rapport de taille R_2/R_1 tend vers l' ∞ , l'insertion de petites sphères dans les cavités de l'empilement des grosses peut être réalisée jusqu'à remplir complètement ces cavités. A l'inverse, partant d'un empilement de petites sphères, la substitution de petites sphères par des grosses peut être réalisée jusqu'à ce que celles-ci forment elles-mêmes un empilement stable. Ces 2 limites correspondent à une même valeur de la fraction volumique v_1 , que nous noterons $v_{1\text{lim}}$, et à une valeur maximale C_{max} de la compacité, que l'on exprime à partir de (31) et (33) :

$$v_{1\text{lim}} = \frac{C_1 (1 - C_2)}{C_1 + C_2 + C_1 C_2} \quad (34)$$

$$C_{\text{max}} = \frac{C_2 (C_1 + C_2 - C_1 C_2)}{C_2^2 + C_1 - C_1 C_2} \quad (35)$$

ce qui simplifie si $C_1 = C_2 = C_0$:

$$v_{1\text{lim}} = \frac{1 - C_0}{2 - C_0} \quad (36)$$

$$C_{\text{max}} = C_0 (2 - C_0) \quad (37)$$

Pour un empilement dense ($C_0 = 0,64$), $v_{1\text{lim}} = 0,26$ et $C_{\text{max}} = 0,87$.

Ce point de compacité maximale correspond à un point de volume granulaire apparent minimal (point E de la figure 8).

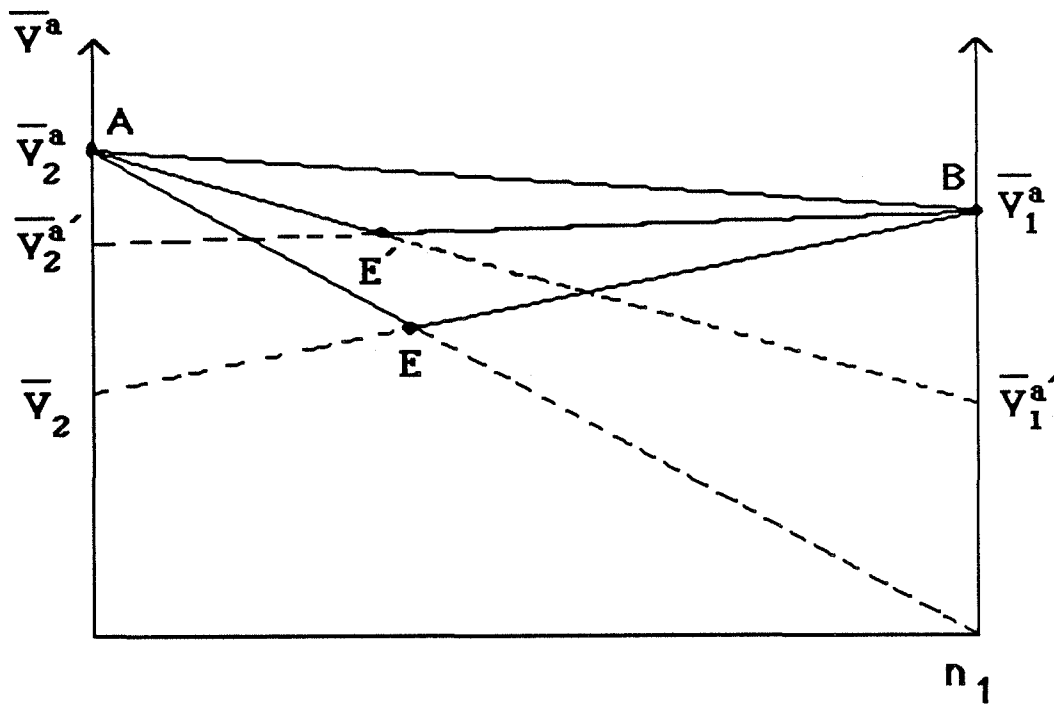


Figure 8 :
Variation du volume granulaire apparent d'un mélange binaire avec n_1
(D'après Ben Aïm 1970).

La solution idéale fournit une limite supérieure pour les valeurs du volume granulaire apparent. En effet, pratiquement l'introduction de sphères de rayon R' dans un empilement de sphères de rayon R ($R' \neq R$) conduit à une diminution du volume granulaire apparent par l'un des mécanismes I ou II. Cependant, pour un rapport de taille fini, cette diminution n'est pas aussi importante que le prévoit la théorie. En effet, dans le mécanisme de substitution, nous n'avons pas pris en compte l'effet de paroi créé par une grosse sphère placée dans un empilement de petites. Cet effet sera d'autant plus important que le rapport de taille k_2 est proche de 1. Il conduira à une valeur du volume granulaire partiel $\overline{V}_1^{a'}$ supérieure à la valeur \overline{V}_1^a utilisée dans (32).

De même, si le rapport R_2/R_1 n'est pas suffisamment grand, l'insertion de petites sphères dans l'empilement des grosses va modifier cet empilement et la valeur du volume granulaire partiel $\overline{V}_2^{a'}$ sera supérieure à la valeur \overline{V}_2^a utilisée dans (30).

Pratiquement, les valeurs du volume granulaire apparent \overline{V}^a d'un mélange réel seront toujours à l'intérieur du triangle ABE de la figure 8.

β. Les mélanges réels

Bien plus, Ben Aïm remarque que la variation de \overline{V}^a avec n_1 , obtenue à partir d'une série de résultats de la littérature concernant des mélanges réels denses, peut toujours être décomposée en deux segments de droite AE' et E'B (Figure 8), du moins tant que le rapport de taille k_2 est supérieur à 2. Pour les valeurs de k_2 inférieures à 2, la variation de la compacité est au maximum de 15 %.

Ceci signifie que les volumes granulaires partiels $\overline{V}_1^{a'}$ et $\overline{V}_2^{a'}$ sont constants dans chacun des deux domaines. De plus, pour $v_1 \leq v_{1\text{lim}}'$ (point E') $\overline{V}_2^{a'} = \overline{V}_2^a$ et pour $v_1 \geq v_{1\text{lim}}'$, $\overline{V}_1^{a'} = \overline{V}_1^a$. On peut alors exprimer $1/C$ en fonction des coefficients d'encombrement $e_1 = \overline{V}_1^{a'}/\overline{V}_1$ dans le premier domaine et $e_2 = \overline{V}_2^{a'}/\overline{V}_2$ dans le deuxième domaine à partir de (26), (6) et (27).

1er cas : $v_1 \leq v_{1\text{lim}}'$:

$$\frac{1}{C} = \frac{1}{C_2} - \left(\frac{1}{C_1} - e_1\right) v_1 \quad (38)$$

2ème cas : $v_1 \geq v_{1\text{lim}}'$:

$$\frac{1}{C} = \left(\frac{1}{C_1} - e_2\right) v_1 + e_2 \quad (39)$$

La position du point E' est définie par :

$$v_{1\text{lim}}' = \frac{C_1 (1 - C_2 e_2)}{C_1 + C_2 - C_1 C_2 (e_1 + e_2)} \quad (40)$$

et :

$$C_{\text{max}}' = \frac{C_1 + C_2 - C_1 C_2 (e_1 + e_2)}{C_1/C_2 - (C_1 - C_2) e_2 - C_1 C_2 e_1 e_2} \quad (41)$$

qui se simplifie lorsque $C_1 = C_2 = C_0$:

$$v_{1\text{lim}}' = \frac{1 - C_0 e_2}{2 - C_0 (e_1 + e_2)} \quad (42)$$

$$C_{\text{max}}' = \frac{C_0 [2 - C_0 (e_1 + e_2)]}{1 - e_1 e_2 C_0^2} \quad (43)$$

La compacité d'un mélange binaire de sphères peut alors être exprimée en fonction de la composition, du coefficient d'encombrement e_1 d'une petite sphère dans un empilement à majorité de grosses sphères et du coefficient d'encombrement e_2 d'une grosse sphère dans un empilement à majorité de petites sphères. Les coefficients d'encombrement e_1 et e_2 sont indépendants de la composition et uniquement fonction du rapport de taille. La variation de C avec v_1 , peut alors être représentée par deux fragments d'hyperbole (éq. (38), (39)).

Dans le cas où le rapport de taille k_2 est supérieur à la valeur critique $k_c = 4,46$, les petites sphères peuvent se loger dans les cavités tétraédriques formées par 4 grosses sphères en contact mutuel. Ces cavités étant les plus petites cavités que l'on peut trouver dans un empilement (§ I. B. 2. d. $\alpha.$), on peut admettre qu'une petite sphère introduite dans un empilement de grosses sphères va alors systématiquement se placer dans une cavité, sans augmenter le volume apparent de l'empilement. Dans ce cas, $e_1 = 0$ (le point E' de la figure 8 se place alors sur le segment AE). De plus, Ben Aïm donne dans ce cas une expression théorique approximative du coefficient d'encombrement e_2 :

$$e_2 \approx 1 + 0,9 \frac{R_1}{R_2} \quad (44)$$

La compacité du mélange peut alors être calculée pour toute composition et pour tout rapport de taille $k_2 \geq k_c$.

Pour les valeurs de k_2 inférieures à k_c , on peut utiliser les valeurs e_1 et e_2 calculées par Ben Aïm en raccordant les résultats expérimentaux à son modèle. Oger (1987) a proposé un calcul numérique semi-empirique de ces coefficients en fonction du rapport de taille $k_i = R_i/R_j$. La figure 9 montre le résultat obtenu pour des empilements denses.

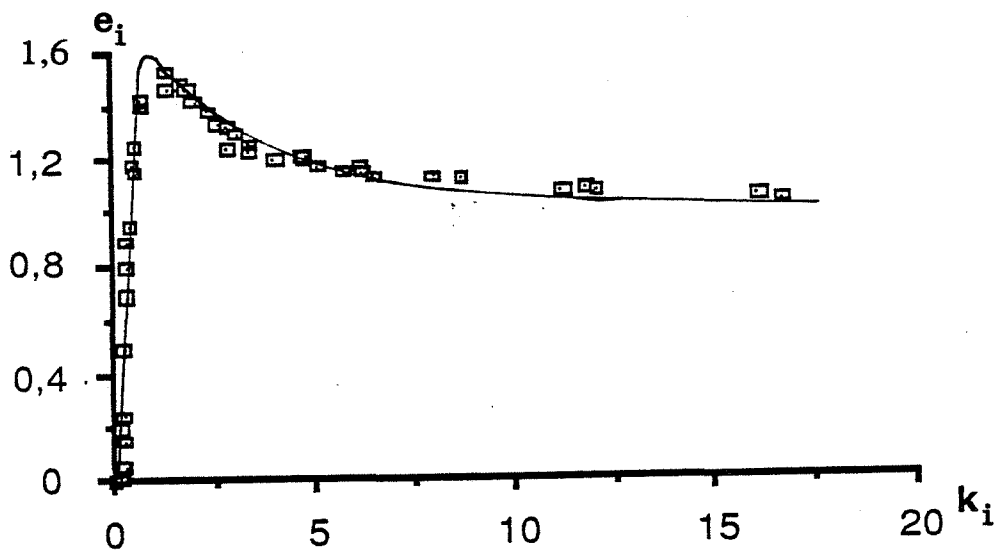


Figure 9 :

Variation du coefficient d'encombrement d'une sphère de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j avec $k_i = R_i/R_j$
(D'après Oger 1987).

Ben Aïm a comparé les résultats de son modèle à des mesures faites sur des mélanges binaires denses et homogènes (Figure 10). L'accord est tout à fait satisfaisant.

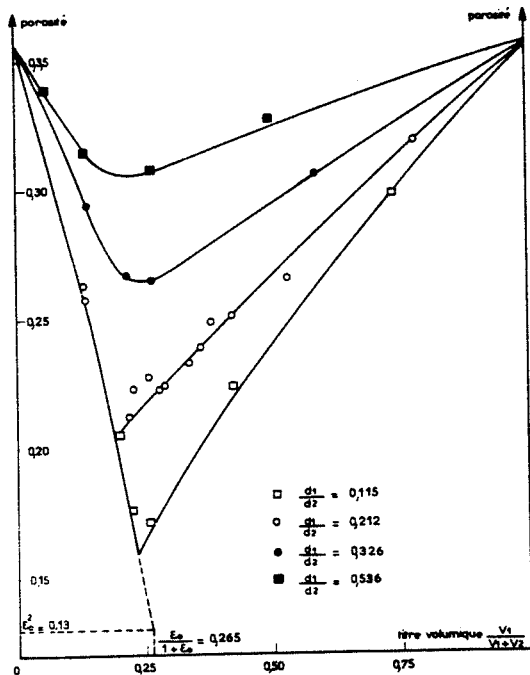


Figure 10 :
Variation de la porosité avec la fraction volumique v_1 pour différents rapports de taille k_1 (— éq. (38) et 39)
(D'après Ben Aïm 1970).

c. Analyse critique des modèles

Qualitativement, l'allure de la variation de \emptyset avec v_1 prévue par le modèle de Dodds (Figure 7) et celle prédite par le modèle de Ben Aïm (Figure 10) sont tout à fait comparables : on observe une courbe à minimum, celui-ci étant d'autant plus prononcé que le rapport de taille k_2 est grand. Toutefois, le décalage de ce minimum par rapport à celui de la courbe limite de porosité minimale ($k_2 \rightarrow \infty$) n'est pas le même pour les 2 modèles : Dodds prévoit un décalage vers les plus fortes valeurs de v_1 alors que Ben Aïm prévoit un décalage vers les plus faibles valeurs (ce décalage est moins évident sur la figure 10 mais peut être vérifié à partir de l'équation (42)).

Expérimentalement, il est difficile de mettre en évidence un tel décalage. Les résultats obtenus par différents auteurs semblent plutôt indiquer que la position du minimum ne dépend pas du rapport de taille (Westman et Hugill 1930, Mac Geary 1961, Yerazumis et alii 1965, Schlüssler et Walter 1986, Oger 1987). En tout cas, s'il y a une variation, celle-ci est très faible, ce qui est à l'avantage du modèle de Ben Aïm car celui-ci prévoit un décalage très faible par rapport à celui prévu par le modèle de Dodds.

Pour terminer, notons que les valeurs des coefficients d'encombrement e_1 et e_2 déterminées expérimentalement par Ben Aïm correspondent à des empilements denses. Ces coefficients vont dépendre du mode d'empilement : pour un empilement lâche, l'accroissement de volume provoqué par l'ajout d'un grain à l'empilement sera plus grand que pour un empilement dense. Ainsi, pour pouvoir appliquer les équations (38) et (39), il faudra tenir compte du fait que e_1 et e_2 dépendent du mode de construction de l'empilement. On pourra alors utiliser le modèle semi-empirique de Oger (1987) pour calculer e_1 et e_2 .

Enfin, nous avons pu vérifier sur un empilement simulé grain par grain ($C = 0,582$) par Schlüssler et Walter (1986) que ces coefficients ne dépendent pas de la composition : la courbe de variation de $1/C$ en fonction de v_1 se décompose en deux segments de droite (Figure 11). Ceci semble indiquer que le modèle de Ben Aïm peut s'appliquer à des empilements réalisés selon différents modes de construction.

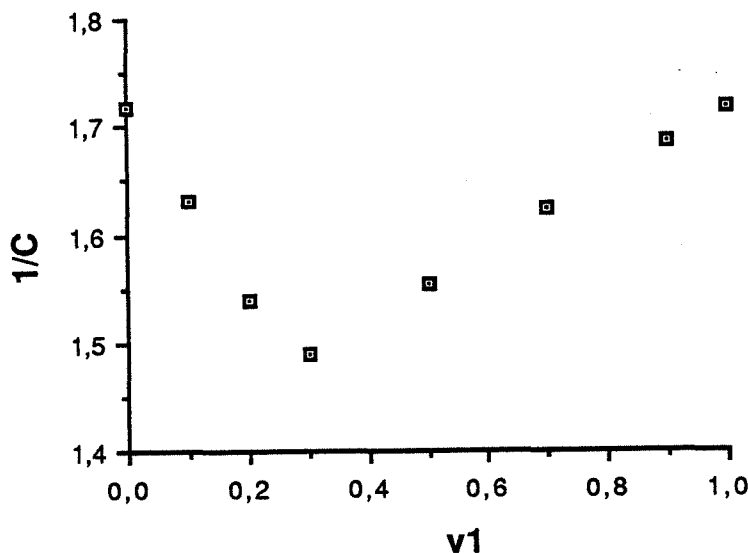


Figure 11 :
Variation de $1/C$ avec v_1 pour un empilement construit grain par grain ($k_2 = 4$)
(D'après Schlüssler et Walter 1986).

2. Coordinances

a. Coordinance moyenne globale

Les considérations que nous avons faites au chapitre I sur l'équilibre mécanique d'un grain dans l'empilement (I. B. 1. a. α . et I. B. 2. a.) restent valables dans le cas de sphères de différents diamètres : **si on néglige les configurations d'équilibre collectif, la coordinance moyenne de l'empilement aléatoire est égale à 6. Une valeur supérieure à 6 est indicatrice de l'existence d'un ordre à longue distance. Une valeur inférieure est indicatrice de l'existence de configurations d'équilibre collectif.**

Ce résultat a été vérifié par différents auteurs sur des simulations numériques (Suzuki, Oshima 1983 ; Oger et alii 1986).

b. Coordinances moyennes de chaque espèce et fractions de contacts

Les coordinances z_1 et z_2 de chaque espèce varient avec la composition numérique n_1 de petites sphères et avec le rapport de taille $k_2 = R_2/R_1$. De nombreux auteurs ont cherché à modéliser cette variation. Nous présentons ici quelques-uns de ces modèles, puis nous discuterons leur validité.

α. Calcul de géométrie statistique

A partir de la distribution des tétraèdres de son modèle (§ 1. a.), Dodds exprime les fractions de contacts t_{ij} , les coordinances moyennes z_1 et z_2 et la coordinance moyenne globale z . Si les "gaps" dans un empilement réel peuvent être considérés comme aléatoires, les fractions de contacts du modèle pourront être comparées à celles de l'empilement réel. En revanche, pour pouvoir utiliser les valeurs de z_1 , z_2 et z , il faudra faire appel à une correction d'échelle. Pour effectuer cette correction, Dodds se base sur le fait que la coordinance moyenne globale z est constante et égale à 6 si on peut négliger les configurations d'équilibre collectif. Il exprime alors les coordinances z_1 et z_2 sous la forme :

$$z_i = \frac{z_i^* \times 6}{z^*} \quad (45)$$

La notation * signifiant que la grandeur est calculée à partir du modèle.

β. Calculs fondés sur l'encombrement d'un grain dans l'empilement

β.1 Modèle de Bideau (1983)

- **Coordinance d'une sphère de rayon R_2 placée dans un empilement de sphères de rayon R_1 ($R_2 \geq R_1$) :**

Bideau suppose que la coordinance moyenne z_2^0 d'une sphère unique de rayon R_2 placée dans un empilement de sphères de rayons R_1 peut être décomposée en la somme d'un terme constant A qui est lié aux conditions d'équilibre de la sphère et d'un terme B qui est lié à l'encombrement de la sphère dans l'empilement, donc à sa taille.

Pour exprimer le terme lié à l'encombrement, Bideau s'inspire d'un raisonnement fait par Ben Aïm (1970). Supposons que l'on place par la pensée une sphère de rayon R_2 dans l'empilement de sphères de rayons R_1 , en portant son centre en un point 0. Bideau suppose que la "matérialisation" de la sphère peut être schématisée de la façon suivante :

- on élimine les sphères 1 dont les centres sont à une distance de 0 inférieure à R_2
- on repousse les sphères 1 dont le centre est à une distance comprise entre R_2 et $R_2 + R_1$ de manière à les porter en contact avec la sphère 2.
- les sphères 1 dont le centre est à une distance supérieure à $R_2 + R_1$ ne sont pas touchées.

Bideau suppose que B est proportionnel au nombre de sphères ainsi déplacées :

$$B = \alpha C \left(1 + 3 \frac{R_2}{R_1} \left(1 + \frac{R_2}{R_1}\right)\right) \quad (46)$$

On peut alors exprimer la coordianance z_2^0 sous la forme :

$$z_2^0 = a + b \frac{R_2}{R_1} \left(1 + \frac{R_2}{R_1}\right) \quad (47)$$

La coordianance moyenne z de l'empilement ne dépendant pas du rapport de taille, on peut l'exprimer à partir de (47) avec $R_2 = R_1$. Ceci permet d'obtenir une relation entre a et b et :

$$z_2^0 = a + \frac{z - a}{2} \frac{R_2}{R_1} \left(1 + \frac{R_2}{R_1}\right) \quad (48)$$

Le modèle suppose que la sphère 2 ne peut pas être libre à l'intérieur d'une cavité de l'empilement des sphères 1, auquel cas sa coordianance serait constante (égale à 3 pour un empilement construit grain par grain). Aussi Bideau limite-t-il la validité de l'équation (48) au cas où $R_2 \geq R_1$. Nous savons en effet que dans l'empilement dense de sphères de même rayon R , il n'existe pas de cavités susceptibles de loger une sphère de rayon $\geq R$ (§ I . B. 2. d. α).

- Coordinances dans un mélange de sphères de deux rayons :

Dans le cas où la sphère 2 n'est plus unique mais fait partie d'un empilement de sphères de rayon R_1 et R_2 , Bideau postule qu'on peut exprimer sa coordianance par une relation analogue à (48) en remplaçant R_1 par le rayon moyen $\bar{R} = n_1 R_1 + n_2 R_2$:

$$z_2 = a + \frac{z - a}{2} \frac{R_2}{\bar{R}} \left(1 + \frac{R_2}{\bar{R}}\right) \quad (49)$$

La coordianance z_1 pourra être obtenue à partir de la relation :

$$z = n_1 z_1 + n_2 z_2$$

On peut alors donner un sens physique à la constante a . En effet, en tirant z_1 de la relation précédente et en exprimant z_2 d'après (49) :

$$(1 - n_1) z_1 = -z - (n_1 - 2) a - \frac{z - a}{2} \left(-1 - 3 \frac{R_1}{\bar{R}} + n_1 \frac{R_1}{\bar{R}} + n_1 \frac{R_1^2}{\bar{R}^2}\right)$$

On peut exprimer la coordianance d'une sphère unique de rayon R_1 placée dans un empilement de sphères de rayon R_2 ($R_2 \geq R_1$) en faisant tendre n_1 vers 0 :

$$z_1 = a + \frac{z - a}{2} \left(3 \frac{R_1}{R_2} - 1\right)$$

A la limite quand R_1/R_2 tend vers 0, z_1 tend vers une limite z_0 qui est la coordinance minimale nécessaire pour assurer la stabilité de la sphère. a peut être relié à z_0 par :

$$a = \frac{z + 2z_0}{3} \quad (50)$$

Dans l'empilement construit grain par grain ($z = 6$, $z_0 = 3$), $a = 4$. Une valeur du paramètre a inférieure à 4 pourra décrire les empilements où les configurations d'équilibre collectif ne sont pas négligeables.

Remarque :

Bideau développe un modèle analogue pour un empilement de disques à 2D. Il obtient alors une expression similaire à (49) :

$$z_2 = a + (z - a) \frac{R_2}{R} \quad (51)$$

Un calcul du même type que celui que nous venons de faire montre que a est alors égal à la limite de stabilité z_0 . Pour l'empilement construit grain par grain, $a = 2$. Une valeur de a inférieure à 2 pourra décrire les empilements où les configurations d'équilibre collectif ne sont pas négligeables.

- Fractions de contacts - coordinances partielles :

Le modèle de Bideau ne donne pas directement les fractions de contacts. On peut les obtenir à partir des coordinances en faisant l'hypothèse que la probabilité d'établir une liaison avec une sphère i de l'empilement est proportionnelle au produit $n_i z_i$. On en déduit alors :

$$t_{11} = \frac{(n_1 z_1)^2}{z^2} \quad t_{22} = \frac{(n_2 z_2)^2}{z^2} \quad t_{12} = \frac{2 n_1 n_2 z_1 z_2}{z^2} \quad (52)$$

Les coordinances partielles sont déduites des fractions de contacts à l'aide des expressions (4), par conséquent :

$$\begin{aligned} z_{11} &= \frac{n_1 z_1^2}{z} & z_{22} &= \frac{n_2 z_2^2}{z} \\ z_{12} &= \frac{n_2 z_1 z_2}{z} & z_{21} &= \frac{n_1 z_1 z_2}{z} \end{aligned} \quad (53)$$

β.2 Modèle de Suzuki et Oshima (1983)

- Coordinance d'une sphère de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j :

Considérons le cas d'une sphère i de centre 0 et de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j . On peut définir la "sphère de contact" de rayon $\sqrt{R_i^2 + 2 R_i R_j}$ centrée en 0 et qui passe par les points de contacts P entre les sphères de coordinances (Figure 12).

Suzuki et Oshima postulent alors que la coordianance de la sphère i z_{ij}^0 est proportionnelle à la fraction de surface de la sphère de contact intersectée par une sphère de coordianance. Un calcul géométrique leur permet d'exprimer cette fraction en fonction du rapport de taille $k_i = R_i/R_j$:

$$z_{ij}^0 = \alpha \frac{2(1+k_i)}{1+k_i - \sqrt{k_i(2+k_i)}} \quad (54)$$

La constante α peut être exprimée à partir de la coordianance moyenne z dans l'empilement de sphères de même taille ($k_i = 1$) :

$$\alpha = \frac{2 - \sqrt{3}}{4} z = 0,067 z \quad (55)$$

Ainsi, si l'on peut négliger les effets collectifs, $z = 6$ et $\alpha = 0,402$.

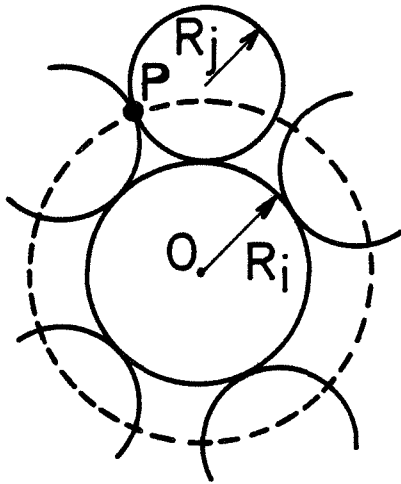


Figure 12 :
Sphère de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j
(La sphère de contact est tracée en pointillés).

- Coordinances dans un mélange de sphères de deux rayons :

Si maintenant la sphère de rayon R_i n'est plus unique mais fait partie d'un empilement de sphères de rayons R_i et R_j , elle pourra être en contact avec une sphère i ou avec une sphère j . Suzuki et Oshima postulent que la probabilité d'établir une liaison avec une sphère j est égale à la fraction de surface spécifique s_j offerte par les sphères j :

$$s_j = \frac{n_j R_j^2}{n_i R_i^2 + n_j R_j^2}$$

Ils expriment alors la coordinance partielle z_{ij} comme le produit de cette probabilité par le terme d'encombrement z_{ij}^0 défini précédemment :

$$z_{ij} = s_j z_{ij}^0 \quad (56)$$

A partir des coordinances partielles, on peut calculer les coordinances moyennes et les fractions de contacts à l'aide des relation (3) et (4).

Remarque :

Suzuki et Oshima développent un modèle analogue pour un empilement de disques à 2D. Ils obtiennent alors l'expression de z_{ij}^0 :

$$z_{ij}^0 = \frac{\frac{\pi}{6} z}{\text{Arc sin} \frac{1}{1 + k_i}} \quad (57)$$

Les coordinances partielles z_{ij} peuvent alors être obtenues par :

$$z_{ij} = l_j z_{ij}^0$$

où l_j représente la fraction de périmètre spécifique offerte par les disques j :

$$l_j = \frac{n_j R_j}{n_i R_i + n_j R_j}$$

c. Analyse critique des modèles

α. Coordinances moyennes de chaque espèce

Les expressions théoriques des coordinances z_1 et z_2 ont été comparées aux valeurs obtenues à partir d'empilements simulés grain par grain. A 2D, les trois modèles donnent de bons résultats (Dodds, Kuno 1975 ; Figure 13).

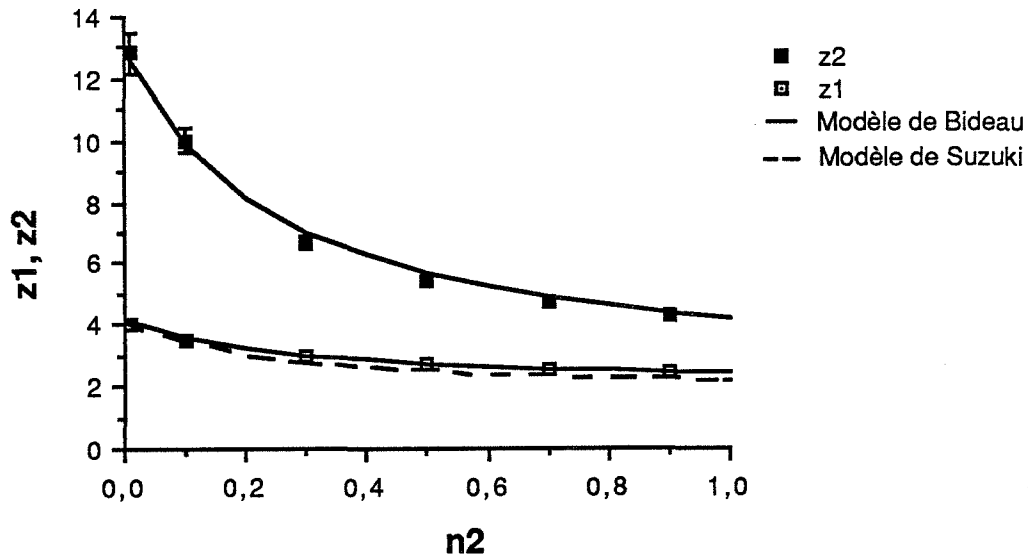


Figure 13 :
 Comparaison des expressions théoriques de la coordinance données par Bideau et Suzuki avec une simulation grain par grain sous force centrale (§ III. C. 1.).

En revanche, les expressions théoriques données par le modèle de Dodds et par le modèle de Bideau à 3D concordent moins bien avec les résultats des simulations (Oger et alii 1986) alors que le modèle de Suzuki et Oshima montre un bon accord. Ces auteurs comparent d'abord avec les résultats de leur modèle la coordinance d'une sphère unique de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j . La concordance est bonne sauf pour les faibles valeurs de R_i/R_j . En fait, on peut améliorer un peu le modèle en imposant une limite physique pour la coordinance z_{ij}^0 , cette limite étant égale à 3 pour l'empilement construit grain par grain. Le résultat ainsi obtenu est présenté sur la figure 14.

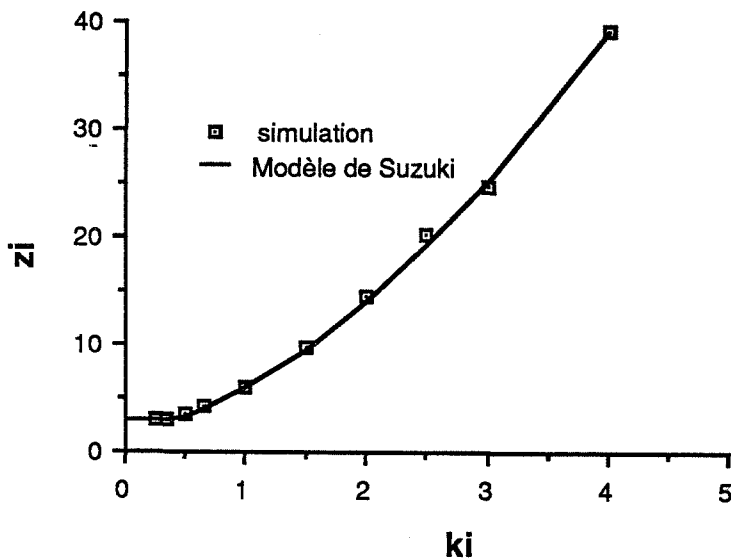


Figure 14 :
 Coordinance d'une sphère de rayon R_i placée dans un empilement de sphères de rayon R_j en fonction de $k_i = R_i/R_j$ (D'après Suzuki et Oshima 1983).

Concernant le mélange, les résultats obtenus à partir de l'équation (56) sont tout à fait satisfaisants (Figure 15).

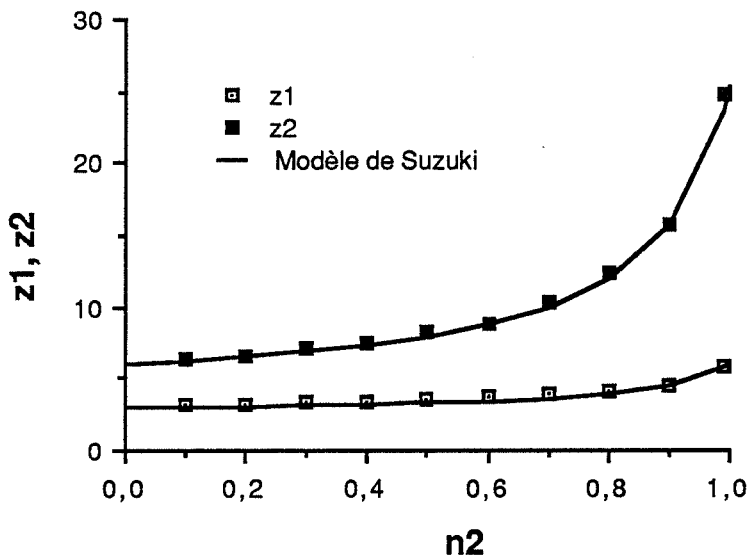


Figure 15 :
 Comparaison des expressions théoriques de z_1 et z_2 données par Suzuki avec les résultats de simulations numériques ($k_2 = 3$) (D'après Suzuki et Oshima 1983).

β . Fractions de contacts

Le modèle de Dodds décrit relativement bien la variation des fractions de contacts t_{ij} avec la composition pour des empilements simulés grain par grain, tant à 2D qu'à 3D (Dodds, Kuno 1975 ; Oger, Troadec et alii 1986). Pour les autres modèles, l'analyse n'a pas été faite, semble-t-il. Nous présentons sur la figure 16, la comparaison des résultats des modèles de Bideau et de Suzuki avec nos simulations à 2D grain par grain sous force centrale (§ III. C. 1.). Comme pour les coordinances moyennes, l'accord est satisfaisant pour les deux modèles.

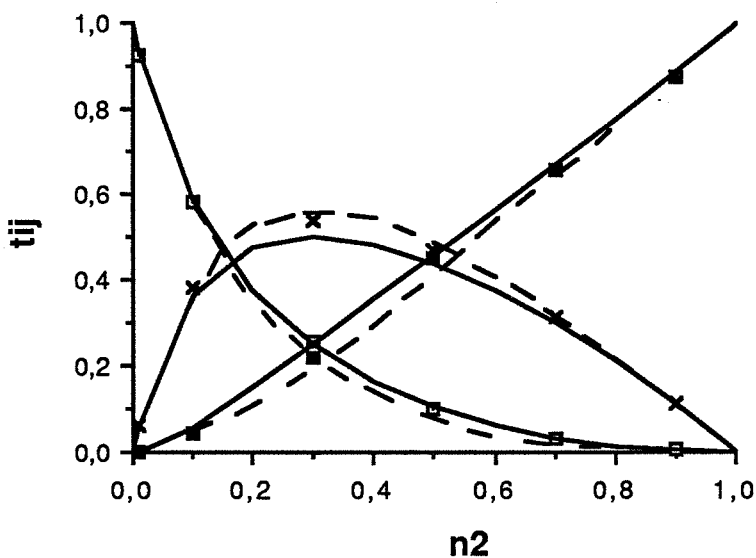


Figure 16 :
 Comparaison des expressions théoriques des fractions de contacts données par Bideau et Suzuki avec les résultats de nos simulations numériques à 2D ($k_2 = 5$).

En résumé, il semble que le modèle de Suzuki et Oshima ait un caractère plus général que ceux de Dodds et de Bideau, puisqu'il donne une description correcte des empilements simulés grain par grain, tant à 2D qu'à 3D. Cependant, ces modèles n'ayant généralement pas été comparés à des résultats obtenus à partir d'empilements de sphères réels, leur application dans ce cas doit être faite avec prudence. Quelques comparaisons ont été faites avec des empilements réels de disques à 2D. Bideau note un bon accord entre son modèle et de tels empilements en ce qui concerne les coordinances z_1 et z_2 (Bideau et alii 1986). Concernant les fractions de contacts, il note des écarts sensibles au modèle de Dodds. En particulier, les fractions de contacts t_{12} observées pour les mélanges réels sont plus grandes que celles prévues par le modèle de Dodds et que celles d'empilements simulés numériquement sous force centrale (Dodds, Kuno 1975). Cet écart est le plus important pour le maximum de t_{12} (voir courbe de la figure 16) et augmente quand le rapport de taille k_2 augmente. Bideau en déduit qu'il se produit une ségrégation des sites dans les empilements réels, les petits disques ayant tendance à venir se bloquer à l'intérieur d'un triangle formé par trois gros disques. Cette ségrégation existerait également à 3D (Bideau 1983).

3. Nombres de contacts par unité de volume

Le nombre total de contacts par unité de volume peut être obtenu comme dans l'empilement de sphères identiques (§ I. eq. (4)) :

$$N_C = \frac{N_V z}{2}$$

N_V représente le nombre de sphères par unité de volume et peut s'exprimer en fonction de la compacité :

$$N_V = \frac{C v_1}{\frac{4}{3} \Pi R_1^3} + \frac{C v_2}{\frac{4}{3} \Pi R_2^3} \quad (58)$$

On peut alors exprimer les nombres de contacts N_{ij} par unité de volume entre grains de l'espèce i et grains de l'espèce j , si l'on connaît les fractions de contacts t_{ij} :

$$N_{ij} = N_C \times t_{ij} \quad (59)$$

Les fractions de contacts peuvent être déterminées à l'aide de l'un des modèles décrits précédemment.

4. Aire de séparation par zones d'influence

Comme pour l'empilement de sphères identiques, on peut exprimer de façon approchée l'aire de séparation par zones d'influence à une distance d comme le produit du nombre de contacts par unité de volume par la surface élémentaire de séparation à une distance d de deux sphères en contact (§ I. B. 2. b. β) :

$$S_{ij}(d) \approx N_{ij} s_{ij}(0, d) \quad (60)$$

On peut obtenir une expression théorique de N_{ij} à partir de (59). Nous donnons en Annexe 2 un calcul de $s_{ij}(0, d)$.

D. LES EMPILEMENTS DE GRAINS REELS - ECARTS AU MODELE IDEAL

1. EFFET D'UNE INHOMOGENEITE DE COMPOSITION

Les dispositifs classiques de mélangeage comme le Turbula conduisent en général à une ségrégation (§ B.B₂). Oger (1987) note des différences importantes entre la courbe de variation de la compacité avec la composition d'un mélange de billes de verre réalisé d'une part au Turbula (Figure 17), d'autre part à l'aide d'un mélangeur statique du même type que celui utilisé par Ben Aïm (Figure 7 du § I.) : la courbe qu'il obtient est plus symétrique que celle obtenue par Ben Aïm (Figure 10) ; le maximum correspond à une composition volumique $v_1 \approx 0,40$ au lieu de 0,27 et il a une amplitude plus faible. Fies (1978) observe le même type de comportement.

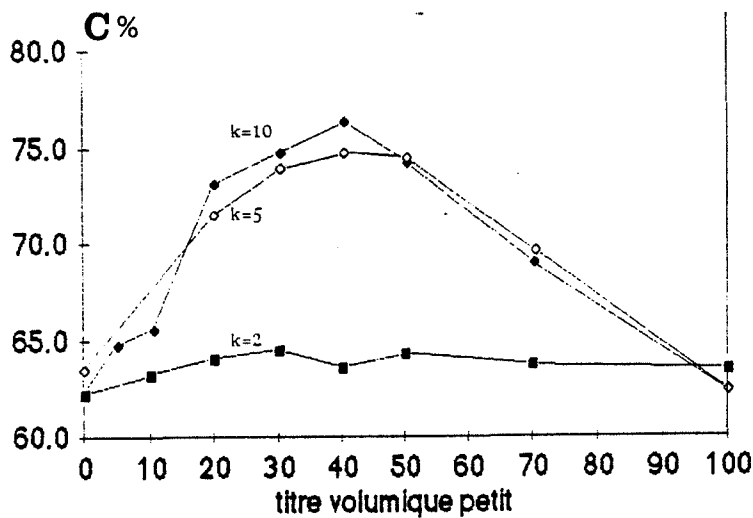


Figure 17 :
Variation de la compacité de mélanges de bille de verre réalisés au Turbula avec la fraction volumique v_1
(D'après Oger 1987).

On peut donner une explication de ce comportement dans le cas d'une ségrégation à large échelle dans le mélange, en suivant un raisonnement analogue à celui que nous avons fait au § B. B₁. 2. b. Supposons que le mélange soit constitué de deux domaines homogènes adjacents D_{inf} et D_{sup} de composition volumique en grains 1 v_{1inf} et v_{1sup} . Notons d'_{inf} la fraction volumique de matière dans le domaine D_{inf} et d'_{inf} la fraction numérique correspondante. v_{1inf} et v_{1sup} sont reliés par :

$$d'_{inf} v_{1inf} + d'_{sup} v_{1sup} = v_1$$

v_1 représentant la fraction volumique moyenne des grains 1 dans le mélange. Le volume granulaire apparent \bar{V}^a peut s'exprimer comme une combinaison linéaire des volumes granulaires apparents dans chacun des deux domaines :

$$\bar{V}^a = d_{\text{inf}} \bar{V}_{\text{inf}}^a + (1 - d_{\text{inf}}) \bar{V}_{\text{sup}}^a$$

Et on a une relation analogue pour le volume granulaire \bar{V} :

$$\bar{V} = d_{\text{inf}} \bar{V}_{\text{inf}} + (1 - d_{\text{inf}}) \bar{V}_{\text{sup}}$$

Par conséquent, on peut exprimer $1/C$ à partir de (26) :

$$\frac{1}{C} = \frac{d_{\text{inf}} \bar{V}_{\text{inf}}}{\bar{V}} \frac{1}{C_{\text{inf}}} + \frac{(1 - d_{\text{inf}}) \bar{V}_{\text{sup}}}{\bar{V}} \frac{1}{C_{\text{sup}}} \quad (61)$$

$1/C_{\text{inf}}$ et $1/C_{\text{sup}}$ pouvant être déterminées à l'aide des relations (38) et (39) avec $v_1 = v_{1\text{inf}}$ et $v_{1\text{sup}}$ respectivement.

Nous avons ainsi calculé la compacité de mélanges de sphères pour un rapport de taille $k_2 = 5$ et pour différentes valeurs de v_1 . Nous avons fixé la valeur de d'_{inf} à 0,5 (d_{inf} peut alors être calculé pour toute valeur de v_1) et la valeur du décalage de composition $\Delta v_1 = v_{1\text{sup}} - v_1$ à 0,2 pour toute composition v_1 . La figure 18 montre le résultat obtenu comparé à l'expression théorique de Ben Aïm pour un mélange homogène. On observe le même type de comportement que celui décrit par Oger.

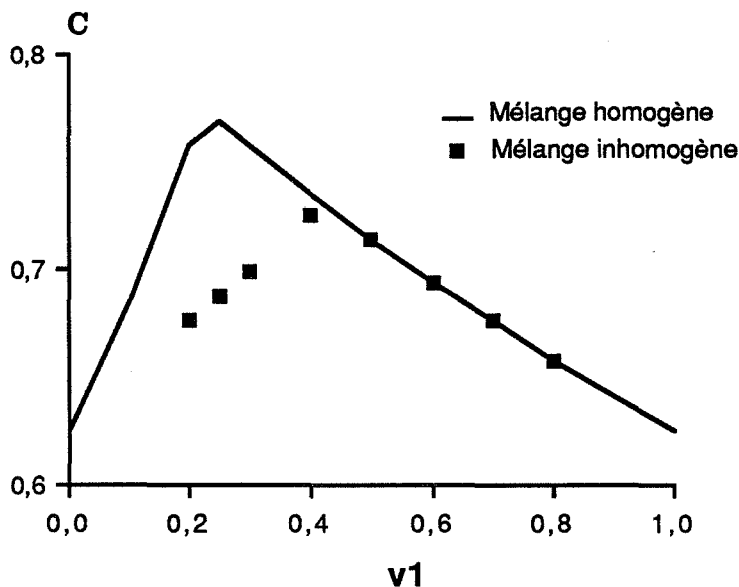


Figure 18 :

Comparaison de la compacité d'un mélange homogène avec celle obtenue à partir de l'équation (61) ($C_0 = 0,625$; $k_2 = 5$; $d'_{\text{inf}} = 0,5$; $\Delta v_1 = 0,2$).

On pourrait montrer par un raisonnement analogue que la présence d'inhomogénéités dans le mélange a pour effet d'abaisser le maximum de la fraction de contacts t_{12} (courbe de la figure 16) mais nous ne connaissons pas de mise en évidence expérimentale de ce fait.

2. EFFET DE LA NON-SPHERICITE DES GRAINS

a. grains de forme anisotrope

Ben Aïm (1970) montre par un calcul théorique que "plus un corps est éloigné de la symétrie sphérique, plus il a tendance à augmenter la porosité moyenne des lits de grains sphériques dans lesquels il est plongé". Plus précisément, si l'on introduit dans un empilement de sphères un corps convexe de forme quelconque caractérisé par ses dimensions principales dans trois directions perpendiculaires, "on observera une augmentation notable de la porosité moyenne à condition que l'une des dimensions soit supérieure au diamètre des sphères et qu'une autre soit nettement inférieure". Ben Aïm vérifie ceci expérimentalement en introduisant des plaquettes métalliques dans un empilement de sphères. Cet effet est donc strictement contraire à celui observé lorsqu'on mélange des sphères.

b. grains de forme polyédrique

Oger (1987) étudie la variation de la compacité d'un mélange avec la composition, pour des billes de verre d'une part, et pour des grains polyédriques de sables-graviers d'autre part. Concernant les mélanges de sables-graviers, il n'observe quasiment pas de variation pour les rapports de taille inférieurs ou égaux à 5, alors que pour les rapports supérieurs ou égaux à 10, la variation est du même type que celle observée pour les mélanges de sphères (Figure 19).

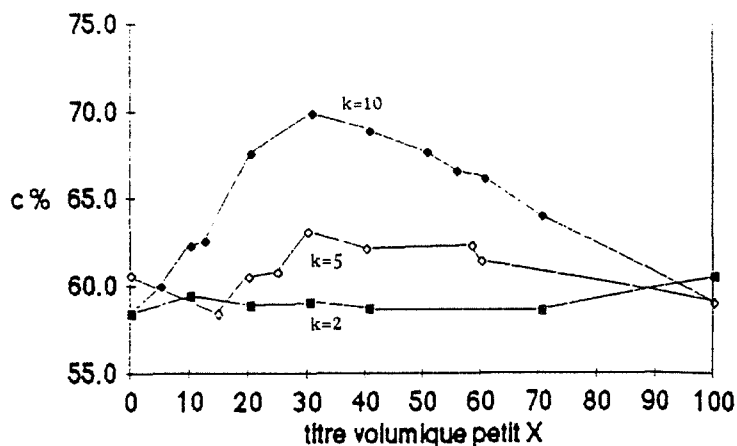


Figure 19 :
Variation de la compacité de mélanges de sables-graviers en fonction de la fraction volumique v_1 pour différents rapports de taille k_2 (D'après Oger 1987).

Oger explique cette différence de comportement par le fait que dans l'empilement de polyèdres, les petits grains peuvent rester coincés entre deux gros grains, ce qui diminue localement la compacité. Quand le rapport de taille est grand ($k_2 \geq 10$), cet effet devient négligeable devant l'augmentation de compacité due aux mécanismes d'insertion et de substitution (§ C. 1. b. α .) et la variation observée est analogue à celle des mélanges de sphères.

Concernant les coordinances moyennes des deux espèces, il est probable, comme pour l'empilement de grains identiques, qu'elles soient inférieures à celles des mélanges de sphères, compte tenu de l'existence de voûtes plus nombreuses. De plus, si l'interprétation d'Oger développée ci-dessus est correcte, le mélange doit comporter un nombre important de petits grains ayant une coordinance 2. Ammi et alii (1987) observent d'ailleurs que la coordinance moyenne de mélanges binaires de pentagones à 2D présente un minimum en fonction de la composition, contrairement aux mélanges de disques pour lesquels elle ne varie pas. Nous ne connaissons pas d'études analogues à 3D.

CHAPITRE III. ANALYSE PAR SIMULATION DES EFFETS D'UN MODE DE CONSTRUCTION COLLECTIF SUR LES PARAMETRES DE L'EMPILEMENT

Nous avons vu à plusieurs reprises dans les chapitres I et II l'importance des effets collectifs dans la réalisation d'un empilement, particulièrement en ce qui concerne les empilements lâches ou très peu denses. Ces empilements présentent une distribution de coordinance et une distribution de taille des pores plus larges que celles de l'empilement réalisé grain par grain.

Le but de l'étude que nous présentons maintenant est de décrire par simulation numérique certains effets d'un mode de construction collectif de l'empilement. Compte tenu de la complexité du problème, nous avons choisi de traiter dans un premier temps le cas d'un empilement de disques à 2 dimensions. L'empilement est réalisé collectivement sous l'action d'une force centrale. Les transferts d'énergie cinétique lors des chocs entre disques sont négligés, ce qui correspond au cas physique où les particules ont une vitesse faible au moment de la formation de l'empilement. Les voûtes formées sont alors toutes stables (elles ne peuvent être détruites par choc) et on peut ainsi atteindre la compacité (resp. la coordinance moyenne) minimale d'un empilement aléatoire de disques en équilibre sous force centrale.

A. ALGORITHME DE LA SIMULATION

La simulation a été réalisée à l'aide d'un micro-ordinateur OLIVETTI M 380. Le programme est écrit en PASCAL 4.0. L'algorithme utilisé se distingue radicalement des algorithmes "à addition séquentielle" ou "à réarrangement collectif" définis par Clarke et Wiley (1986) et que nous avons présentés au chapitre I.

Le programme a été écrit presque entièrement par Luc Rouillé. Les différents calculs géométriques qu'il utilise ne sont pas présentés dans ce travail mais figurent dans son rapport (L. Rouillé 1988).

Ce programme permet de construire un empilement de N disques ($N \leq 1500$) à 2 types de disques 1 et 2 (rayons R_1 et R_2). L'empilement de disques de même rayon peut être obtenu comme cas particulier. Bien que le programme ne traite actuellement que des mélanges binaires, rien ne s'oppose en principe à son extension au traitement de distributions de taille plus complexes.

Les paramètres définis par l'utilisateur sont les suivants :

- N : nombre total de disques
- R_0 : rayon du disque central
- R_1 : rayon des disques 1
- R_2 : rayon des disques 2 ($R_2 \geq R_1$)
- s_2 : fraction surfacique des disques 2
- C_0 : compacité initiale de l'empilement
- p : pas du déplacement des disques.

L'algorithme utilisé est le suivant :

Un disque de rayon R_0 est d'abord placé au centre du système, qui est aussi le centre d'action de la force centrale. R_0 est choisi légèrement supérieur à R_2 de manière à éviter la formation d'une structure ordonnée hexagonale. Les nombres N_1 et N_2 de disques 1 et 2 sont calculés à partir de N et de s_2 :

$$N_2 = \frac{s_2/R_2^2}{(1 - s_2)/R_1^2 + s_2/R_2^2} N$$

$$N_1 = N - N_2$$

Les disques sont placés de manière aléatoire à l'intérieur d'un cercle dont le rayon ρ va dépendre de la compacité initiale choisie :

$$\rho = \sqrt{\frac{N_1 R_1^2 + N_2 R_2^2}{C_0}}$$

On place d'abord les N_2 gros disques. On tire au hasard une position (x, y) pour le centre du disque à l'intérieur du carré circonscrit au cercle de rayon ρ . On retient la position si elle est à l'intérieur du cercle et si le disque ne coupe pas un disque déjà placé. On procède ensuite de même pour placer les N_1 petits disques.

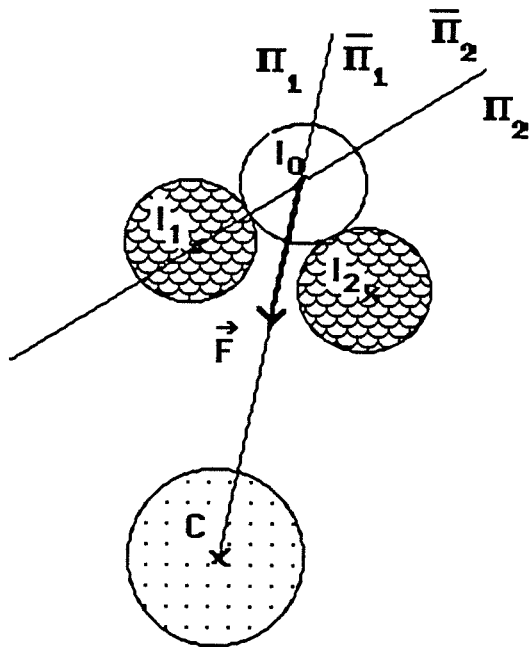
Puis, on effectue une série de cycles. A chaque cycle, on déplace les disques un par un par ordre de distance au centre croissant, le déplacement s'effectuant dans la direction du centre avec un pas de longueur p . Si le pas p est choisi suffisamment faible, chaque cycle simule ainsi un léger déplacement collectif des disques.

Si un disque I_0 entre en collision avec un disque I_1 durant son déplacement rectiligne, le disque cible I_1 est supposé immobile. Le disque I_0 roule sur I_1 dans la direction du centre. Si le disque I_1 entre en collision avec un deuxième disque I_2 durant sa rotation, deux cas peuvent se produire :

1. les deux disques cibles I_1 et I_2 bloquent le mouvement de I_0 (Figure 1a). I_0 est alors immobilisé et on passe au disque suivant.
2. I_0 peut rouler sur le second disque sous l'action de la force centrale (Figure 1b). Il continue alors son mouvement.

Un test géométrique simple sur les positions respectives de I_2 et des demi-plans Π_1 et Π_2 (Figure 1) permet de séparer les cas 1 et 2.

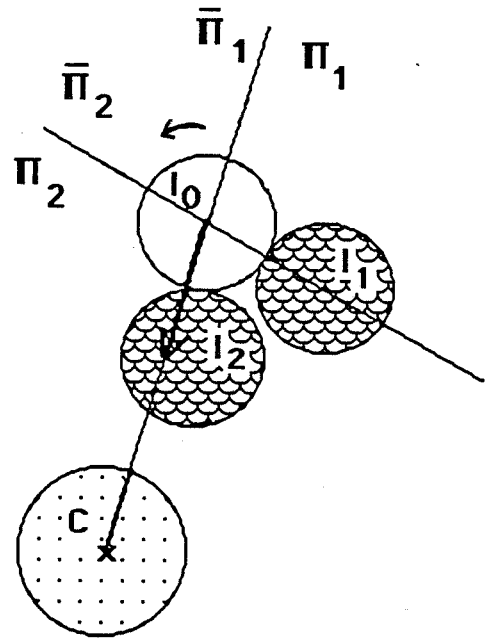
Quand le disque cible ne lui fait plus obstacle, le disque I_0 peut reprendre son mouvement rectiligne vers le centre (Figure 2).



a. disque bloqué $\Leftrightarrow I_2 \in \Pi_1 \cap \Pi_2$

Figure 1 :

Condition pour la rotation d'un disque.



b. la rotation est possible

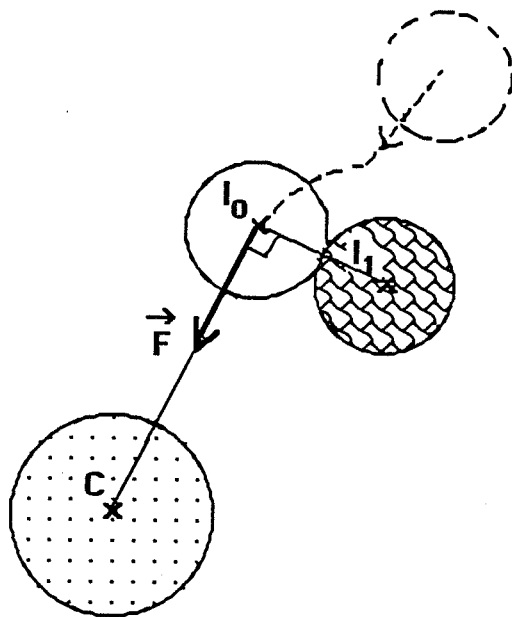


Figure 2 :

Fin de rotation d'un disque.

Le déplacement du disque est arrêté quand l'une des trois conditions suivantes est remplie :

- le disque en mouvement entre en contact avec le disque central
- on obtient une configuration du type de celle de la figure 1a
- la longueur totale de déplacement du disque (rectiligne + curviligne) est égale au pas p .

On passe alors au disque suivant. Quand tous les disques ont été traités, on commence un nouveau cycle. Le programme s'arrête quand aucun disque n'a été déplacé durant un cycle complet. L'empilement est alors en équilibre sous force centrale.

B. PRINCIPE DES MESURES EFFECTUEES

Les mesures sont toutes effectuées selon le même principe. L'empilement est découpé en couronnes circulaires d'épaisseur $R_1/2$, centrées au centre de l'empilement, la première couronne s'appuyant sur le disque central. Une mesure est faite dans chaque couronne, puis on trace la variation du paramètre mesuré en fonction de la distance au centre (Figure 3). La moyenne et l'écart-type de l'estimation sont évalués après élimination d'une zone centrale et d'une zone du bord extérieur de l'empilement. Pratiquement, on élimine une couronne d'épaisseur R_2 autour de la sphère centrale et sur le bord extérieur de l'empilement. Pour ne pas prendre en compte la partie décroissante de la courbe de variation (Figure 3), on procède de la manière suivante : on décrémente pas à pas l'indice de la couronne, en partant de la dernière. Pour chaque couronne d'indice k , on compare la valeur mesurée à celle mesurée dans la couronne d'indice $k - 10$. Si elle est inférieure, on poursuit la décrémentation. Le processus s'arrête quand on arrive sur le palier de la courbe. On retient alors le dernier indice comme borne supérieure pour la mesure.

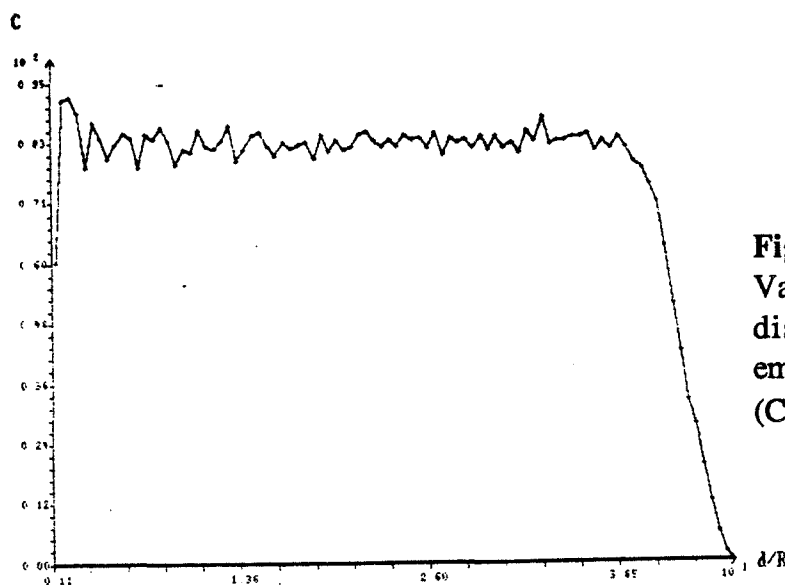


Figure 3 :
Variation de la compacité avec la distance au centre pour un empilement monotaille ($C_0 = 0,1 - p/\rho = 1,6$).

1. MESURE DE LA COMPACITE

Pour mesurer la compacité dans une couronne k , on détermine d'abord les disques qui coupent la couronne. L'aire A_s de la surface intersectée est calculée par une méthode géométrique décrite par Rouillé (1988). La compacité C_k dans la couronne vaut alors :

$$C_k = \frac{A_s}{A_{C_k}}$$

où A_{C_k} est l'aire de la couronne d'indice k .

La moyenne est pondérée en surface sur les t couronnes définies précédemment :

$$C = \frac{\sum_{k=1}^t A_{C_k} C_k}{A_C} \quad (1)$$

où A_C représente l'aire totale analysée :

$$A_C = \sum_{k=1}^t A_{C_k}$$

La variance de l'estimation peut s'écrire :

$$\sigma^2(C) = \frac{1}{A_C^2} \sigma^2 \left(\sum_{k=1}^t A_{C_k} C_k \right)$$

Si l'on suppose que les mesures dans les différentes couronnes sont indépendantes :

$$\sigma^2(C) = \frac{1}{A_C^2} \sum_{k=1}^t A_{C_k}^2 \sigma^2(C_k) \quad (2)$$

$\sigma^2(C_k)$ est la variance de l'estimation dans une couronne k. Les couronnes n'étant pas semblables, $\sigma^2(C_k)$ va dépendre de la couronne k. En particulier, plus la couronne sera grande, plus l'estimation sera précise et plus $\sigma^2(C_k)$ sera faible. N'ayant pas accès à $\sigma^2(C_k)$ nous faisons un calcul approché en remplaçant tous les $\sigma^2(C_k)$ dans l'équation (2) par une moyenne calculée sur toutes les couronnes :

$$\frac{\sum_{k=1}^t A_{C_k} (C_k - C)^2}{A_C}$$

La variance de l'estimation de C peut alors être approchée par :

$$\sigma^2(C) \# \frac{\sum_{k=1}^t A_{C_k}^2}{A_C^3} \sum_{k=1}^t A_{C_k} (C_k - C)^2 \quad (3)$$

2. MESURE DES COORDINANCES

Pour mesurer les coordinances partielles dans une couronne, on commence par rechercher les disques 1 et 2 dont les centres sont à l'intérieur de la couronne. Pour chaque disque i ($i = 1$ ou 2), on cherche les disques j ($j = 1$ ou 2) tels que la distance d_{ij} entre les centres de i et j vérifie la relation :

$$d_{ij} < R_i + R_j + \varepsilon \quad \text{avec } \varepsilon = 10^{-8} R_1.$$

On peut alors compter le nombre de coordinants j de i . En faisant la moyenne sur les disques i dans la couronne, on obtient la coordinance partielle z_{ij} dans la couronne. La coordinance moyenne z_i ($i = 1$ ou 2) s'obtient alors par :

$$z_i = z_{i1} + z_{i2}$$

et la coordinance moyenne globale z par :

$$z = n_1 z_1 + n_2 z_2$$

n_1 et n_2 étant les fractions numériques mesurées dans la couronne.

Les valeurs moyennes α sur tout l'empilement sont déterminées par une relation du type :

$$\alpha = \frac{\sum_{k=1}^t N_k \alpha_k}{\sum_{k=1}^t N_k} \quad (4)$$

où α peut représenter z_{ij} , z_i ou z et où N_k est le nombre de grains concernés par la mesure dans la couronne k (grains i pour z_{ij} ou z_i , grains 1 et 2 pour z).

On obtient une approximation de l'écart-type de l'estimation comme au § 1 :

$$\sigma^2(\alpha) \approx \frac{\sum_{k=1}^t N_k^2}{\left(\sum_{k=1}^t N_k\right)^3} \sum_{k=1}^t N_k (\alpha_k - \alpha)^2 \quad (5)$$

On calcule les fractions de contacts t_{ij} à partir des coordinances partielles en utilisant les relations (4) du § II.

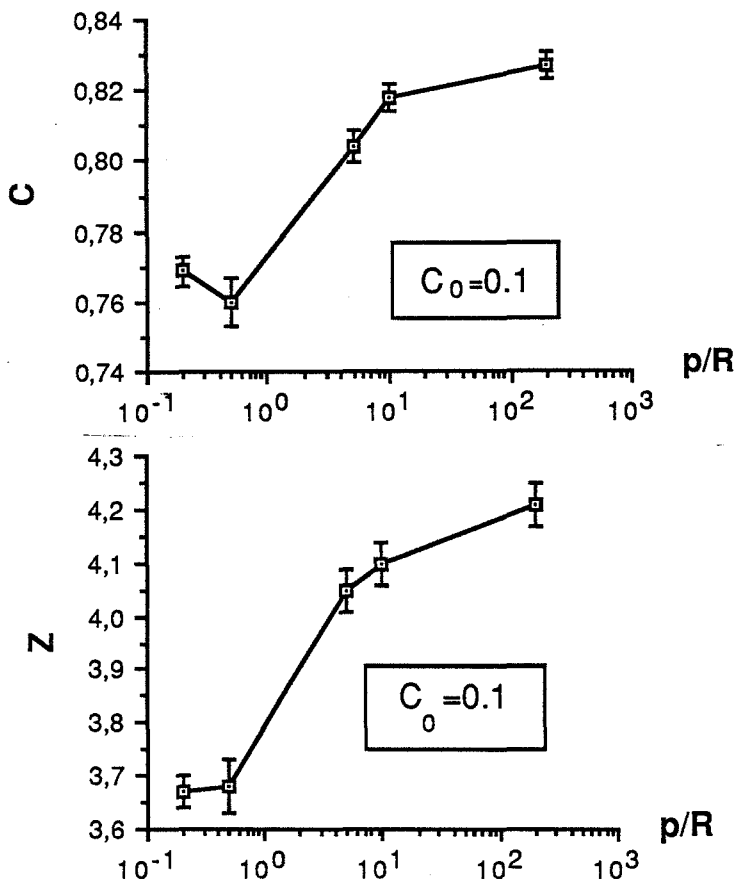
C. ANALYSE D'UN EMPILEMENT DE DISQUES IDENTIQUES - INFLUENCE DES PARAMETRES DE LA SIMULATION

Dans ce paragraphe, nous analysons des empilements de 1500 disques de même rayon R , simulés avec différentes valeurs de la compacité initiale C_0 et du pas de déplacement p .

1. INFLUENCE DU PAS p DU DEPLACEMENT

La figure 4 représente la variation de la compacité et de la coordinance moyenne de l'empilement avec le pas de déplacement utilisé pour la simulation.

Quand le pas est supérieur au rayon ρ du cercle de tirage aléatoire ($p/R > 122$ pour $C_0 = 0,1$), les disques vont se placer un à un de manière définitive dès le premier cycle de déplacement. On a ainsi simulé un empilement aléatoire construit grain par grain. Si la compacité initiale C_0 n'est pas trop grande, on doit alors retrouver les résultats obtenus pour les empilements construits numériquement à l'aide d'un algorithme à addition séquentielle, ou pour les empilements réels denses (sans voûtes). Nous avons comparé les résultats mesurés pour un empilement simulé avec une compacité initiale $C_0 = 0,1$ et un pas p supérieur à ρ ($p/R = 200$) avec différents résultats trouvés dans la littérature (Table 1). L'accord est tout à fait satisfaisant. Les empilements obtenus dans ces conditions présentent des zones d'ordre hexagonal (Figure 5). La présence de ces zones, plus ou moins importantes, explique la dispersion des valeurs trouvées dans la littérature concernant la coordinance. En particulier, elle explique la possibilité d'obtenir une valeur supérieure à 4. En effet, suivant un raisonnement analogue à celui que nous avons fait au § I.B.1.a.α, on peut dire que **dans un empilement construit grain par grain**, chaque disque apporte 2 liaisons à l'empilement. Chaque liaison comptant pour 2 grains, la **coordinance moyenne** d'un tel empilement est 4. Une valeur supérieure indique la présence de structures ordonnées. Une valeur inférieure indique la présence de configurations d'équilibre collectif.



a.

Figure 4 :
Variation de la compacité (a) et de la coordinance (b) d'un empilement avec le pas de déplacement p/R .

b.

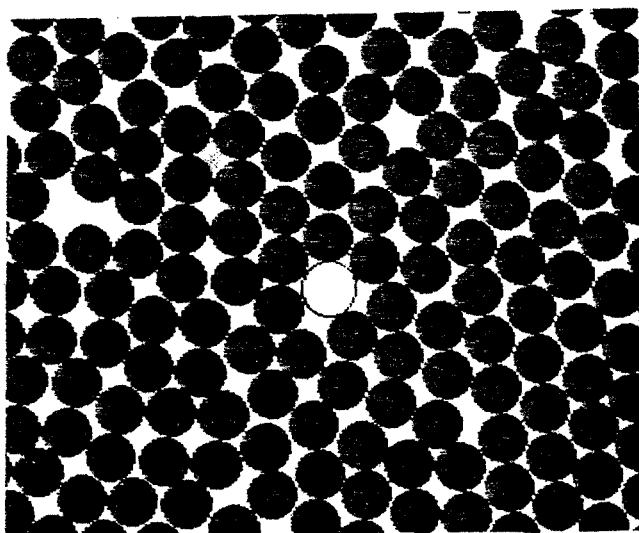


Figure 5 :
Empilement simulé avec :
 $C_0 = 0,1$ et $p/R = 200$.

Réf. #	Bideau Trodec 1984	Dodds 1975	Quickenden Tan 1974	Vischer Boisterli 1972	Dodds Kuno 1975	Bideau Gervois 1986	Kausch Fesko 1971	Rubinstein Nelson 1982	Bideau 1986	Berryman 1983	Ce travail
Mode de Construction	Analogique sous pesanteur	Analogique sous pesanteur	Analogique sous force centrale	Numérique sous pesanteur	Numérique sous pesanteur	Numérique sous force centrale	Numérique sous force centrale	Numérique sous force centrale	Calcul théorique	Calcul théorique	Numérique sous force centrale
C	$0,84 \pm 0,01$	-----	$0,830 \pm 0,015$	0,82	-----	0,83	$0,827 \pm 0,004$	$0,825 \pm 0,02$	0,822	0,823	$0,835 \pm 0,005$
z	$3,75 \pm 0,1$	4,72	4	-----	4,02	4,1	-----	-----	-----	-----	$4,21 \pm 0,05$

Table 1 :

Différents résultats de la littérature concernant les empilements construits grain par grain.

A l'inverse quand le pas tend vers 0, on simule un déplacement collectif des grains. La figure 4 montre que les caractéristiques n'évoluent plus quand le pas est inférieur à $R/2$. On utilisera donc de telles valeurs lorsqu'on voudra simuler un empilement collectif. Les empilements obtenus présentent des voûtes plus ou moins grandes (Figure 6). La compacité et la coordinance moyenne varient alors beaucoup avec la compacité initiale C_0 .

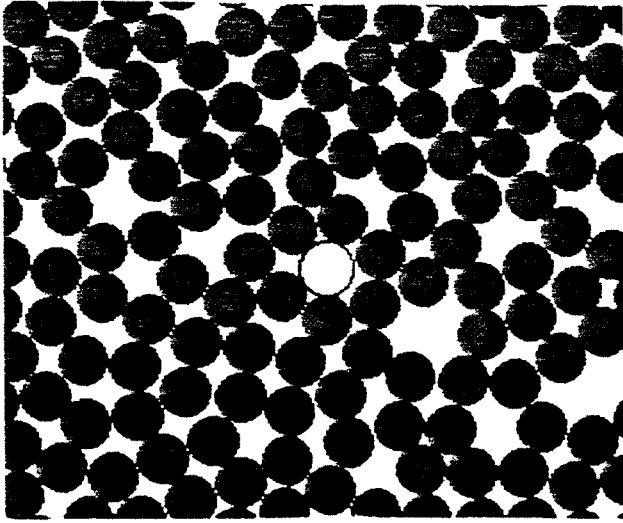


Figure 6 :
Empilement simulé avec $C_0 = 0,1$ et
 $p/R = 0,2$ ($C \approx 0,77$).

2. INFLUENCE DE LA COMPACTITE INITIALE POUR UN EMPILEMENT CONSTRUIT COLLECTIVEMENT - L'EMPILEMENT DE COMPACTITE MINIMALE

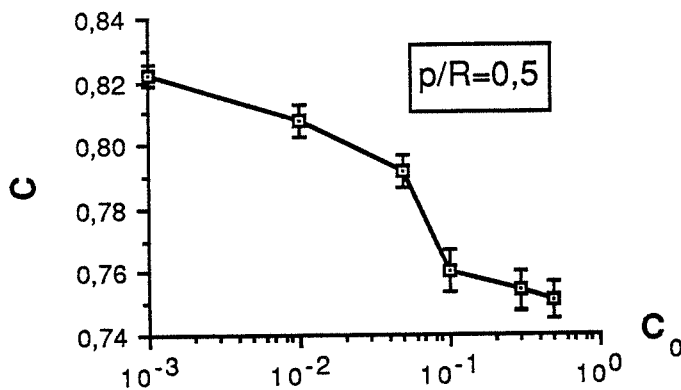
La figure 7 représente la variation de la compacité et de la coordinance moyenne de l'empilement avec la compacité initiale C_0 pour un pas $p = R/2$ (empilement collectif). Quand celle-ci est faible, la probabilité de chocs entre particules est faible et la construction de l'empilement se fait quasiment grain par grain, même pour un pas faible. Dans ce cas, on observe des zones d'ordre hexagonal. Plus la compacité initiale augmente, plus les effets collectifs deviennent importants. Quand elle tend vers 0,5, la compacité et la coordinance moyenne de l'empilement tendent respectivement vers les valeurs :

$C = 0,756 \pm 0,003$	$z = 3,40 \pm 0,03$
-----------------------	---------------------

Ces valeurs sont probablement les valeurs minimales pour un empilement aléatoire de disques en équilibre sous force centrale. L'étude de l'influence de C_0 pour les valeurs supérieures à 0,5 n'a pas pu être faite car le tirage aléatoire des disques tel qu'il a été défini au § A. devient alors impossible.

L'empilement de compacité minimale ne présente pas de structures d'ordre hexagonal (Figure 8). La distribution des coordinances dans un tel empilement est plus large que dans un empilement construit grain par grain (Figure 9). On observe en particulier des disques qui ont une coordinance 2, ce qui est caractéristique de configurations d'équilibre collectif. Il existe très peu de travaux dans la littérature concernant ce type d'empilements. Pour la compacité minimale, nous n'avons pas trouvé d'éléments de comparaison. Pour la coordinance, Bideau et

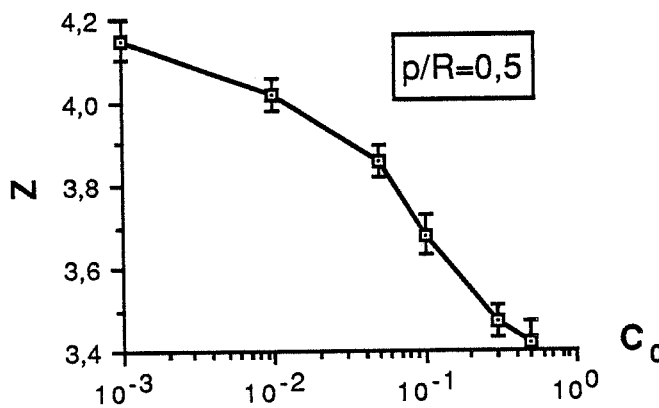
alii (1986) ont cherché à déterminer la coordinance minimale d'un empilement de disques stable sous pesanteur. Ils ont effectué une simulation numérique sur un empilement hexagonal compact, orienté de manière que la force de pesanteur ne soit pas parallèle à l'un des axes du réseau. Ils enlèvent alors, de manière aléatoire, les liaisons redondantes, c'est-à-dire qui ne sont pas nécessaires à l'équilibre d'un disque ou à celui de l'empilement (§ I., Figure 8). La coordinance minimale ainsi atteinte est $z = 3,45 \pm 0,05$. Uhler et Schilling (1985) ont calculé avec un critère de stabilité différent la coordinance moyenne minimale d'un empilement aléatoire stable de disques. Ils trouvent $z = 3,416$. Ces valeurs sont très proches de la limite que nous proposons.



a.

Figure 7 :

Variation de la compacité et de la coordinance moyenne de l'empilement avec la compacité initiale C_0 pour un pas $p/R : 0,5$.



b.

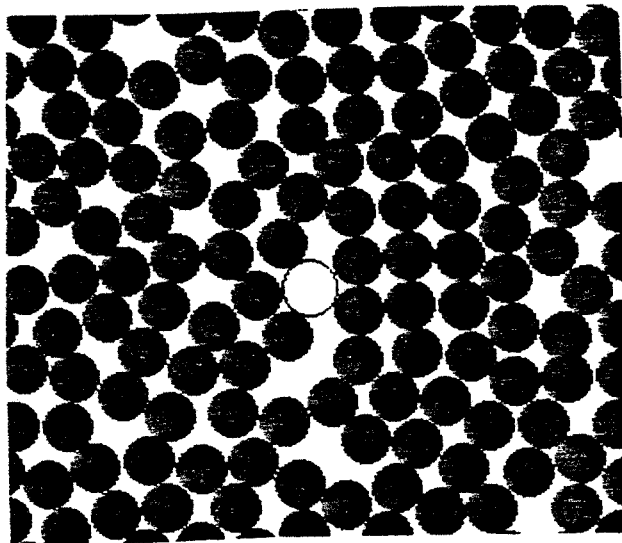


Figure 8 :

Empilement de compacité minimale ($C_0 = 0,5 - p/R = 0,5$).

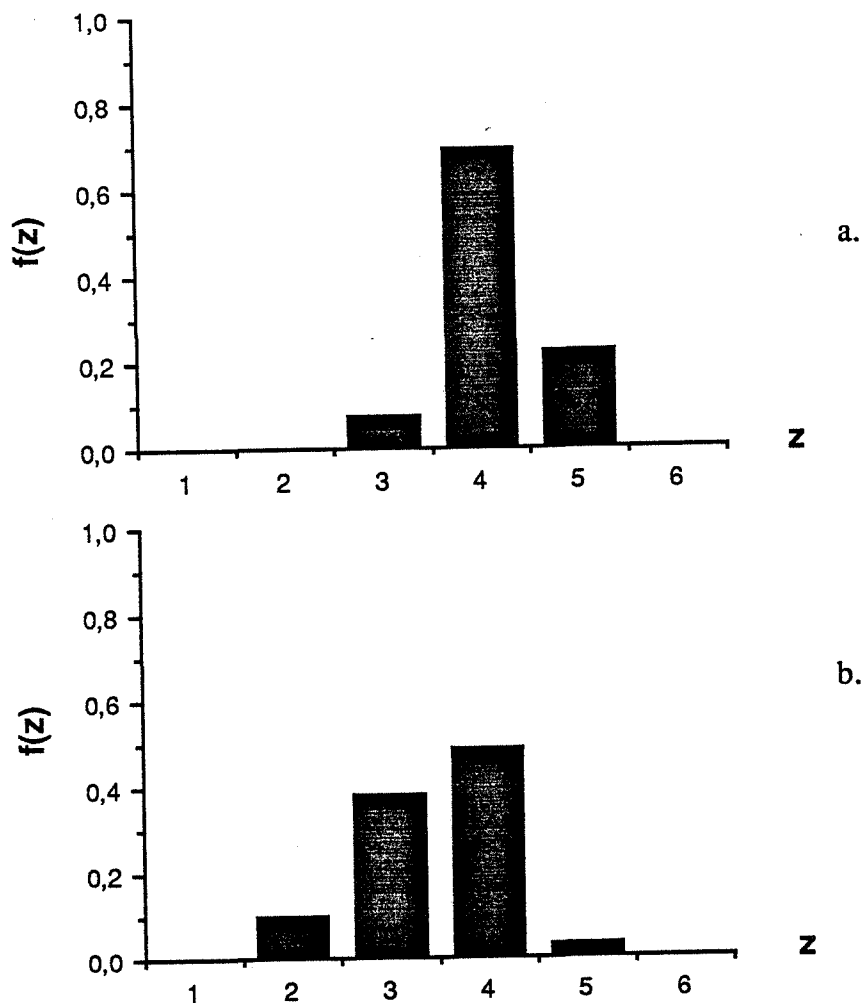


Figure 9 :

Distribution de la coordinance dans un empilement construit grain par grain ((a) avec $C_0 = 0,001$ - $p/p = 2$) et un empilement collectif de compacité minimale ((b) avec $C_0 = 0,5$ - $p/R = 0,2$).

La chute brutale de la compacité et de la coordinance moyenne avec la compacité initiale C_0 pour les empilements construits collectivement (Figure 7) est intéressante à noter. Elle correspond qualitativement au cas des expériences de Macrae à 3D (§ I.B.1.c.). Cet auteur note des phénomènes de blocage collectif au cours de la formation de l'empilement, quand l'intensité de dépôt des particules en chute augmente.

La transition d'un empilement construit grain par grain à un empilement où les blocages collectifs sont importants est liée à la diminution du libre parcours moyen des particules quand la densité initiale du système augmente. Ce libre parcours moyen λ peut être calculé de façon approximative en suivant un raisonnement analogue à celui de Clausius pour une molécule de gaz. Considérons un disque qui suit un mouvement rectiligne sur une distance x . Ce disque est susceptible d'entrer en collision avec d'autres disques dont les centres sont à l'intérieur de la surface d'aire $S \approx 4 R x$. Le nombre moyen n_D^0 de centres de disques à l'intérieur de la surface S peut être relié à C_0 par :

$$n_D^0 = \frac{S C_0}{\Pi R^2}$$

et la distance moyenne parcourue entre 2 chocs vaut environ :

$$\lambda = \frac{x}{n_D} = \frac{\Pi}{4 C_0} R \quad (6)$$

La transition observée sur la figure 7 correspond à une valeur de C_0 à peu près égale à 0,1. Dans ce cas, la valeur de λ/R est environ égale à 8. Il est intéressant de transposer ce raisonnement à 3 dimensions. Dans ce cas, on peut montrer que :

$$\lambda = \frac{1}{3 C_0} R \quad (7)$$

Si l'on admet alors que le rapport λ/R est le paramètre critique de la transition, on trouve une valeur de $C_0 = 0,04$ à 3D pour $\lambda/R = 8$. Cette valeur correspond assez bien à l'ordre de grandeur observé par Macrae (§ I., Figure 5).

D. ANALYSE D'UN MELANGE BINAIRE DE DISQUES - INFLUENCE DU RAPPORT DE TAILLE ET DE LA COMPOSITION

Dans ce paragraphe, nous analysons des empilements de 1000 disques, présentant des rayons R_1 ou R_2 ($R_2 \geq R_1$) simulés avec un pas $p = R_1/2$ et une compacité initiale $C_0 = 0,5$ (Figure 10). D'après les résultats du § C., on obtient alors des empilements collectifs de compacité minimale.

Nous avons étudié l'influence de la fraction surfacique s_2 de gros disques sur la compacité C , la coordinance moyenne globale z , les coordinances moyennes z_1 et z_2 des 2 espèces et les fractions de contact t_{11} , t_{22} et t_{12} , pour différentes valeurs du rapport de taille $k_2 = R_2/R_1$.

1. COMPACTITE ET COORDINANCE MOYENNE GLOBALE

La compacité ne présente pas de variation significative avec s_2 (Figure 11). Bideau et Troadec (1984) observent le même résultat pour des empilements réels de disques, bien que leurs systèmes soient plus denses ($C = 0,84$).

La coordinance moyenne ne varie pas non plus avec s_2 (Figure 11). Ce résultat a également été obtenu par différents auteurs pour des empilements denses ($z \approx 4$) simulés par ordinateur (Kuno 1972 ; Suzuki, Oshima 1983) et pour des empilements réels (Dodds 1975 ; Bideau et Troadec 1984).

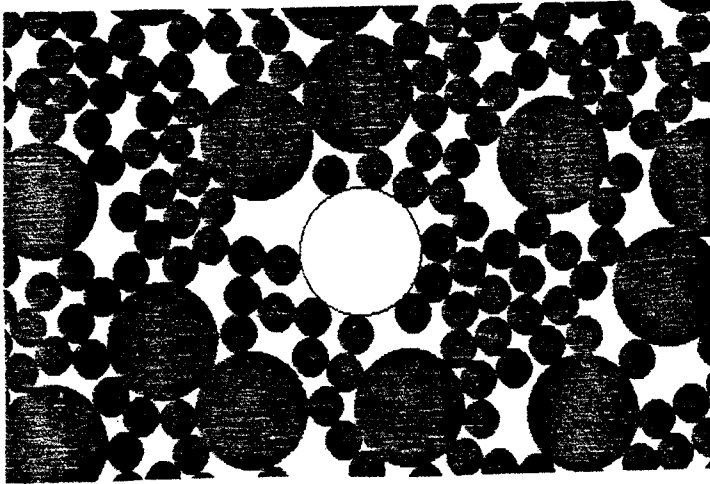


Figure 10 :
Empilement collectif binaire de disques ($k_2 = 3$, $s_2 = 60\%$).

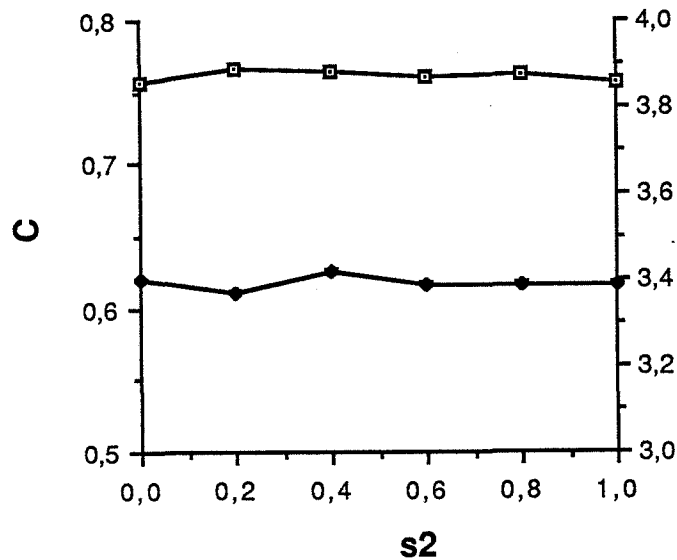


Figure 11 :
Variation de C et z avec s_2 dans un empilement collectif binaire de disques ($k_2 = 3$).

□ C
◆ z

2. COORDINANCES MOYENNES DE CHAQUE ESPECE

La variation des coordinances moyennes z_1 et z_2 avec la fraction surfacique s_2 est représentée sur la figure 12, pour les rapports de taille $k_2 = 2$ et $k_2 = 5$. Nous comparons ces valeurs à celles données par le modèle de Bideau d'une part, et par le modèle de Suzuki et Oshima d'autre part (§ II.C.2.b.). La valeur de la coordinance moyenne z que nous avons utilisée pour le calcul des valeurs théoriques est $z = 3,4$, valeur mesurée pour l'empilement de disques identiques de compacité minimale (§ C). La valeur du paramètre a du modèle de Bideau a été optimisée par la méthode des moindres carrés à l'aide des résultats des simulations pour $k_2 = 2$ et $k_2 = 5$. La valeur obtenue est $a = 1,89$. Cette valeur semble indiquer que la limite physique de la coordinance est légèrement inférieure à la valeur 2 qu'elle prend dans l'empilement construit grain par grain (§ II.C.2.b.β.β₁).

Le modèle de Bideau s'applique mieux aux résultats des simulations que le modèle de Suzuki et Oshima pour l'empilement construit collectivement. Ceci s'explique par le fait que le modèle de Bideau utilise un coefficient ajustable pour décrire la limite physique de la coordinance.

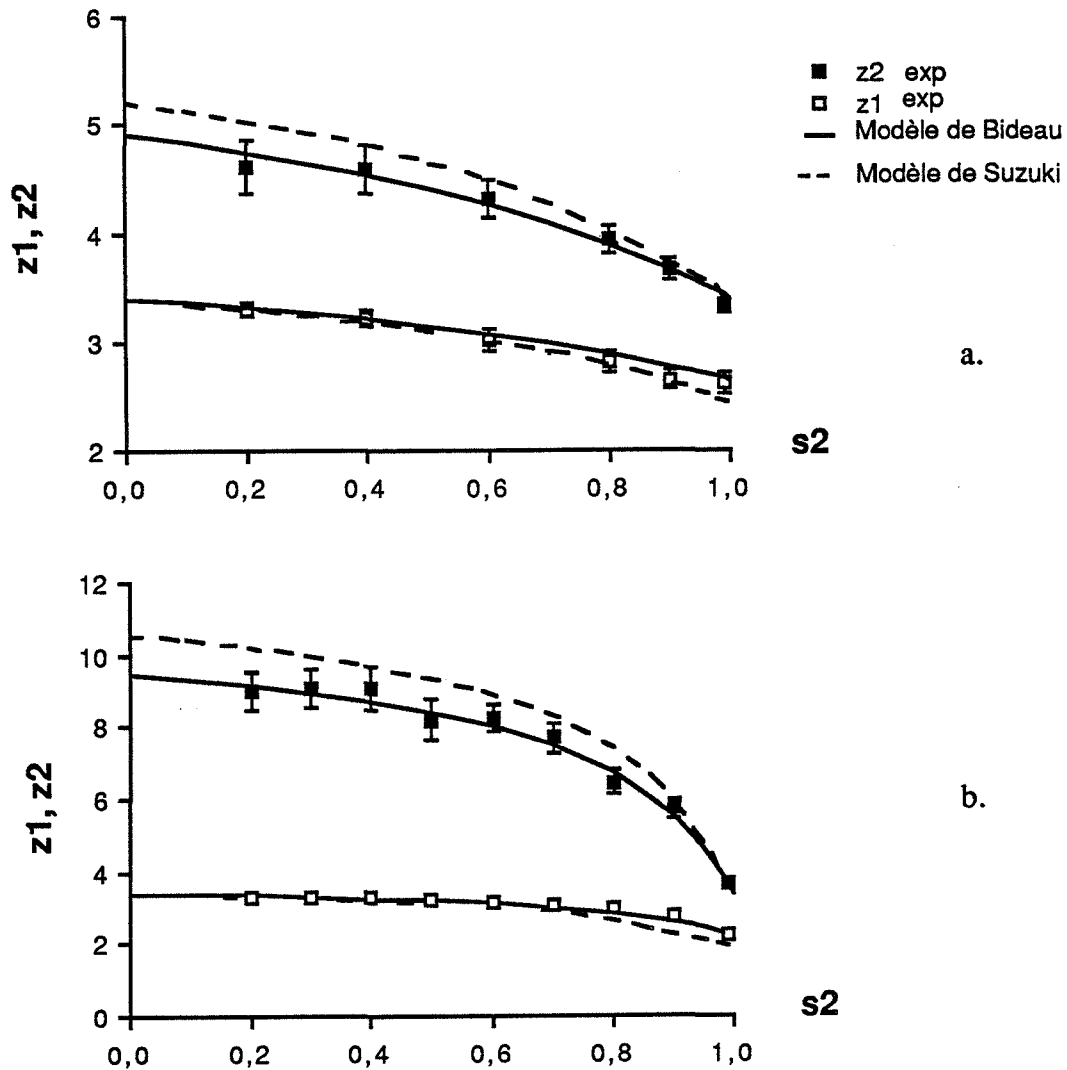


Figure 12 :

Variation des coordinances moyennes z_1 et z_2 avec s_2

a. $k_2 = 2$

b. $k_2 = 5$.

3. FRACTIONS DE CONTACT

La variation des fractions de contact avec la fraction surfacique s_2 est présentée sur la figure 13 pour les rapports de taille $k_2 = 2$ et 5. Nous comparons ces valeurs à celles calculées à partir des équations (52) du § II. en utilisant les expressions théoriques des coordinances moyennes z_1 et z_2 données par le modèle de Bideau. L'accord est très satisfaisant.

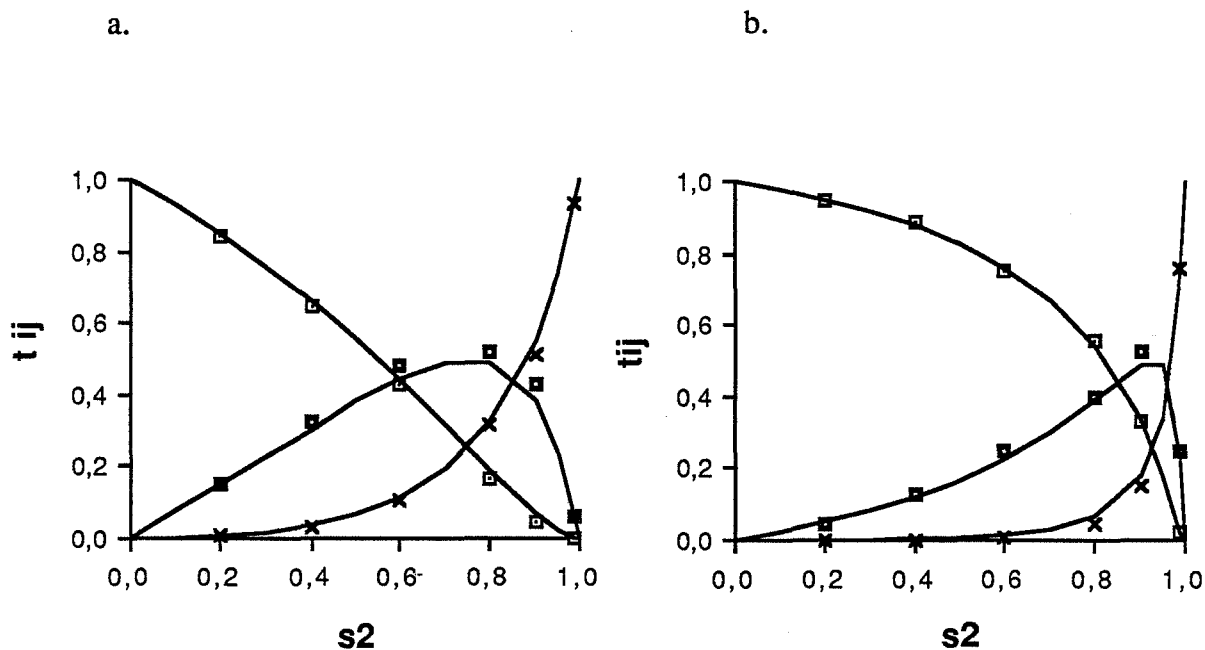


Figure 13 :
Variation des fractions de contact avec s_2

a. $k_2 = 2$

b. $k_2 = 5$.

- t_{11} exp
- × t_{22} exp
- t_{12} exp
- Modèle de Bideau

IIème PARTIE

Etude d'empilements de grains de WO_3 et NiO

Dans cette partie, nous étudierons des empilements réels de grains d'oxyde de tungstène (1) et d'oxyde de nickel (2). L'oxyde de tungstène utilisé est un produit commercial "Koch-Light" de grande pureté et de granulométrie étalée dont nous avons extrait plusieurs tranches granulométriques étroites par tamisage. Les grains de WO_3 sont des agrégats de cristallites, de forme plutôt polyédrique (Figure 1). L'oxyde de nickel "Merck" pro analysi a une granulométrie plus fine. Nous avons fritté des pastilles constituées de mélanges NiO - Li_2O (10 % Li en atomes) à $900^\circ C$. Ces pastilles ont été ensuite concassées dans un broyeur de type planétaire puis on a extrait par tamisage plusieurs tranches granulométriques étroites. Les grains de NiO ont également une forme plutôt polyédrique (Figure 2).

Dans un premier temps, nous présenterons les méthodes d'analyse que nous avons employées pour étudier ces empilements. Puis nous suivrons l'influence du mode de construction sur les caractéristiques d'un empilement de grains WO_3 . Enfin, dans le cas de mélanges de grains de WO_3 et de NiO, nous étudierons l'influence du mode de mélangeage ainsi que du rapport de taille des grains sur les caractéristiques de l'empilement.

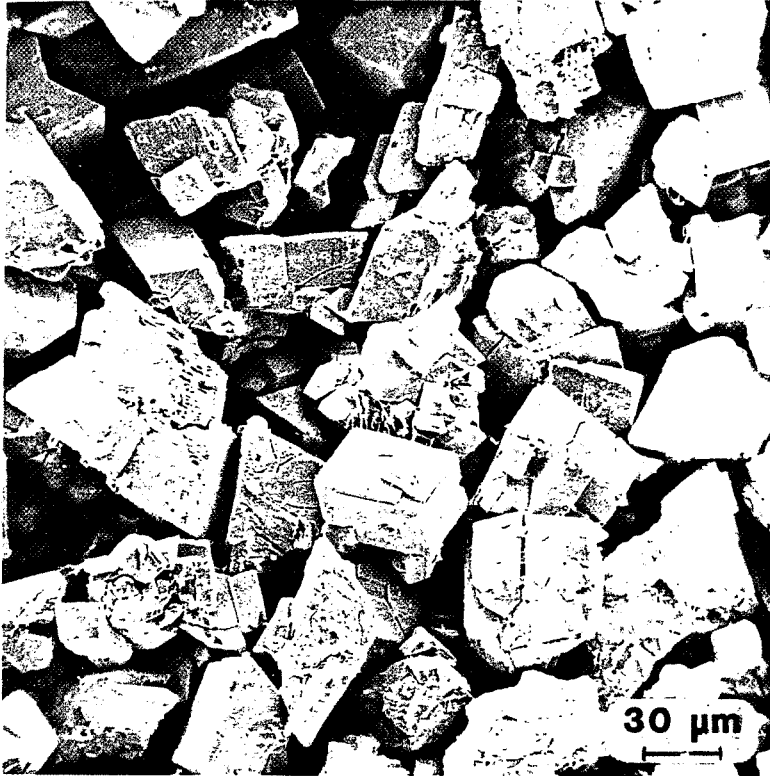


Figure 1 :
Examen des grains de WO_3 au microscope électronique à balayage
(50-80 μm - x 320).

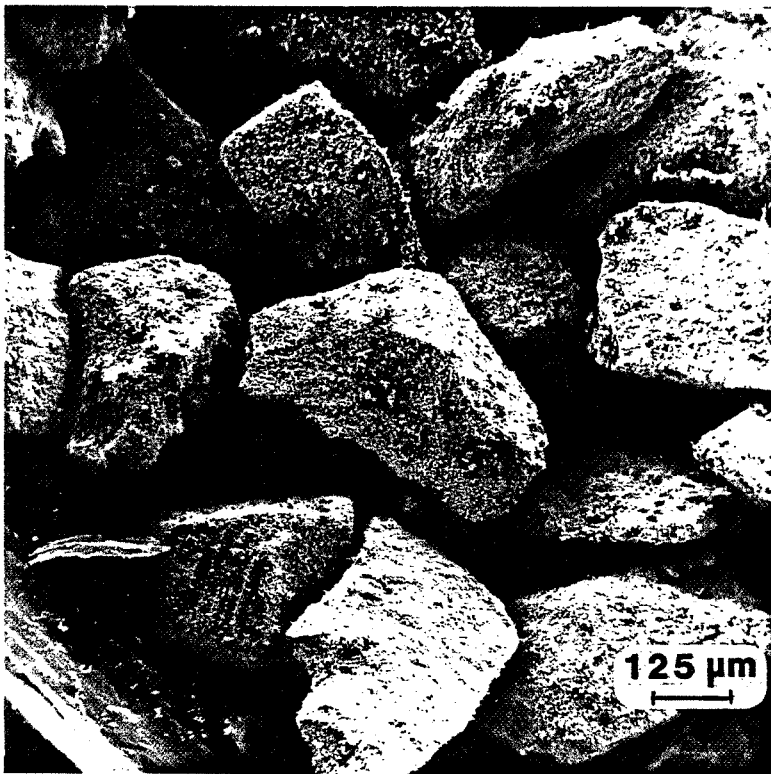


Figure 2 :
Examen des grains de NiO au microscope électronique à balayage
(200-280 μm - x 80).

CHAPITRE IV. LES METHODES D'ANALYSE

A. L'ANALYSE D'IMAGES

L'analyse d'une image comprend généralement trois étapes :

- Le traitement de l'image qui a pour but d'extraire de l'image originale l'ensemble Y que l'on veut analyser (Y pouvant être un ensemble de grains, le milieu poreux d'un empilement, les cellules de la rétine d'un embryon de poussin, etc...).
- La mesure sur l'image traitée ; cette mesure peut être effectuée dans l'espace à 2 dimensions (R^2) que constitue le plan de l'image, ou dans un sous espace de R^2 (un ensemble R^1 de droites du plan ou un ensemble R^0 de points du plan) ; nous appellerons cet espace **l'espace d'échantillonnage**.
- L'estimation, à partir de ces mesures, de grandeurs caractéristiques en utilisant les concepts mathématiques de la stéréologie.

1. NOTIONS DE STEREOLOGIE

La stéréologie est une discipline des mathématiques qui étudie les relations entre paramètres mesurés dans différents espaces d'échantillonnage. Une image peut être la représentation d'un objet plan (par exemple une page de texte) mais elle peut être aussi la projection ou la section d'un objet tridimensionnel, auquel cas la stéréologie prend toute son importance puisqu'elle permet, dans certaines conditions que nous préciserons, d'estimer des paramètres de l'objet inaccessibles à la mesure dans le plan. La stéréologie des images de projections est encore peu développée actuellement. Nous n'aborderons pas ce sujet ici. Nous traiterons uniquement le cas des images de sections.

Considérons un ensemble Y quelconque, Y pouvant représenter aussi bien une collection d'objets disjoints (par exemple un empilement de grains) qu'un milieu continu (par exemple le milieu poreux intergranulaire d'un empilement). Considérons un ensemble X fermé et borné qui constituera les limites de l'espace d'échantillonnage de Y . Si X contient l'ensemble Y tout entier, on dira qu'on réalise une **analyse globale** de Y . Si au contraire X est placé à l'intérieur de la structure de Y , on dira qu'on réalise une **analyse locale** de Y (Serra 1982). Indépendamment de l'échelle d'analyse (locale ou globale), il faut distinguer 2 types d'analyse : **l'analyse texturale** et **l'analyse individuelle** (Serra 1982). L'analyse individuelle suppose que Y est constitué d'objets disjoints Y_i et s'intéresse à des paramètres morphologiques moyens de ces objets (par exemple leur volume moyen ou leur surface moyenne). L'analyse texturale ne fait aucune hypothèse sur la structure de Y (continue ou discontinue) et permet d'évaluer des paramètres moyens de cette structure (par exemple sa compacité ou sa surface spécifique).

Nous présenterons d'abord les relations fondamentales de la stéréologie en analyse texturale dans des conditions particulières. Nous verrons ensuite comment on peut appliquer ces relations à l'analyse d'images de sections planes.

a. Relations fondamentales de la stéréologie

Nous faisons les hypothèses suivantes :

- X est un cube dans lequel on inscrit un réseau régulier cubique de points dont les plans de symétrie sont parallèles aux faces du cube (Figure 1). On définit alors les espaces d'échantillonnage suivants :

R^0 = ensemble des points du réseau

R^1 = ensemble des droites parallèles du réseau suivant une direction w

R^2 = ensemble des plans du réseau parallèles au plan de base

R^3 = cube tout entier.

Nous appellerons **élément d'échantillonnage** un point dans R^0 ou une droite dans R^1 ou un plan dans R^2 . Ainsi, **chaque espace d'échantillonnage est un réseau régulier d'éléments d'échantillonnage.**

- Y a une **structure isotrope aléatoire et homogène** dans X (I.A.H.), c'est-à-dire qui ne présente pas d'orientation préférentielle, pas d'ordre à longue distance et que Y est uniformément réparti dans X. On se reportera à Miles (1978 a) pour plus de précisions concernant ces conditions (modèle HIESP = homogeneous and isotropic ergodic stochastic process). Nous utiliserons dans la suite les notations d'Underwood (1970), Serra (1982), Coster et Chermant (1985). Il semble qu'il n'y ait pas actuellement de consensus concernant les notations en stéréologie. Nous étudierons dans un premier temps le cas d'un ensemble Y tridimensionnel. Nous analyserons ensuite les cas triviaux où Y est réduit à un ensemble de surfaces (2D) ou à un ensemble de lignes (1D).

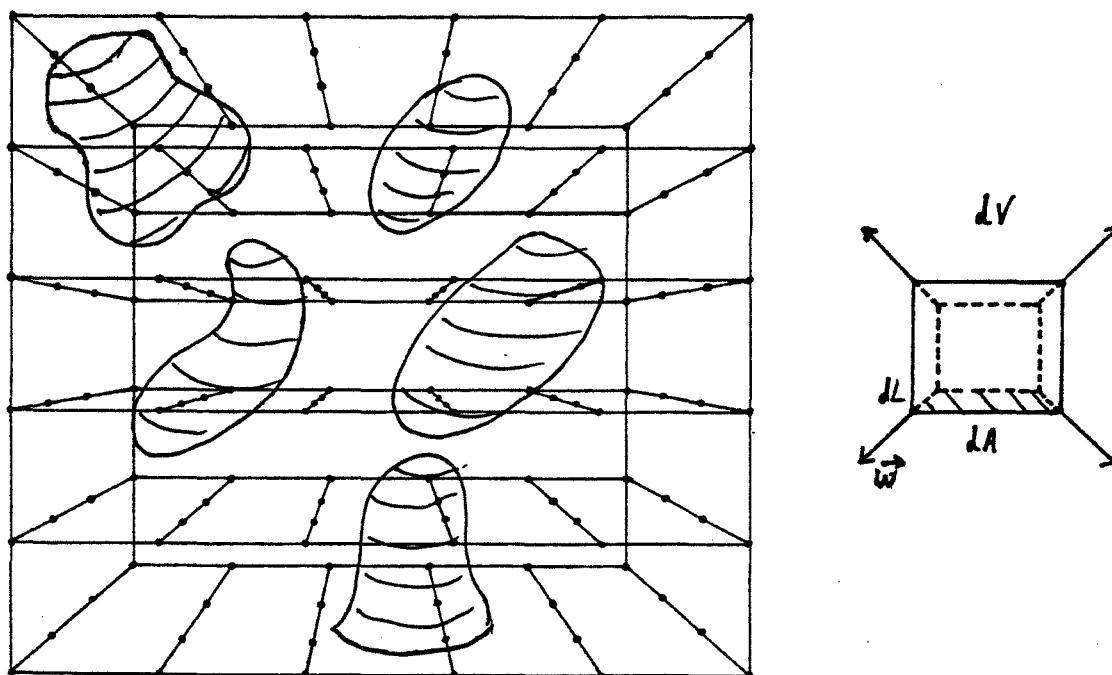


Figure 1 :

Représentation schématique d'un ensemble 3D isotrope, aléatoire et homogène Y inclus dans un domaine cubique X.

α . Stéréologie d'un ensemble de dimension 3

Nous définissons un certain nombre de **paramètres stéréologiques**, c'est-à-dire des paramètres qui peuvent être reliés par des relations stéréologiques :

- dans R^0 :
 - . N_0 = nombre de connexité dans R^0 qui est égal au nombre de points de $Y \cap R^0$
- dans R^1 :
 - . N_1 = nombre de connexité dans R^1 qui est égal à un nombre de segments de $Y \cap R^1$
 - . L_1 = longueur totale de $Y \cap R^1$
- dans R^2 :
 - . N_2 = nombre de connexité dans R^2 , qui est égal au nombre de sections planes de $Y \cap R^2$ moins le nombre de trous dans ces sections. Si Y contient des objets homéomorphes* de la sphère (par exemple des grains non poreux), $N_2(Y)$ est égal au nombre de sections planes de $Y \cap R^2$ (Serra 1982)
 - . L_2 = longueur totale des contours de $Y \cap R^2$
 - . A = aire totale de $Y \cap R^2$
- dans R^3 :
 - . N_3 = nombre de connexité dans R^3 qui est égal au nombre de surfaces délimitant l'ensemble $Y \cap R^3$, diminué de la somme des genres* des ces surfaces. Si Y contient des objets homéomorphes* de la sphère, $N_3(Y)$ est égal au nombre d'objets de $Y \cap R^3$ (Serra 1982)
 - . V = volume total de $Y \cap R^3$
 - . S = aire de la surface externe de $Y \cap R^3$
 - . K = intégrale de courbure moyenne de la surface externe S de $Y \cap R^3$

$$K = \int_S H(S) dS$$

où $H(S)$ est la courbure moyenne de S en un point de la surface.

Avec ces notations, et celles de la figure 1 pour l'élément de longueur du réseau dL , l'élément de surface dA et l'élément de volume dV , on obtient les relations stéréologiques de la table 1 sous la forme $\gamma = E(\alpha)$, où α est un estimateur* du paramètre γ (dans le cas général, dL_1 est la distance entre les points du réseau dans R^1 , dL_2 est la distance entre les droites du réseau dans R^2 , dL_3 est la distance entre les plans du réseau dans R^3 , dA_2 est l'aire élémentaire dans R^2 , dA_3 est l'aire élémentaire dans le plan perpendiculaire à R^1 , et dV_3 est le volume élémentaire dans R^3 . Pour un réseau cubique : $dL_1 = dL_2 = dL_3 = dL$ et $dA_2 = dA_3 = dA$). Cet estimateur est non biaisé*, c'est-à-dire que son espérance mathématique notée $E(\alpha)$ est égale au paramètre γ qu'il "estime" (la valeur la plus probable de α est γ).

Espace	Paramètres			
R^3	$V = E(N_0 dV_3)$	$S = E(4 N_1 dA_3)$	$K = E(2\pi N_2 dL_3)$	N_3
R^2	$A = E(N_0 dA_2)$	$L_2 = E(\pi N_1 dL_2)$	N_2	
R^1	$L_1 = E(N_0 dL_1)$	N_1		
R^0	N_0			

Table 1 :

Relations entre les paramètres de base (d'après Coster et Chermant 1985) pour un ensemble tridimensionnel.

Ces relations ont été souvent démontrées, sous cette forme ou sous celle présentée dans la table 2 (voir par exemple Underwood 1970, Coster et Chermant 1985). Elles reposent sur les principes de la géométrie intégrale (Hadwiger 1957, Matheron 1975) ou des probabilités géométriques (De Hoff et Rhines 1968). L'hypothèse de structure isotrope et aléatoire pour Y est fondamentale sauf pour les relations de la première colonne.

Par exemple, $2N_1 dA_3$ est un estimateur de l'aire totale de Y en projection sur un plan perpendiculaire à w (le facteur 2 rendant compte du fait que chaque segment coupe 2 fois la surface externe des objets) :

$$E(2N_1 dA_3) = \sum_{i=1}^n \delta S \cos \theta_i$$

où δS est un élément de la surface externe de Y et θ_i est l'angle entre cet élément de surface et le plan de projection. On peut écrire :

$$E(2N_1 dA_3) = n \delta S \cdot \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \cos \theta_i = S \overline{\cos \theta}$$

$\overline{\cos \theta}$ est la valeur moyenne sur toutes les orientations de δS par rapport au plan de projection. Si l'orientation de la surface est isotrope, on peut montrer que $\overline{\cos \theta} = 1/2$ (Underwood 1970) d'où l'estimateur donné dans la table 1.

On a coutume de ramener les expressions de la table 1 à l'unité de mesure dans l'espace d'échantillonnage. On obtient alors les expressions classiques de la table 2 où les indices V, A, L et P indiquent que la mesure est faite respectivement par unité de volume dans R^3 , par unité de surface dans R^2 , par unité de longueur dans R^1 et par unité de point dans R^0 . Pour ne pas alourdir les notations, on laisse généralement tomber les indices 0, 1, 2, 3 de l'espace d'échantillonnage.

Espace	Paramètres			
\mathbb{R}^3	$V_V = E(N_P)$	$S_V = E(4 N_L)$	$K_V = E(2 \Pi N_A)$	N_V
\mathbb{R}^2	$A_A = E(N_P)$	$L_A = E(\Pi N_L)$	N_A	
\mathbb{R}^1	$L_L = E(N_P)$	N_L		
\mathbb{R}^0	N_P			

Table 2 :

Relations entre les paramètres de base pour un ensemble tridimensionnel ramenés à l'unité de mesure (d'après Coster et Chermant 1985).

Ces relations en induisent d'autres par composition :

$$V_V = E(A_A) = E(L_L)$$

$$S_V = E(4/\Pi L_A)$$

$$A_A = E(L_L)$$

β . Stéréologie des surfaces

Dans ce paragraphe, Y est un ensemble de surfaces, continu ou discontinu (Figure 2). Les espaces d'échantillonnage sont alors \mathbb{R}^1 , \mathbb{R}^2 et \mathbb{R}^3 (la probabilité d'intersection d'une surface avec un réseau fini de points est nulle). On définit les paramètres suivants :

- N_L = nombre de points par unité de longueur de $Y \cap \mathbb{R}^1$
- N_A = nombre de lignes par unité de surface de $Y \cap \mathbb{R}^2$
- L_A = longueur par unité de surface de $Y \cap \mathbb{R}^2$
- N_V = nombre de connexité par unité de volume de $Y \cap \mathbb{R}^3$
- S_V = aire par unité de volume de $Y \cap \mathbb{R}^3$
- K_V = intégrale de courbure moyenne par unité de volume de $Y \cap \mathbb{R}^3$.

On obtient alors les relations stéréologiques de la table 3.

Espace	Paramètres		
R^3	$S_V = E(2N_L)$	$K_V = E(2\pi N_A)^*$	N_V
R^2	$L_A = E\left(\frac{\pi}{2}N_L\right)$	N_A	
R^1	N_L		

Table 3 :

Relations stéréologiques pour un ensemble bidimensionnel

* Pour des surfaces fermées uniquement.

 γ . Stéréologie des lignes

Dans ce paragraphe, Y est un ensemble de lignes dans R^3 (Figure 3). Les espaces d'échantillonnage sont alors R^3 et R^2 . On définit les paramètres suivants :

- N_A = nombre de points par unité de surface de $Y \cap R^2$
- N_V = nombre de lignes par unité de volume de $Y \cap R^3$
- L_V = longueur par unité de volume de $Y \cap R^3$
- C_V = intégrale de courbure moyenne par unité de volume de $Y \cap R^3$

On obtient alors les relations stéréologiques de la table 4.

Espace	Paramètres		
R^3	$L_V = E(2N_A)$	$C_V = ?$	N_V
R^2	N_A		

Table 4 :

Relations stéréologiques pour un ensemble monodimensionnel.

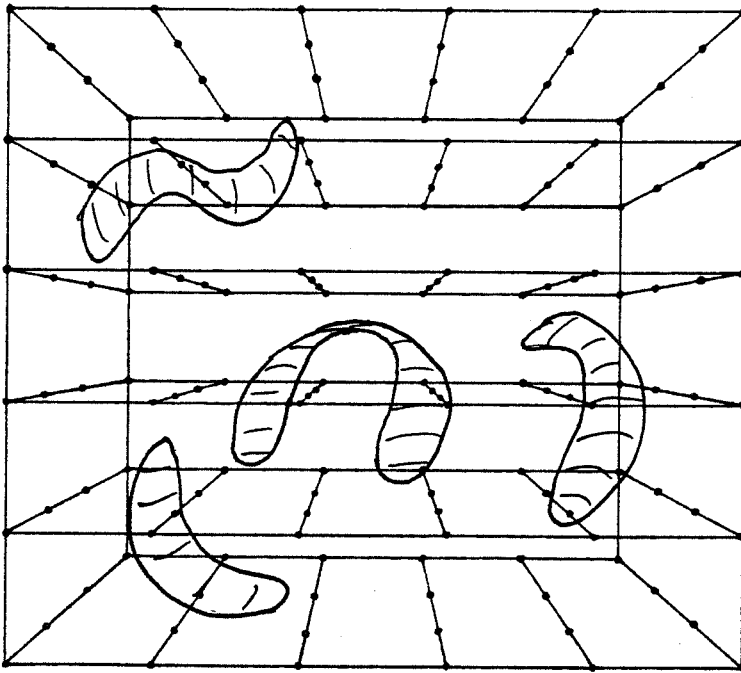


Figure 2 :
Représentation schématique d'un ensemble 2D isotrope, aléatoire et homogène inclus dans un cube.

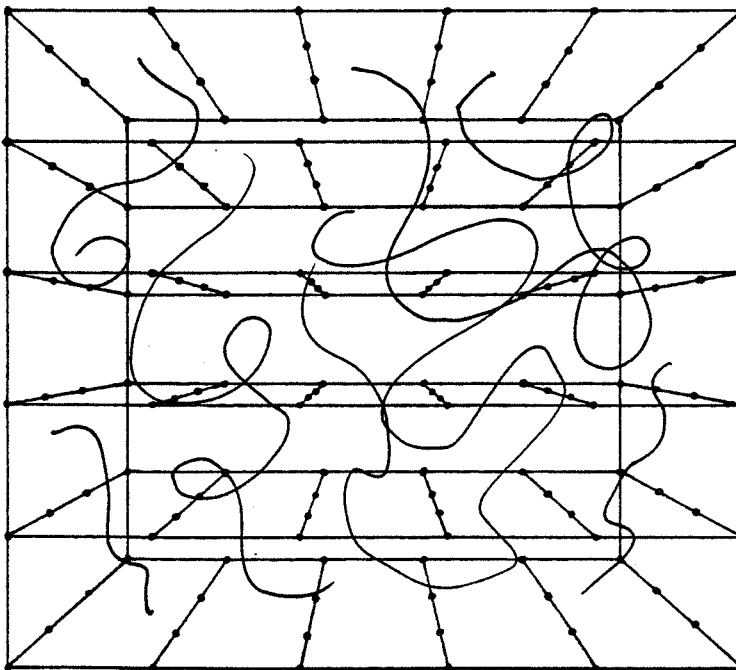


Figure 3 :
Représentation schématique d'un ensemble 1D isotrope, aléatoire et homogène inclus dans un cube.

Extensions :

1. Nous avons utilisé comme espaces d'échantillonnage des réseaux réguliers d'éléments d'échantillonnage. La régularité du réseau n'est pas une condition nécessaire pour la validité des relations fondamentales que nous avons énoncées. Underwood (1970), par exemple, établit les relations stéréologiques relatives aux intercepts linéaires en utilisant un réseau de droites parallèles à l'une des faces du cube et réparties de manière arbitraire, mais homogène, dans le cube. L'utilisation d'un réseau régulier diminue la variance de l'estimation $E(\alpha_A - \gamma_V)^2$ et ce d'autant plus que les mesures sur des éléments d'échantillonnage voisins du réseau sont corrélées (donc d'autant plus que le réseau est "serré"). Pour une étude détaillée du problème, on pourra se référer à Gundersen et Jensen (1987). L'analyse automatique d'images utilise d'ailleurs un réseau régulier dans le plan.
2. La structure de Y étant homogène, la mesure d'un paramètre α_A (resp. α_L, α_P) sur un seul élément d'échantillonnage fournit un estimateur non biaisé de γ_V (ou γ_A, γ_L). En effet, considérons par exemple un paramètre α_A mesuré sur les p plans du réseau, chaque plan ayant la même aire A. On a :

$$\begin{aligned}
 E(\alpha_A) &= \frac{\sum_{i=1}^p E^i(\alpha)}{pA} \\
 &= \frac{1}{p} \sum_{i=1}^p E^i(\alpha_A) \quad (1)
 \end{aligned}$$

La notation $E^i(\alpha_A)$ représente l'espérance mathématique de la mesure de α_A dans un plan i. Si on fait l'hypothèse que la structure de Y est homogène dans X, $E^i(\alpha_A)$ est la même pour tous les plans i du réseau et alors $E(\alpha_A) = E^i(\alpha_A)$.

Remarque :

Ceci n'est vrai que parce que tous les plans du réseau ont la même aire (idem toutes les droites du réseau ont la même longueur). Si X avait une forme quelconque, ces conditions n'auraient pas pu être vérifiées. Nous y reviendrons plus loin.

b. Application de la stéréologie à l'analyse texturale en section d'un ensemble Y

α. Analyse locale

α.1 Y a une structure I.A.H.

Considérons une section plane Σ de l'ensemble Y, et un domaine carré \mathcal{C} sur Σ que nous appellerons champ (le choix d'une forme carrée n'enlève rien au caractère général de ce qui va suivre). On peut toujours trouver un ensemble X, de forme cubique, dont \mathcal{C} est l'intersection avec Σ . On peut alors appliquer les relations fondamentales de la stéréologie pour estimer les paramètres γ_V dans X. Comme par ailleurs Y est homogène, ces estimateurs sont valables pour l'ensemble Y tout entier : **pour toute section Σ de Y et pour tout champ \mathcal{C} de Σ on peut appliquer les relations fondamentales de la stéréologie pour estimer des paramètres relatifs à la texture de Y tout entier.** Ce résultat est valable aussi pour tout intercept linéaire (Modèle HIESP, Miles 1978 a).

C'est l'hypothèse que l'on fait généralement en analyse d'images. On travaille avec une seule section plane de Y. On fait l'analyse dans différents champs sur la section. L'étude d'un grand nombre de champs permet de réduire la variance de l'estimation.

L'hypothèse I.A.H. est en général assez bien vérifiée par les empilements de grains sauf dans les quelques cas présentés dans la première partie (§ I. C. 4.). Dans le cas où les grains ne sont pas isotropes, mais si leur orientation est aléatoire, on peut admettre que la structure globale de Y est isotrope.

α.2 Y n'a pas une structure I.A.H.

C'est le cas par exemple d'un empilement de grains ordonnés ou d'une fonte blanche lamellaire orientée. Dans ce cas, on admet généralement que l'utilisation d'un élément d'échantillonnage dont la position et l'orientation sont aléatoires suffit pour que l'on puisse appliquer les relations fondamentales de la stéréologie en analyse texturale (Underwood 1970). Miles (1978 a) précise les conditions requises pour le choix de l'élément d'échantillonnage : il doit être isotrope, uniforme et aléatoire (I.U.A., voir Annexe 3).

Les estimateurs stéréologiques sont alors non biaisés. L'analyse dans différents champs sur le plan de section permet de réduire la variance de l'estimation. Si le plan de section est suffisamment grand (par rapport à la taille d'éventuelles inhomogénéités ou par rapport à une éventuelle périodicité de la structure), l'estimation obtenue peut être satisfaisante. Si ce n'est pas le cas, la réplication de sections I.U.A. est souhaitable. Pratiquement, ceci est difficilement envisageable sur un seul ensemble Y et il est nécessaire d'analyser plusieurs échantillons supposés identiques

Remarque :

La condition I.U.A. n'interdit pas l'utilisation d'un réseau régulier d'éléments d'échantillonnage. Il faut et il suffit alors de déterminer un élément d'échantillonnage de manière I.U.A. et de choisir un intervalle de séparation entre les éléments du réseau indépendamment de toute périodicité éventuelle dans la structure de Y (Gundersen, Jensen 1987). Ceci justifie l'utilisation de réseaux réguliers en analyse automatique d'images.

β. Analyse globale

Le principe de l'analyse globale est radicalement différent de celui de l'analyse locale. En effet, précédemment, l'ensemble X, dont nous avons nous-même défini la forme, était placé à l'intérieur de la structure de Y, et ne servait que d'échantillon pour déterminer les propriétés texturales de Y. Ici, X, qui constitue l'ensemble à analyser, contient toute la structure Y. Sa forme est déterminée. L'analyse d'une section fournira un seul champ d'analyse dont les bords sont les bords de la section de X. On peut ainsi estimer par exemple la fraction volumique occupée par le noyau dans une cellule ($V(Y)/V(X)$) à partir de la mesure de la fraction surfacique correspondante ($S(Y)/S(X)$). D'une manière générale, Miles (1976) montre que les estimateurs donnés par les relations fondamentales de la stéréologie sont non biaisés si l'élément d'échantillonnage est I.U.A. et pondéré en mesure (que la structure de Y soit I.A.H. ou non) (Annexe 3). Cette pondération se comprend bien si l'on reprend l'équation (1) avec un réseau homogène de plans qui coupent X, mais les plans ayant cette fois des aires différentes A_i :

$$E(\alpha_A) = \frac{\sum_{i=1}^p E^i(\alpha_i)}{\sum_{i=1}^p A_i} = \frac{\sum_{i=1}^p A_i E^i(\alpha_A)}{\sum_{i=1}^p A_i} \quad (4)$$

qui ne se simplifie pour donner $E^i(\alpha_A)$ que si tous les A_i sont égaux.

L'utilisation de sections pondérées en aire plutôt que simplement I.U.A. a également pour effet de réduire la variance de l'estimation (Miles 1978 a), car la probabilité d'obtenir une section dont l'aire est faible est moins grande. Si la structure de Y n'est pas I.A.H. dans X, Miles conseille la réplication de sections I.U.A. et pondérées en aire pour obtenir un estimateur suffisamment précis.

c. Application de la stéréologie à l'analyse individuelle en section d'objets tridimensionnels

Dans ce paragraphe, Y est un agglomérat d'objets 3D disjoints. Nous traiterons ici uniquement le cas d'objets convexes. On pourra se reporter à Miles (1985) pour un traitement plus général.

A partir des relations de la table 1, on peut estimer les quantités suivantes :

$$\frac{4V}{S} = \frac{E(L_1)}{E(N_1)} \quad (5)$$

$$\frac{\Pi^2 S}{2K} = \frac{E(L_2)}{E(N_2)} \quad (6)$$

$$2\Pi \frac{V}{K} = \frac{E(A)}{E(N_2)} \quad (7)$$

L_1/N_1 est l'intercept moyen \overline{L}_1 des objets. De même $L_2/N_2 = \overline{L}_2$ et $A/N_2 = \overline{A}$ sont respectivement le périmètre moyen et l'aire moyenne des objets en section. Ces paramètres sont mesurables sur une section mais ils ne peuvent servir d'estimations pour les relations (5), (6) et (7) car $E(\alpha/N_k) \neq E(\alpha)/E(N_k)$ dans le cas général.

En effet, considérons le cas où Y constitue un objet convexe unique dont on fait l'analyse globale ($X = Y$). Pour pouvoir appliquer les relations fondamentales de la stéréologie (donc les relations (5), (6), (7)), considérons une section plane I.U.A. et pondérée en aire de Y (voir § b. β .) (resp. un intercept I.U.A. et pondéré en longueur). L'objet Y étant convexe, $E(N_2) = 1$ (resp. $E(N_1) = 1$). **Pour toute section plane (resp. intercept linéaire) I.U.A. et pondérée en surface (resp. pondéré en longueur) d'un objet convexe Y , on obtient les estimateurs non biaisés :**

$$E(L_1) = \frac{4V}{S} \quad (8)$$

$$E(L_2) = \frac{\Pi^2 S}{2 K} \quad (9)$$

$$E(A) = 2 \Pi \frac{V}{K} \quad (10)$$

Si maintenant Y est un agglomérat d'objets convexes, et que l'on considère une section plane (resp. un intercept linéaire) I.U.A. de Y , on ne peut pas appliquer les relations (8), (9) et (10) à chaque objet coupé (resp. intercepté) car la section (resp. l'intercept) d'un objet de l'agglomérat n'est pas à la fois I.U.A. et pondérée en aire (resp. en longueur). Même dans le cas où la structure de Y est I.A.H., on peut admettre que chaque section (resp. intercept) est I.U.A., en revanche elle n'est pas pondérée en aire (resp. en longueur). Cependant, Miles (1985) montre alors que quand le nombre d'objets coupés (resp. interceptés) tend vers l'infini, les valeurs moyennes \overline{L}_1 , \overline{L}_2 , et \overline{A} tendent vers les valeurs :

$$\overline{L}_1 \rightarrow \frac{4\overline{V}}{\overline{S}}$$

$$\overline{L}_2 \rightarrow \frac{\Pi^2 \overline{S}}{2 \overline{K}}$$

$$\overline{A} \rightarrow 2 \Pi \frac{\overline{V}}{\overline{K}}$$

On dit alors que ce sont des **estimateurs asymptotiques** (ou asymptotiquement non biaisés). Ces 3 relations ne sont pas indépendantes. Elles sont reliées par l'équation de Tomkeieff (Underwood 1970) : $E(\overline{L}_1) E(\overline{L}_2) \rightarrow \Pi E(\overline{A})$; on ne peut donc pas en déduire \overline{V} , \overline{S} et \overline{K} .

Si Y n'a pas une structure I.A.H., il est nécessaire de faire la moyenne sur plusieurs sections (resp. intercepts) I.U.A. indépendants.

En analyse locale, la mesure de \overline{L}_1 , \overline{L}_2 et \overline{A} pose le problème de l'effet de bord du champ : comment traiter les objets qui coupent le bord du champ d'analyse, et qui ne sont donc

pas inclus entièrement dans le champ. Les éliminer purement et simplement introduirait un biais : on supprimerait plus de grosses particules que de petites car les grosses ont une probabilité plus grande de toucher le bord. Ce problème est général chaque fois que l'on fait une analyse locale individuelle en section. On peut s'en affranchir en ne traitant que les objets qui ne touchent pas le bord, et en pondérant la mesure sur ces objets par un terme correctif lié à leur morphologie (Lantuéjoul 1980, voir § 4.b. γ). On peut aussi utiliser une méthode de "point associé" (Miles 1978b).

d. Extension

α . paramètres stéréologiques obtenus par projection

Les paramètres stéréologiques que nous avons définis au § a. sont obtenus en faisant l'intersection de l'ensemble Y à analyser avec un espace d'échantillonnage. On peut définir d'autres paramètres stéréologiques en faisant la projection de l'ensemble Y sur un plan ou sur une droite. Ainsi, on peut définir l'aire totale de projection de Y sur un plan, que nous noterons M^t ; la longueur totale de projection de Y sur une droite, que nous noterons D_3^t ; la longueur totale de projection de $Y \cap R^2$ sur une droite dans le plan, que nous noterons D_2^t (Serra 1982). L'aire totale de projection prend en compte toutes les parties projetées qui se recouvrent (Figure 4). De même la longueur totale de projection. M^t , D_3^t et D_2^t peuvent être estimés à partir des nombres de connexité (Serra 1982). Avec les notations du § a. :

$$M^t = E(N_1 d A_3) \quad (11)$$

$$D_3^t = E(N_2 d L_3) \quad (12)$$

$$D_2^t = E(N_1 d L_2) \quad (13)$$

Ces 3 estimateurs sont d'ailleurs proportionnels à ceux de S, K et L_2 (Table 1). M^t , D_3^t et D_2^t sont assez peu utilisés en pratique. En revanche, les paramètres correspondants M, D_3 et D_2 obtenus à partir de projections simples (sans recouvrement) sont plus employés. Si Y est constitué d'objets homéomorphes* de la sphère (sans trous), on peut définir les paramètres moyens :

$$\overline{M} = \frac{M}{N_3}$$

$$\overline{D}_3 = \frac{D_3}{N_3}$$

$$\overline{D}_2 = \frac{D_2}{N_2}$$

Pour des sphères, \overline{D}_3 est égale au diamètre moyen. Par extension, on appelle souvent **diamètre d'une particule quelconque la longueur moyenne de sa projection sur un axe**. \overline{D}_2 est appelé diamètre de Ferret moyen. Dans la suite, nous noterons \overline{D} ce diamètre quand il n'y a pas ambiguïté sur l'espace d'échantillonnage dans lequel il est évalué. Par ailleurs les 3 paramètres \overline{M} , \overline{D}_3 et \overline{D}_2 permettent de relier entre eux les nombres de connexité (Miles 1985) :

$$E(N_A) = N_V \overline{D_3} \quad (14)$$

$$E(N_L) = N_V \overline{M} \quad (15)$$

$$E(N_L) = N_A \overline{D_2} \quad (16)$$

Ainsi, par exemple, si l'on connaît le diamètre moyen $\overline{D_3}$ des particules, on peut estimer leur nombre par unité de volume à partir de la mesure du nombre d'objets dans une section plane. Dans le cas général, cependant, on ne peut pas estimer $\overline{D_3}$ à partir d'une seule section et l'estimation de N_V à partir de N_A ne peut se faire si l'on ne dispose pas d'autres informations.

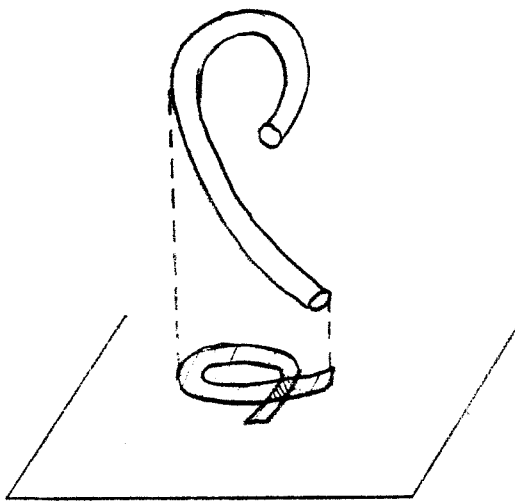


Figure 4 :

Aire de projection totale d'un objet sur un plan.

(Les parties qui se recouvrent sont comptées 2 fois).

β. Estimation des paramètres d'une distribution de taille pondérée en volume

La stéréologie est une discipline évolutive et, par conséquent, la liste des paramètres stéréologiques que nous avons donnée n'est pas définitive. Nous avons d'ailleurs omis, par souci de simplification, certains paramètres. En particulier, s'il n'existe pas d'estimateur de \overline{V} , il existe en revanche plusieurs estimateurs asymptotiques de $\overline{V^2}/\overline{V}$ (Serra 1982 ; Jensen et Gundersen 1985 ; Miles 1985) et au moins un estimateur de $\overline{V^3}/\overline{V}$ (Jensen et Gundersen 1983). Comme le font remarquer ces auteurs, l'intérêt de ces estimateurs est qu'ils représentent dans le cas où Y est un ensemble de N objets disjoints, les moments d'ordre 1 et 2 de la distribution pondérée en volume des volumes des objets :

$$\frac{\overline{V^2}}{\overline{V}} = E_V(V) = \frac{\sum_{i=1}^N (n_i V_i) V_i}{\sum_{i=1}^N n_i V_i} \quad (17)$$

$$\frac{\overline{V^3}}{\overline{V}} = E_V(V^2) = \frac{\sum_{i=1}^N (n_i V_i) V_i^2}{\sum_{i=1}^N n_i V_i} \quad (18)$$

où n_i représente la fraction numérique d'objets qui ont un volume V_i .

La valeur moyenne de cette distribution est :

$$E_V(V) = \frac{\overline{V^2}}{\overline{V}} \quad (19)$$

et sa variance peut s'exprimer par :

$$\sigma_V(V) = \frac{\sum_{i=1}^N (n_i V_i) (V_i - E_V(V))^2}{\sum_{i=1}^N n_i V_i} = E_V^2(V) - E_V(V^2)$$

$$\sigma_V(V) = \left(\frac{\overline{V^2}}{\overline{V}}\right)^2 - \frac{\overline{V^3}}{\overline{V}} \quad (20)$$

Miles (1985) fait remarquer que l'estimation de $\overline{V^2}/\overline{V}$ et $\overline{V^3}/\overline{V}$ sur une coupe plane permet d'ajuster n'importe quelle distribution de taille à deux paramètres. Les estimateurs qu'il retient sont :

$$\frac{\overline{L_2} [L^4]}{3 \overline{A}} \rightarrow \frac{\overline{V^2}}{\overline{V}} \quad (21)$$

$$2\pi \frac{\overline{\theta}}{\overline{A}} \rightarrow \frac{\overline{V^3}}{\overline{V}} \quad (22)$$

où les paramètres $\overline{L_2}$ et \overline{A} ont été précédemment définis.

$[L^4]$ est un paramètre défini pour un objet de forme quelconque dont l'intersection avec une droite I.U.A. forme t segments (Figure 5) :

$$[L^4] = \sum_{u=1}^{2t} \sum_{v=u+1}^{2t} (-1)^{v-u+1} (P_u P_v)^4 \quad (23)$$

θ est égal au produit de $2A^3$ par l'aire moyenne d'un triangle défini par 3 points placés de manière aléatoire dans l'objet.

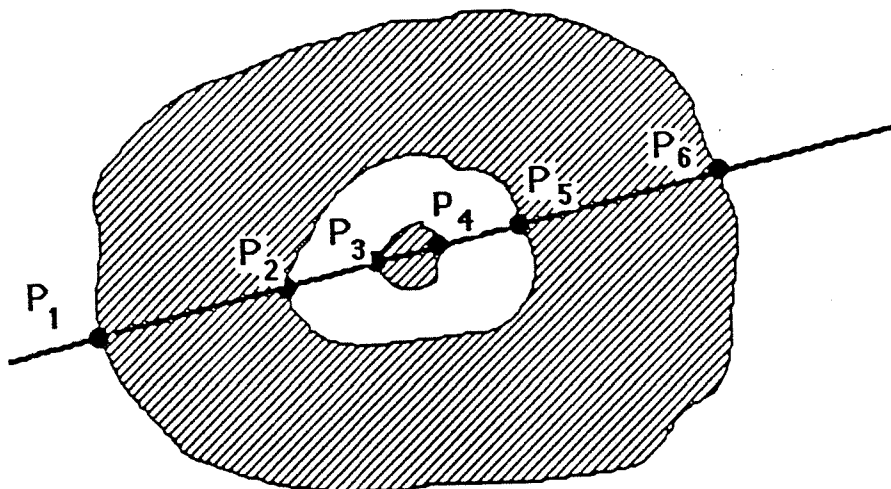


Figure 5 :

Intersection d'un objet quelconque avec une droite ; les points P_i sont ceux utilisés pour le calcul de l'expression (23).

e. Les limites de la stéréologie

Dans le cas général, le nombre de connexité dans un espace à n dimensions ne peut pas être estimé par une mesure dans un espace de dimension inférieure à n (Coster et Chermant 1985). Ceci implique en particulier que **l'on ne peut pas estimer le nombre d'objets par unité de volume à partir de la mesure du nombre d'objets par unité de surface dans une section plane.**

De la même façon, on ne peut pas estimer une distribution de taille de particules à 3D à partir de la mesure d'une distribution de taille dans une section plane. D'une manière générale, l'analyse individuelle ne permet d'estimer que les rapports (\bar{V}/\bar{S} , \bar{V}/\bar{K} , etc...) et seulement de manière asymptotique, mais on ne peut pas estimer \bar{V} , \bar{S} , \bar{K} , etc...

La détermination de ces paramètres, de nature topologique (c'est-à-dire obtenus par un dénombrement), oblige à faire des hypothèses supplémentaires : par exemple de fixer la forme des particules (sphères, ellipses-; voir par exemple Underwood 1970) ou d'utiliser un schéma booléen (Jeulin 1979). On peut aussi utiliser des coupes sériées, c'est-à-dire une série de 2 (ou plus) coupes parallèles séparées par une distance déterminée (Cruz-Orive 1980 ; Sterio 1983). Nous ne détaillerons pas ces méthodes qui ne seront pas employées dans la suite.

2. L'ANALYSE AUTOMATIQUE D'IMAGES

La figure 6 présente le schéma général d'un analyseur automatique d'images. A l'unité centrale, qui commande l'ensemble, est associée toute une logique câblée spécialisée dans le traitement d'images. Nous avons utilisé l'analyseur d'images MORPHOPERICOLOR de S.E.P. IMAGES, commandé par un micro-ordinateur OLIVETTI M 380. La caméra est une caméra vidéo noir et blanc à tube Chalnicon HAMAMATSU C 2400 - 01. Le microscope est le microscope optique AXIOSCOP de ZEISS (les résultats présentés dans le § V. B. 1. ont été obtenus avec un analyseur d'images NACHET NS 1500 commandé par un micro-ordinateur APPLE II, une caméra CCD et un microscope OLYMPUS).

Nous ne détaillerons pas ici l'acquisition de l'image et la conversion analogique/numérique (voir par exemple Coster et Chermant 1985 p. 90 et 336). Nous appellerons **image digitale** toute image représentée par un réseau régulier de pixels, chaque pixel représentant un point de l'image. Les images digitales fournies par le convertisseur analogique/numérique du MORPHOPERICOLOR sont des tableaux de 512 x 512 pixels, rangés suivant un réseau régulier de type hexagonal (Figure 7). Dans la suite, le réseau sera toujours supposé hexagonal. A chaque pixel, est associé un niveau de gris codé sur 6 bits, c'est-à-dire un nombre compris entre 0 et 63, en rapport avec l'intensité lumineuse de l'image vidéo. On appelle ces images : **images en niveaux de gris** ou **images numériques**.

a. Traitement de l'image numérique (filtrage numérique)

Le traitement de l'image numérique a pour but de mettre en valeur l'ensemble Y à analyser. Il utilise des transformations de la **fonction de niveaux de gris** $f(x)$, qui, à chaque pixel de l'image, associe la valeur de son niveau de gris. On peut classer ces transformations, que l'on appelle filtres, par rapport à leurs propriétés :

- les filtres "passe-bas" adoucissent les variations brutales de la fonction de niveaux de gris ("hautes fréquences"). Ils ont pour but d'éliminer les artefacts de l'image (lissage).
- les filtres "passe-haut" mettent en relief les variations brutales de la fonction de niveau de gris. Ils permettent d'accentuer les contrastes.

On peut également classer les filtres relativement au type de transformation qu'ils utilisent. Nous présentons ici quelques filtrages classiques parmi les plus utilisés. On pourra se référer à Coster et Chermant (1985 p. 340) pour une liste plus complète.

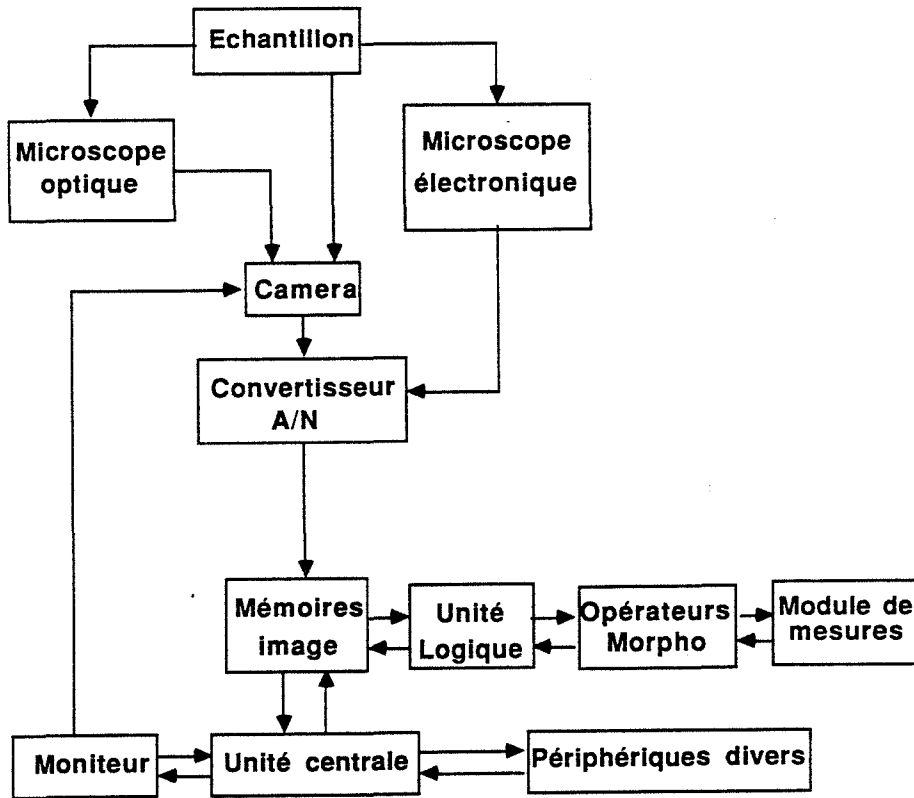


Figure 6 :
Schéma de principe d'un analyseur automatique d'images.

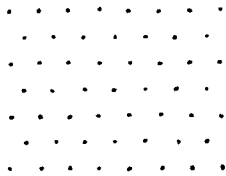


Figure 7 :
Réseau hexagonal.

α . Filtrage par produit de convolution

On définit une fonction de voisinage V comme étant une matrice compatible avec le réseau de pixels, constituée d'un point central a_0 et d'une série de points $(a_i)_{i=1,n}$. A chacun des points est associé une valeur numérique. Par exemple, avec un réseau hexagonal,

$$V = \begin{matrix} & a_2 & a_3 & \\ a_1 & & a_0 & a_4 \\ & a_6 & a_5 & \end{matrix}$$

constitue une fonction de voisinage de centre a_0 . On notera $V(x)$ cette matrice lorsque son centre a_0 est placé au point x de l'image.

est une représentation du gradient de la fonction de niveaux de gris dans la direction verticale. En prenant le maximum des valeurs de $f(x) \times V(x)$ quand on fait une rotation de V dans les 6 directions du réseau hexagonal, on obtient une approximation du gradient global de l'image. Cette transformation permet par exemple d'extraire les contours d'une image. La figure 8 montre un exemple de l'effet d'un gradient par convolution sur une fonction de niveaux de gris à une dimension.

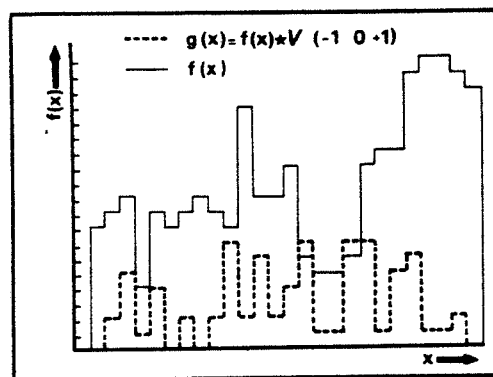


Figure 8 :

Effet d'un filtre par convolution de type gradient sur une fonction de niveaux de gris

(d'après Coster et Chermant 1985).

- laplacien :

On peut obtenir une approximation du laplacien de la fonction de niveaux de gris en effectuant un produit de convolution par :

$$V = \begin{matrix} 1 & & 1 \\ 1 & -6 & 1 \\ 1 & & 1 \end{matrix}$$

β. Filtrage par transformation morphologique

Ces filtres utilisent comme éléments de base l'érosion et la dilatation numériques (Annexe 4. B. 1.). On peut définir des filtres morphologiques qui ont des propriétés voisines des filtres par convolution que nous avons décrits. Ce sont ces filtres dont nous disposons sur le MORPHOPERICOLOR.

β.1 *Filtres morphologiques*

L'ouverture et la fermeture (Annexe 4. B. 1.) définissent des filtres morphologiques (au sens défini par Coster et Chermant 1985 p. 356). L'ouverture supprime les pics étroits de la fonction de niveau de gris, la fermeture comble les vallées étroites. Par contre, en dehors des pics et des vallées elles n'adoucissent pas les variations brutales de cette fonction (Figure 9). En ce sens, ce ne sont pas exactement des filtres passe-bas.

Par combinaison de l'ouverture et de la fermeture, on peut obtenir des filtres morphologiques aux propriétés intéressantes (Coster et Chermant 1985).

β.2 *Filtres passe-haut par transformation morphologique*

Les transformations que nous allons définir ne vérifient pas les propriétés des filtres morphologiques :

- gradient :

L'érosion numérique par l'hexagone élémentaire H remplace la valeur du niveau de gris en un point x_0 par la valeur minimale des niveaux de gris des points voisins x_i . La dilatation lui substituera la valeur maximale de ces niveaux de gris (Annexe 4. B. 1.). Par conséquent, la variation maximale de la fonction de niveaux de gris au point x peut être définie par :

$$g(x) = \frac{D^H(f(x)) - E^H(f(x))}{2}$$

$g(x)$ sera appelé gradient morphologique de $f(x)$.

- Chapeau haut de forme :

Considérons la fonction $T f(x) = f(x) - O^{\lambda H} f(x)$ qui fait la différence en tout point entre la fonction de niveaux de gris de l'image et celle de l'ouverture par λH (hexagone de taille λ). Cette transformation extrait les pics de la fonction de niveaux de gris de largeur inférieure à λH (Figure 9). On l'appelle parfois chapeau haut de forme (Serra 1982 associe un seuillage à cette transformation : $T f(x) = \{x \mid f(x) - O^{\lambda H} f(x) \geq t\}$).

On peut définir un chapeau haut de forme inverse à l'aide de la transformation $T f(x) = F^{\lambda H} f(x) - f(x)$ qui extrait les vallées de la fonction de niveaux de gris de largeur inférieure à λH (Figure 9).

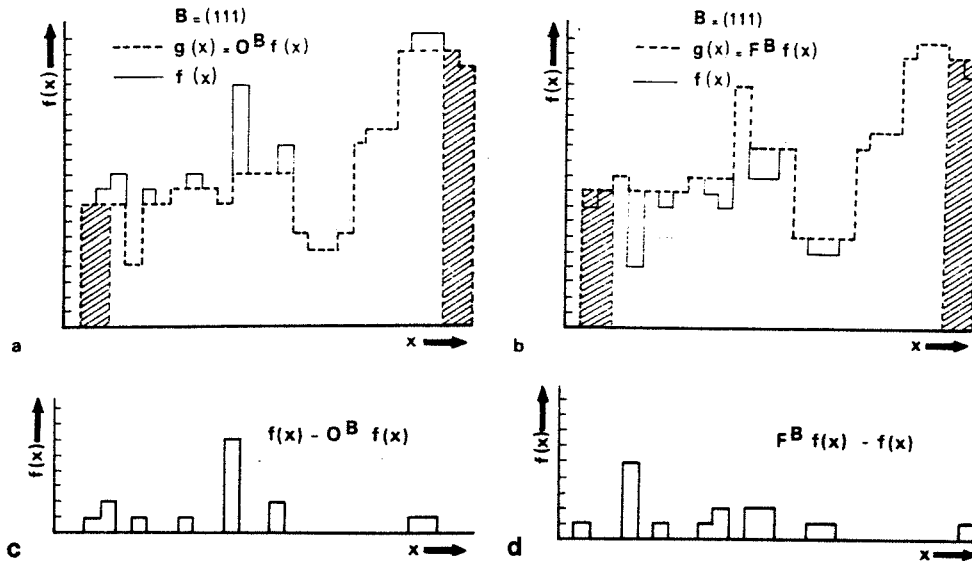


Figure 9 :

Ouverture (a), fermeture (b), chapeau haut de forme (c) et chapeau haut de forme inverse (d) d'une fonction de niveaux de gris linéaire par l'élément structurant $B = (111)$ (d'après Coster et Chermant 1985).

b. Seuillage

Après avoir éliminé les artefacts et augmenté le contraste de l'image en niveaux de gris par un filtrage numérique, on isole généralement l'ensemble à analyser par un seuillage. Le seuillage consiste à ne retenir que les pixels de l'image qui ont un niveau de gris compris entre 2 seuils Δ_1 et Δ_2 que l'on se fixe. A ces pixels est associée la valeur 1, aux autres la valeur 0. L'image obtenue est une **image binaire** (les pixels ont tous un état 0 ou 1).

Certains analyseurs, tels le NACHET NS 1500, effectuent simultanément la digitalisation et le seuillage sur l'image vidéo (analogique). Aucun traitement de l'image en niveaux de gris n'est alors possible.

c. Traitement de l'image binaire

Les pixels qui ont la valeur 1 constituent un ensemble dans le champ d'analyse que l'on notera Y dans la suite, les pixels qui ont la valeur 0 constituant l'ensemble complémentaire Y^c . On peut alors appliquer aux images les opérateurs classiques de l'analyse ensembliste.

α. Opérateurs logiques

- l'intersection $Y \cap Z$
- la réunion $Y \cup Z$
- la complémentarité Y^c
- la différence symétrique $Y/Z = (Y \cup Z) - (Y \cap Z)$

Pour un exemple d'application de l'analyse individuelle, on pourra se reporter au § 4. b. γ .

En analyse texturale, on pourra estimer les paramètres N_P , N_L et N_A à partir de la mesure de N_0 , N_1 et N_2 , et connaissant le nombre de points P du réseau (la longueur totale des droites du réseau dans une direction valant alors $P \cdot dL_1$ et l'aire totale du champ $P \cdot dA_2$). On pourra en déduire une estimation des paramètres L_L , A_A , L_A , V_V , S_V et K_V (Table 2).

Remarque :

En analyse locale, une mesure sera non biaisée (représentative de la structure de Y tout entier) seulement si elle est effectuée à l'intérieur de l'érodé par l'élément structurant de la transformation de voisinage utilisée pour la mesure (théorème du masque de mesure, fin de l'Annexe 4).

Ainsi, la mesure de $N_1(Y, 0)$ sera non biaisée si on calcule :

$$N_0(Y \otimes \begin{matrix} & x & x \\ x & 0 & 1 \\ & x & x \end{matrix})$$

à l'intérieur du champ érodé par :

$$\begin{matrix} & x & x \\ x & 1 & 1 \\ & x & x \end{matrix}$$

De même la mesure de $N_2(Y)$ sera non biaisée si on calcule :

$$N_0(Y \otimes \begin{matrix} & x & 1 \\ x & 0 & 0 \\ & x & x \end{matrix})$$

à l'intérieur du champ érodé par :

$$\begin{matrix} & x & 1 \\ x & 1 & 1 \\ & x & x \end{matrix}$$

et $N_0(Y \otimes \begin{matrix} & 1 & 1 \\ x & 0 & x \\ & x & x \end{matrix})$

à l'intérieur du champ érodé par :

$$\begin{matrix} & 1 & 1 \\ x & 1 & x \\ & x & x \end{matrix}$$

3. MISE EN OEUVRE DE L'ANALYSE DES MELANGES WO_3 - NiO

a. Mode opératoire général

On place une masse totale de 250 mg à 300 mg de grains de WO_3 (1) et de NiO (2) dans un creuset cylindrique en résine époxy (hauteur 15 mm, diamètre 6 mm). La fraction volumique v_2 en NiO est fixée (en général, on prend $v_2 = 0,25$ qui correspond à un mélange équimolaire). Dans ces conditions, un empilement lâche de grains ($C = 0,6$) placé dans le creuset a une hauteur de 2 à 3 mm. Le creuset est fermé et le mélangeage est réalisé dans des conditions qui seront décrites plus loin. Après mélangeage, on verse par petites quantités une résine époxy fluide (EPOFIX de STRUERS) à la surface de l'empilement à l'aide d'une microseringue. Le creuset ainsi que la résine sont au bain-marie à $50^\circ C$ pendant cette opération, cette température correspondant à un optimum d'utilisation donné par le fabricant (résine fluide à vitesse de polymérisation lente). La résine remplit le milieu poreux de l'empilement puis se polymérise sans variation de volume, pendant un temps de l'ordre de 10 heures. Elle est alors solide. On sectionne le creuset et l'empilement perpendiculairement à l'axe du cylindre à l'aide d'une tronçonneuse. On polit mécaniquement les 2 sections obtenues jusqu'au stade de $1\mu m$.

Nous supposons que l'empilement de grains a une structure I.A.H. On peut alors appliquer les relations fondamentales de la stéréologie à l'analyse d'une seule section Σ . On effectue l'analyse dans différents champs sur la section (analyse locale). Une vingtaine de champs sont répartis de manière uniforme sur la section. Typiquement, si on peut mesurer (ou estimer) la valeur α_i d'un paramètre α sur chacun des m champs (\mathcal{C}_i) $_{i=1,m}$,

$$\bar{\alpha} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \alpha_i \quad (25)$$

est un estimateur non biaisé de α sur la section Σ .

$$\sigma^2(\alpha_i) = \frac{1}{m-1} \sum_{i=1}^m (\alpha_i - \bar{\alpha})^2 \quad (26)$$

est un estimateur non biaisé de la variance de α_i , $E(\alpha_i - \alpha)^2$ sur la section Σ .

Les m champs étant suffisamment espacés, on peut admettre que les mesures faites dans les différents champs sont indépendantes. On peut alors estimer la variance de $\bar{\alpha}$ ($E(\bar{\alpha} - \alpha)^2$) par :

$$\sigma^2(\bar{\alpha}) = \frac{1}{m^2} \sum_{i=1}^m \sigma^2(\alpha_i) = \frac{\sigma^2(\alpha_i)}{m}$$

et l'écart-type :

$$\sigma(\bar{\alpha}) = \frac{\sigma(\alpha_i)}{\sqrt{m}} = \frac{1}{\sqrt{m(m-1)}} \sum_{i=1}^m (\alpha_i - \bar{\alpha})^2 \quad (27)$$

représente l'écart-type de l'estimation de α par la relation (25).

On peut faire une analyse statistique plus détaillée en supposant que la distribution des mesures de α suit une loi normale. La variable $(\bar{\alpha} - \alpha)/\sigma(\bar{\alpha})$ suit alors une loi de distribution de Student-Fischer à $m - 1$ degrés de liberté (Mothes 1968). On a alors :

$$\bar{\alpha} - t \sigma(\bar{\alpha}) \leq \alpha \leq \bar{\alpha} + t \sigma(\bar{\alpha})$$

Typiquement, pour $m = 20$ champs et avec un facteur de confiance de 95 %, $t = 2,09$. La mesure α sera définie à plus ou moins 2 fois l'écart-type $\sigma(\bar{\alpha})$ près. La largeur de l'intervalle de confiance varie comme $1/\sqrt{m}$ (éq. 27). Si elle est jugée trop grande, on pourra la diminuer en augmentant le nombre de champs analysés en conséquence.

b. Acquisition des images

Dans chaque champ, on acquiert séparément l'image des grains de WO_3 et de NiO . La figure 10 illustre une phase d'acquisition. L'algorithme général du programme est présenté en Annexe 6. A.

4. PRINCIPE DES MESURES EFFECTUEES

a. Compacité - fractions volumiques

Dans chaque champ, on pourra estimer à partir de l'image 1 (WO_3) d'une part et de l'image 2 (NiO) d'autre part les fractions du volume $V_V^{(1)}$ et $V_V^{(2)}$ occupées par les grains 1 et 2 (Table 2). On peut en déduire la valeur de la compacité globale et des fractions volumiques exprimées par rapport au volume total de solide :

$$C = V_V = V_V^{(1)} + V_V^{(2)}$$

$$v_2 = \frac{V_V^{(2)}}{V_V^{(1)} + V_V^{(2)}}$$

$$v_1 = \frac{V_V^{(1)}}{V_V^{(1)} + V_V^{(2)}}$$

L'écart-type de l'estimation peut être évalué à partir de l'équation (27).

b. Mesures granulométriques

a. Granulométrie par ouverture linéaire

On peut obtenir la distribution des longueurs des intercepts des objets par un réseau de droites en réalisant une granulométrie par ouverture linéaire (Annexe 5). Sur chaque champ, on détermine la distribution des intercepts, l'intercept moyen \bar{L}_1 , et l'écart-type de la distribution $\sigma(l)$. On calcule ensuite la distribution moyenne sur l'ensemble des champs, l'intercept moyen et l'écart-type. L'écart-type de l'estimation est évalué à partir de l'équation (27). Le détail du programme que nous avons écrit est présenté en Annexe 6. B.

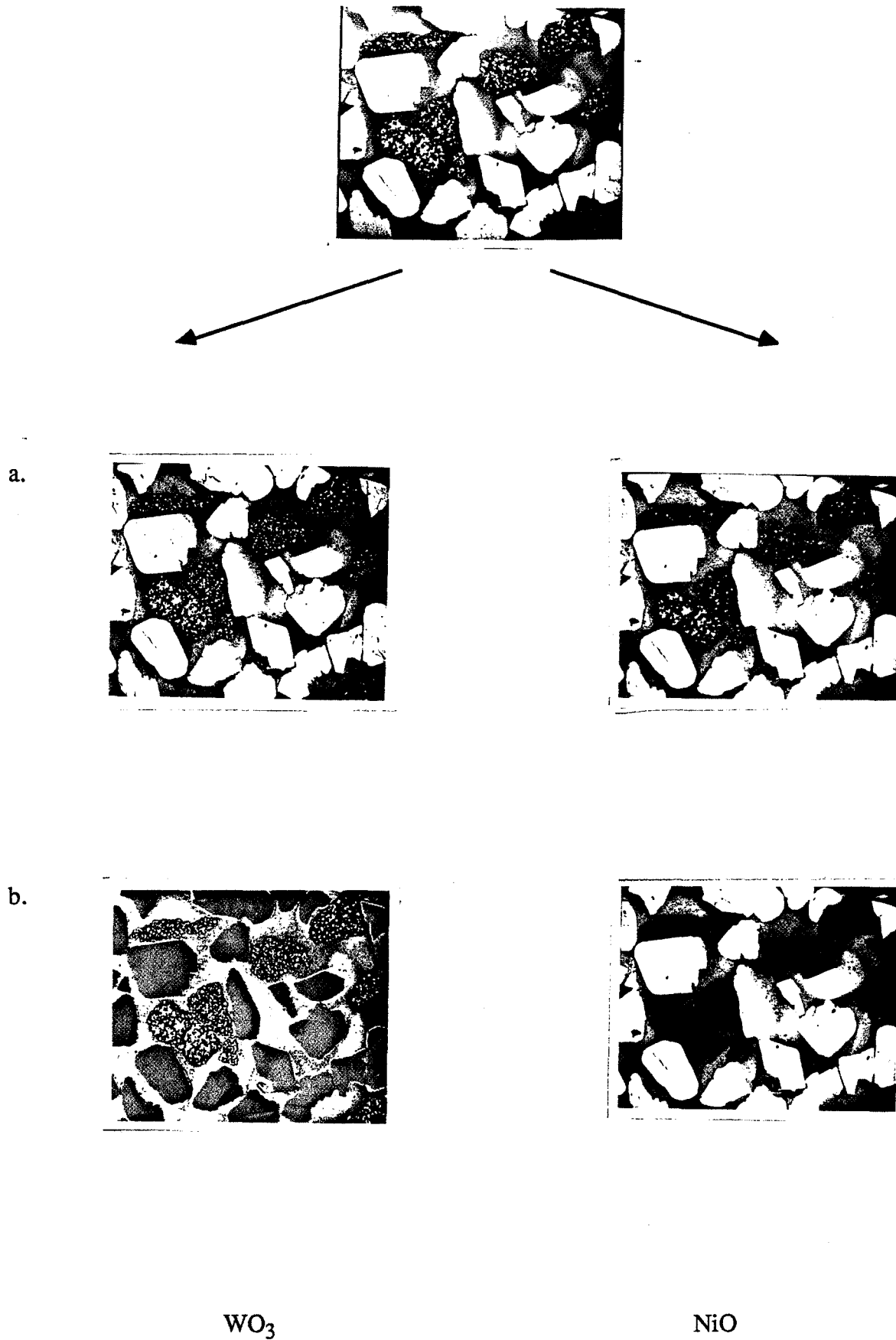


Figure 10 :
Schéma type d'une phase d'acquisition
a. filtrage numérique

b. seuillage et filtrage binaire

β . Granulométrie par ouverture bidimensionnelle

On peut obtenir la distribution de taille des disques inclus dans une coupe plane des objets en réalisant une granulométrie par ouverture bidimensionnelle (Annexe 5). Nous utiliserons pour cette analyse un programme qui a été écrit par Claudine Jacquet de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne, et que nous ne détaillerons pas ici.

γ . Granulométrie par la méthode de Miles

Cette méthode, dont le fondement stéréologique est présenté au § A. 1. d. β ., permet d'obtenir le volume moyen et l'écart-type de la distribution pondérée en volume des volumes des particules. Elle s'applique pour des particules de forme quelconque, mais dans le cas de particules non convexes, elle suppose que l'on peut identifier en section les parties disjointes qui appartiennent à un même objet. Nous ferons l'hypothèse que les particules sont presque convexes et nous traiterons toutes les parties disjointes en section comme appartenant à des objets disjoints. Cette hypothèse est assez bien vérifiée pour les grains de WO_3 et de NiO que nous utilisons (voir Figures 1 et 2).

Les estimateurs que l'on utilise sont ceux donnés par les relations (21) et (22). On calcule alors la moyenne $E_V(V)$ et l'écart-type $\sigma_V(V)$ à l'aide des équations (19) et (20). Les quantités à mesurer sur les objets sont A , L_2 , $[L^4]$ et θ . On réalise une analyse individuelle des objets. Les estimateurs (21) et (22) sont asymptotiquement non biaisés. Il faut donc faire l'analyse sur un grand nombre de particules (typiquement, nous traitons 500 à 1000 particules en section).

L'analyse individuelle suppose une correction de bord de champ. On utilise la méthode correctrice de Lantuejoul (1980). Dans cette méthode, on mesure le paramètre α_i sur tous les objets qui ne touchent pas le bord des m champs $(\mathcal{E}_j)_{j=1,m}$ pris sur la section Σ . A condition que les objets étudiés soient tous de taille inférieure à la taille du champ, ce qui est facilement réalisé, on peut estimer la somme des α_i sur tous les objets K_i de la section à partir des mesures faites à l'intérieur de l'ensemble $\mathcal{E} = (U\mathcal{E}_j)_{j=1,m}$ des m champs (les champs ayant tous même forme et même taille) :

$$A(E^{\mathcal{E}_j\Sigma}) \sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{\alpha_i}{m A(E^{K_i\mathcal{E}_j})} = \sum_{K_i \subset \Sigma} \alpha_i$$

On peut aussi estimer le nombre total N_S d'objets sur la section Σ en posant $\alpha_i = 1$ pour tous les objets :

$$A(E^{\mathcal{E}_j\Sigma}) \sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{1}{m A(E^{K_i\mathcal{E}_j})} = N_S$$

On obtient alors un estimateur asymptotique de $\bar{\alpha} = \sum \alpha_i / N_S$:

$$\frac{\sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}}{\sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}} \rightarrow \alpha \quad (28)$$

Dans la mesure où on néglige les effets de bord de la section (\mathcal{E}_j petit devant Σ), on peut aussi estimer N_A et α_A sur la section totale Σ :

$$\frac{1}{m} \sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)} \rightarrow N_A \quad (29)$$

$$\frac{1}{m} \sum_{K_i \subset \mathcal{E}} \frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)} \rightarrow \alpha_A \quad (30)$$

Le calcul de l'écart-type de l'estimation de α dans le cas d'une correction de bord est plus compliqué que celui présenté au § 3. a.. Nous avons fait un calcul approximatif de $\sigma(\bar{\alpha})$ à partir de l'équation (28) en utilisant les relations approchées pour la variance d'un produit (Stange 1954) :

$$\begin{aligned} \frac{\sigma^2(\bar{\alpha})}{\bar{\alpha}^2} &\approx \frac{\sigma^2\left(\sum \frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)}{\left(\sum \frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)^2} + \frac{\sigma^2\left(\sum \frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)}{\left(\sum \frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)^2} \\ \frac{\sigma^2(\bar{\alpha})}{\bar{\alpha}^2} &\approx \frac{1}{N} \left(\frac{\sigma^2\left(\frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)}{\left(\frac{\alpha_i}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)^2} + \frac{\sigma^2\left(\frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)}{\left(\frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right)^2} \right) \quad (31) \end{aligned}$$

où N désigne le nombre d'objets analysés.

On peut aussi montrer que :

$$\sigma^2(N_A) \approx \frac{N}{m^2} \sigma^2\left(\frac{1}{A(E^{K_i} \mathcal{E}_j)}\right) \quad (32)$$

Si les champs \mathcal{E}_j sont des rectangles de longueur L_H et de largeur L_V , Lantuejoul montre que :

$$A(E^{K_i} \mathcal{E}_j) = (L_H - D_H(K_i)) \times (L_V - D_V(K_i))$$

$D_H(K_i)$ et $D_V(K_i)$ étant les diamètres de Ferret horizontaux et verticaux de l'objet K_i . Ces paramètres sont directement accessibles sur le MORPHOPERICOLOR. On calcule donc \bar{A} , \bar{L}_2 , $[\bar{L}^4]$ et $\bar{\theta}$ à l'aide de la relation (28). On en déduit alors $E_V(V)$ et $\sigma_V(V)$.

Nous avons exprimé les incertitudes relatives de ces mesures par un calcul différentiel utilisant les expressions (19), (20), (21) et (22). Nous prenons pour valeur de l'incertitude sur la mesure de $\bar{\alpha}$ ($\bar{\alpha} = \bar{A}$, \bar{L}_2 , $[\bar{L}^4]$ ou $\bar{\theta}$) l'écart-type calculé par (31) :

$$\frac{\Delta E_V(V)}{E_V(V)} \approx \frac{\sigma(\bar{L}_2)}{(\bar{L}_2)} + \frac{\sigma([\bar{L}^4])}{[\bar{L}^4]} + \frac{\sigma(\bar{A})}{\bar{A}} \quad (33)$$

$$\frac{\Delta \sigma_V(V)}{\sigma_V(V)} \approx \frac{1}{2 \sigma_V(V)^2} \left[2\pi \frac{\bar{\theta}}{A} \frac{\sigma(\bar{\theta})}{\bar{\theta}} + \frac{2}{3} \frac{\bar{L}_2 [\bar{L}^4] \sigma(\bar{L}_2)}{A} + \frac{2}{3} \frac{\bar{L}_2 [\bar{L}^4] \sigma([\bar{L}^4])}{A} + \left(\frac{2}{3} \frac{\bar{L}_2 [\bar{L}^4]}{A} - 2\pi \frac{\bar{\theta}}{A} \right) \frac{\sigma(\bar{A})}{A} \right] \quad (34)$$

Compte tenu des approximations faites, ces expressions ne donnent qu'un ordre de grandeur de l'incertitude de la mesure.

Le principe de la mesure de A , L_2 , $[L^4]$ et θ en analyse d'images est décrit en Annexe 6.C.

c. Aires de séparation par zones d'influence

Nous avons défini dans la première partie (§ II. A. 2. c.) les aires de séparation par zones d'influence à une distance d dans un empilement contenant 2 espèces.

α. Approche stéréologique

Nous avons vu au § 1. a. β. qu'on pouvait estimer l'aire par unité de volume d'un ensemble de surfaces à partir d'une mesure sur une coupe plane de ces surfaces. On peut appliquer la méthode aux surfaces de séparation par zones d'influence. D'après les relations fondamentales de la stéréologie appliquées à un ensemble bidimensionnel :

$$S_{ij}(d) = 2 N_{L_{ij}}(d) \quad (35)$$

$N_{L_{ij}}(d)$ désigne le nombre de points d'intersection, par unité de longueur, entre le réseau de droites du plan et les lignes résultant de l'intersection des surfaces $S_{ij}(d)$ avec le plan de coupe (Figure 11). Ces lignes sont purement virtuelles, elles ne sont pas observables dans le plan de la coupe. On peut cependant en avoir une représentation approximative à l'aide du squelette par zones d'influence (SKIZ, Annexe 4. A. 3.). Ce squelette effectue une partition par zones d'influence dans le plan (Annexe 1). On peut alors définir des lignes de séparation par zones d'influence à la distance d , $l_{ij}(d)$. Ces lignes ne sont pas exactement égales à l'intersection des surfaces $S_{ij}(d)$ avec le plan de coupe. D'une manière générale, le squelette par zones d'influence dans le plan de coupe n'est pas égal à l'intersection des surfaces de séparation par zones d'influence car le mode de construction du SKIZ est purement bidimensionnel.

Cependant, quand d tend vers 0, $l_{ij}(d)$ tend vers les lignes de contact entre grains dans le plan, qui sont l'intersection exacte des surfaces de séparation à la distance $d = 0$ (surfaces de contact). On peut alors appliquer la relation (35) aux lignes de contact $l_{ij}(0)$. Cette relation donne une valeur approximative de la longueur des lignes de séparation $l_{ij}(d)$ pour les faibles valeurs de d .

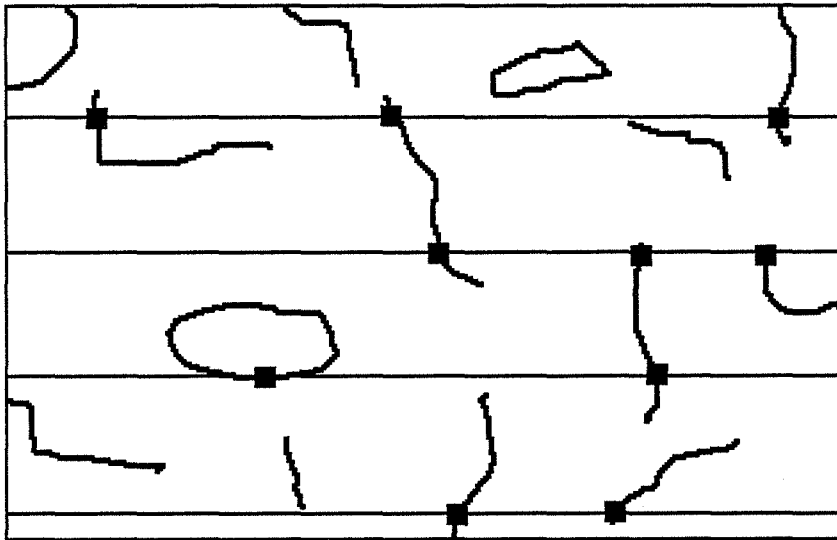


Figure 11 :
Estimation d'une aire par
unité de volume à partir
d'une coupe plane.

$$S_v = 2 N_L$$

β. Etude par analyse d'images

Le problème est donc de déterminer les lignes de séparation par zones d'influence à une distance d . On part du SKIZ des images de WO_3 (1), de NiO (2) et de leur réunion $(1) \cup (2)$ (Figure 12). On obtient les lignes de séparation 1-1, 2-2 et 1-2 par une série d'opérations ensemblistes :

$$(l_{11}) = SKIZ((1)) \cap SKIZ((3))$$

$$(l_{22}) = SKIZ((2)) \cap SKIZ((3))$$

$$(l_{12}) = SKIZ((3)) / (l_{11}) / (l_{22}).$$

La portion de ces lignes qui séparent les grains à une distance d est déterminée par une série de transformations morphologiques. Le détail du programme est présenté en Annexe 6. D.

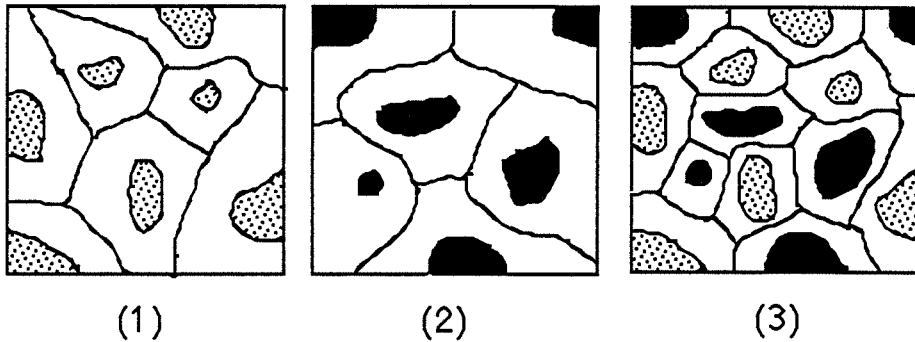


Figure 12 :

Squelette par zones d'influence des images (1), (2) et (3).

On obtient alors une expression approximative des aires $S_{11}(d)$, $S_{22}(d)$ et $S_{12}(d)$ pour 5 valeurs de d , correspondant à 2, 4, 6, 8 et 10 pixels. La mesure est faite sur chaque champ de la section. On calcule les valeurs moyennes et on évalue l'écart-type de l'estimation à l'aide de l'équation (27).

d. Analyse de l'homogénéité par la méthode de la distribution de la composition numérique

α. Approche générale

L'idée de base de la méthode d'étude de l'homogénéité que nous avons développée est d'appliquer l'analyse par prélèvements (§ II. B. B₁.) à l'analyse d'images.

Les objets que nous considérons sont les sections 2D des grains dans le plan de section. On suppose que les objets disjoints dans le plan de section proviennent tous de la section de grains disjoints. Autrement dit, on néglige la probabilité pour un grain de donner en section 2 parties disjointes. Ceci suppose que les grains sont presque convexes. C'est l'hypothèse que nous avons faite également pour l'application de la méthode de Miles (§ b. γ). On appellera alors indifféremment grains les objets dans l'espace ou leur section dans le plan de section.

On admet alors que le mélange est homogène, c'est-à-dire que les grains sont répartis uniformément dans l'espace si les grains sont répartis uniformément dans le plan de section. On peut alors appliquer les principes de l'analyse par prélèvements dans le plan de section. Un ensemble de champs répartis uniformément sur la section constitue un ensemble de prélèvements dans le plan de section. Si ces champs contiennent tous le même nombre de grains N (voir § β. pour la réalisation de cette condition), on peut appliquer la théorie de Lacey

(§ II. B. B₁. 2.) : dans le cas d'un mélange homogène, le nombre de champs $N_C(N_2)$ contenant N_2 grains 2 ($0 \leq N_2 \leq N$) parmi les N_C champs "prélevés" a pour espérance mathématique :

$$N_C^*(N_2) = N_C C_N^{N_2} n_2^{N_2} (1 - n_2)^{N - N_2} \quad (36)$$

n_2 désignant la fraction numérique des grains 2 en section. Et la variance sur la mesure de n_2 a pour espérance mathématique :

$$\sigma^*(n_2) = \frac{n_2(1 - n_2)}{N} \quad (37)$$

Nous avons exprimé en Annexe 7 l'écart-type de ces estimateurs.

L'analyse de l'homogénéité consiste donc à placer N_C champs uniformément sur la section, ces champs devant contenir tous N grains. On compte alors le nombre $N_C(N_2)$ de champs contenant N_2 grains 2, pour N_2 variant de 0 à N . On peut en déduire \bar{n}_2 et $\sigma(n_2)$ par :

$$\bar{n}_2 = \frac{1}{N_C} \sum_{N_2=0}^N N_C(N_2) \frac{N_2}{N} \quad (38)$$

$$\sigma^2(n_2) = \frac{1}{N_C - 1} \sum_{N_2=0}^N N_C(N_2) \left(\bar{n}_2 - \frac{N_2}{N}\right)^2 \quad (39)$$

Les valeurs trouvées pour $N_C(N_2)$ et $\sigma(n_2)$ sont à comparer aux valeurs idéales données par (36) et (37).

β. Etude par analyse d'images

Le problème est donc de prélever N_C champs contenant tous le même nombre de grains N . Pour s'affranchir des effets de bord de champ, on utilise une méthode de "point associé" : à chaque particule, on associe un point ; la particule est considérée comme comprise dans le champ si le point qui lui est associé est à l'intérieur du champ (Miles (1978 b) montre qu'une telle méthode permet d'effectuer une analyse individuelle non biaisée à l'intérieur d'un champ).

Considérons un champ \mathcal{E} contenant un nombre total de particules (1 et 2) largement supérieur à N . N'ayant aucune information sur l'ensemble analysé en dehors du champ, on supprime les particules touchant le bord du champ. Pour que ceci n'introduise pas de biais dans la mesure, on définit un nouveau champ d'analyse \mathcal{E}' , dont les bords sont à une distance r_{\max} des bords du champ global, r_{\max} représentant le rayon maximum des particules (Figure 13). On réduit chaque particule à son centre géodésique (Annexe 4. A. 5.). Cette opération transforme chaque objet, convexe ou non, en un point unique. On peut alors compter le nombre de points dans \mathcal{E}' . Ce nombre est supérieur à N , par hypothèse. On érode alors pas à pas le champ \mathcal{E}' , en comptant à chaque pas le nombre de points qui restent dans le champ érodé. Quand ce nombre est égal à N , on arrête l'opération. En faisant l'intersection avec l'image des grains 1 d'une part, et avec l'image des grains 2 d'autre part, on compte le nombre de grains 1 et le nombre de grains 2 parmi les N grains dans le champ. On répète l'analyse pour différents champs \mathcal{E}_j pris sur la section.

Dans la pratique, les prises de vue se font dans un champ rectangulaire \mathcal{E} . On extrait alors du champ \mathcal{E} le plus grand champ carré \mathcal{E}' dont les bords sont situés à une distance supérieure ou égale à r_{\max} des bords du champ global (Figure 13). On définit l'échelle de l'analyse par le nombre total N de grains par champ. Nous avons fait l'analyse à différentes échelles (en fixant différentes valeurs de N). Pour les plus faibles valeurs de N , on peut partir d'un champ \mathcal{E}' plus petit. Comme on a par ailleurs intérêt à travailler avec un grand nombre de champs, nous avons réalisé un découpage des champs de départ en 2, 4, 6, 9 champs \mathcal{E}' (d'autant plus que la valeur de N qu'on s'est fixée est petite). On obtient typiquement l'analyse représentée par la figure 14. Quand le nombre de grains par champ est inférieur à 48 au départ, on réduit le nombre de découpages et on commence à une échelle plus basse (24 ou 12). On trouvera le détail de l'algorithme utilisé en Annexe 6. E.

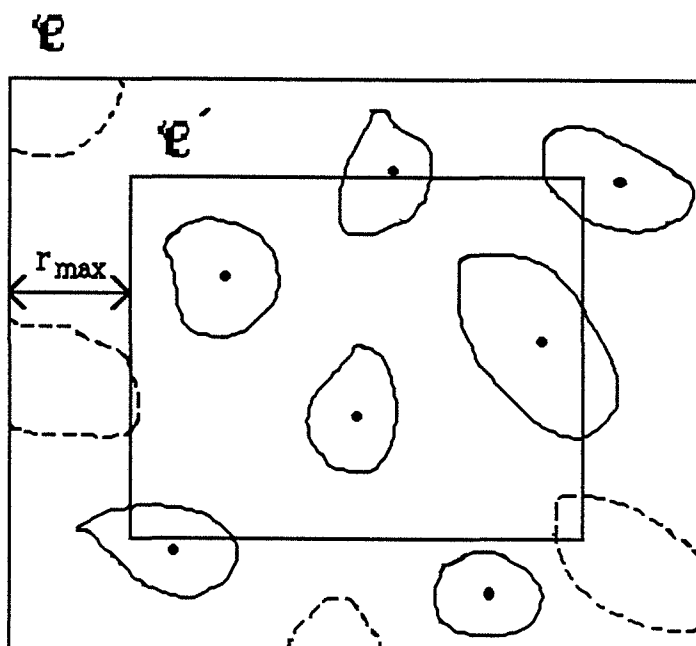


Figure 13 :
Principe de l'analyse d'un champ. Les objets qui touchent le bord (en pointillé) sont éliminés ; les autres sont marqués par leur centre géodésique.

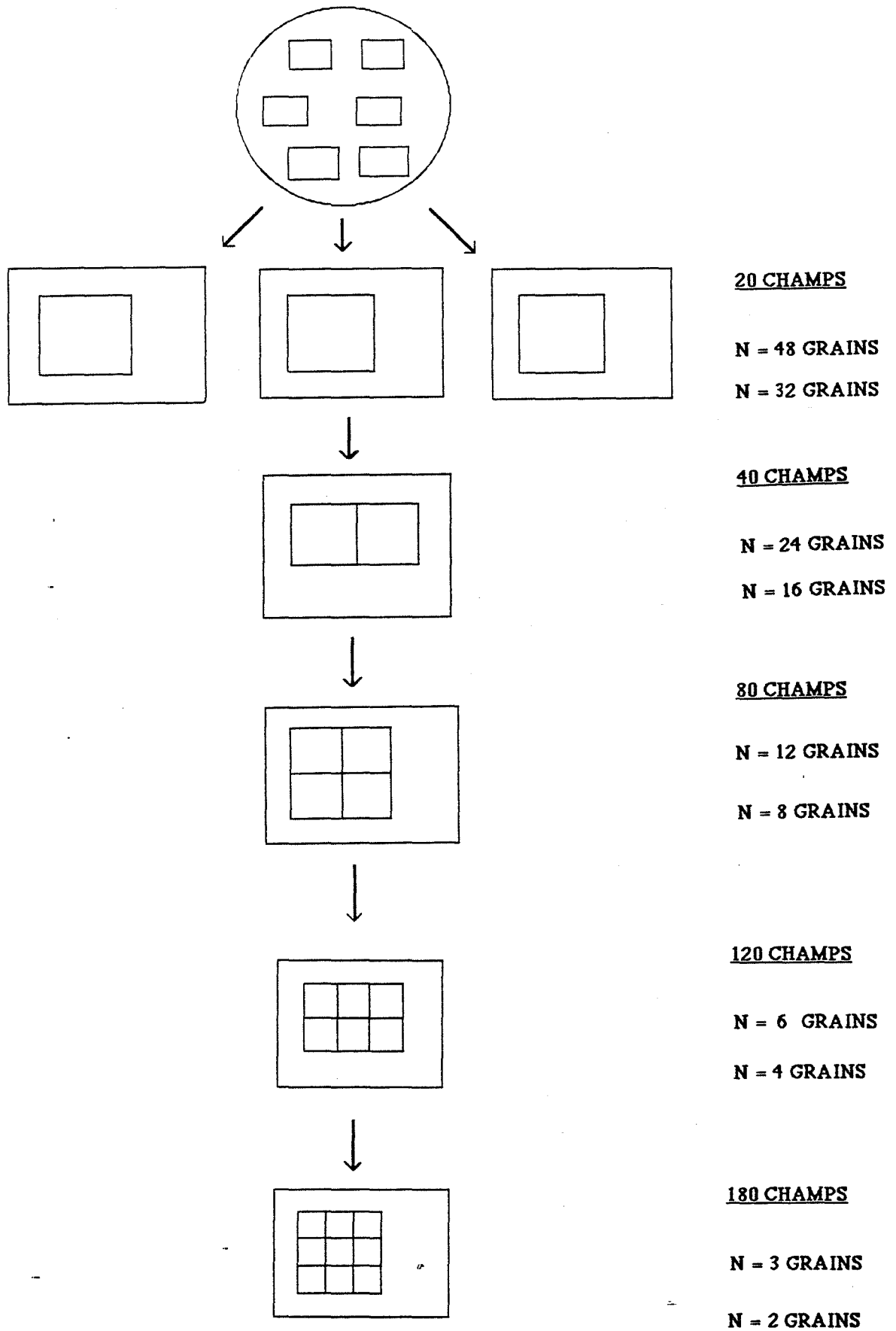


Figure 14 :
Principe du découpage des champs.

5. ANALYSE CRITIQUE DE QUELQUES RESULTATS - RECHERCHE DES MEILLEURES CONDITIONS OPERATOIRES ET LIMITES PRATIQUES DE VALIDITE DES COURBES S(d)

a. Influence de la résolution de l'image

Nous avons effectué avec le MORPHOPERICOLOR l'analyse d'une section d'un empilement lâche de grains WO_3 ($50 < \bar{D} < 63 \mu\text{m}$) (voir § V. A. 1.) en utilisant différents grossissements du microscope. Nous avons mesuré d'une part la compacité C, d'autre part l'aire de contact entre grains par unité de volume S_C (cette dernière est évaluée à partir des lignes de séparation à 2 pixels, voir § 4. c. β). La table 5 donne les résultats obtenus pour 3 grossissements différents.

Grossissement	x 100	x 200	x 500
dL = longueur élémentaire associée à 1 pixel (μm)	2,10	1,05	0,42
C	$0,579 \pm 0,005$	$0,599 \pm 0,004$	$0,609 \pm 0,011$
$\frac{S_C}{\text{mm}^3}$	$4,21 \pm 0,21$	$1,96 \pm 0,10$	$2,16 \pm 0,27$
Nb champs analysés	11	19	18

Table 5 :

Analyse d'une section d'un empilement à différents grossissements.

Ces résultats montrent que les valeurs mesurées sont cohérentes entre elles pour un grossissement supérieur à 200. **Pour un grossissement trop faible, la compacité mesurée est trop faible et l'aire de contact est trop grande.** Ceci est dû vraisemblablement à la mauvaise résolution de l'image digitale. Concernant la mesure de l'aire de contact par exemple, on fait intervenir les lignes de séparation à 2 pixels. La fraction de ces lignes qui correspondent à des grains proches voisins, mais pas en contact dans le plan est d'autant plus grande que la résolution est moins bonne. Elle explique la valeur mesurée trop grande de S_C pour un grossissement 100. Concernant la mesure de la compacité, nous avons constaté expérimentalement à plusieurs reprises que la valeur mesurée est trop faible quand la résolution est insuffisante, mais nous n'avons pas d'interprétation de ce fait.

Par ailleurs, à nombre de champs analysés égal, l'écart-type de l'estimation des mesures est moins bon au grossissement 500. Ceci s'explique par le fait que la surface totale analysée sur la section est plus faible (6,25 fois plus faible qu'au grossissement 200).

Par conséquent, à moins d'augmenter le nombre de champs analysés quand on augmente le grossissement, il faut réaliser un compromis entre la réduction du biais et la réduction de l'écart-type de l'estimation. Dans le cas qui nous occupe, ce compromis est assez bien réalisé au grossissement 200.

Pour rendre ces conclusions indépendantes du type de structure analysée, définissons un paramètre de résolution k_R égal au rapport d'un paramètre de taille moyen de la structure (ici le diamètre des grains) et de la longueur élémentaire associée à 1 pixel. Dans notre cas, une valeur de k_R supérieure à 50 conduit à une mesure correcte. Nous supposons que ce résultat est général. On peut augmenter k_R soit en utilisant une maille de digitalisation plus fine, soit en augmentant le grossissement du microscope. Dans ce dernier cas, on augmente l'écart-type de l'estimation.

Si l'on suppose que l'image digitale est définie à 1 pixel près, on peut donner une valeur approximative d'un biais éventuel sur une mesure simple, en fonction de dL . Pour la mesure d'une longueur L , le biais serait de l'ordre de dL/L . Pour une mesure d'aire, il serait de l'ordre de $2dL/L$. Si l'on considère la compacité comme une mesure d'aire sur des grains tous de même taille, le biais serait de l'ordre de $2/k_R$. Dans notre cas, au grossissement 100, le biais serait de l'ordre de 7 %, ce qui expliquerait l'écart observé.

b. Etude des courbes $S(d)$

La figure 15 présente 2 courbes expérimentales $S(d)$ obtenues d'une part pour un empilement lâche de billes de verre ($50 \leq \bar{D} \leq 63 \mu\text{m}$) (a) d'autre part pour l'empilement de grains de WO_3 cité au § a (b). L'empilement de billes de verre a été réalisé et analysé par C. Jacquet de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne. Le premier point de la courbe correspond à une estimation de l'aire de contact. Nous le considérons indépendamment des 4 autres points. La courbe expérimentale $S(d)$ est alors une droite passant par l'origine, comme le prévoit le modèle théorique que nous avons développé dans la 1ère partie § I. B. 2. b. β ., aussi bien pour les sphères que pour les grains polyédriques de WO_3 . L'aire de séparation à une distance $d > 0$ dépend probablement peu de la forme des grains, mais plutôt de leur taille et de leur arrangement dans l'empilement. On peut d'ailleurs relier la pente de la droite au diamètre des grains (§ I. eq. (9)). Ces résultats sont présentés dans la table 6, ainsi que les diamètres calculés à partir des intercepts moyens mesurés. En effet, pour des sphères, on a la relation (Underwood 1970) :

$$\bar{D} = 3/2 \bar{L}_1 \quad (40)$$

On note une bonne concordance entre les deux évaluations du diamètre qui sont d'ailleurs compatibles avec les limites de la tranche de tamisage.

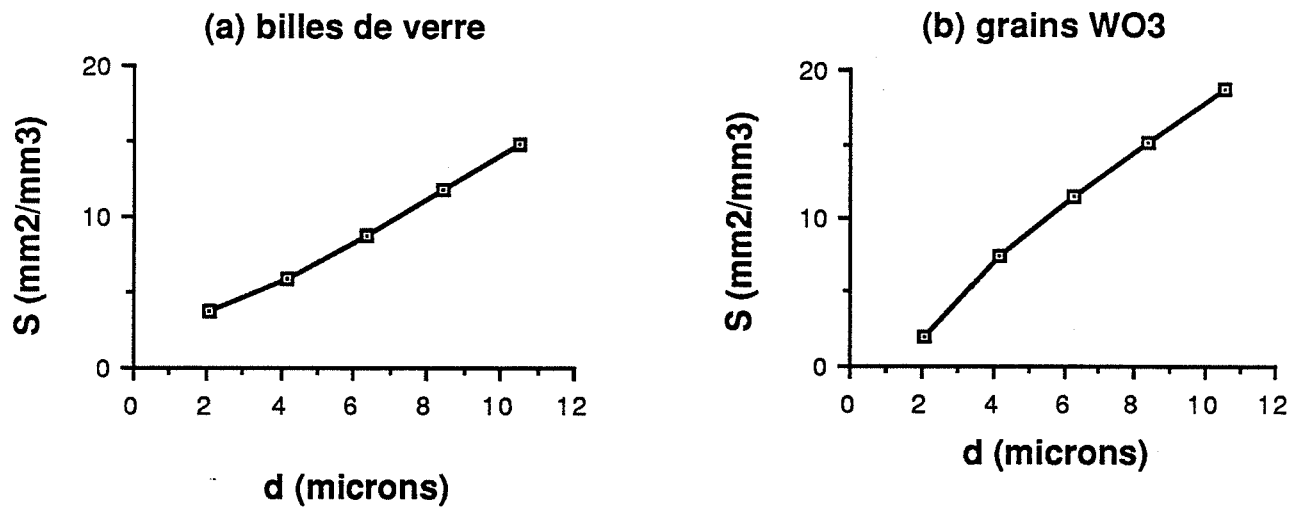


Figure 15 :

- Billes de verre ($50 < \bar{D} < 63 \mu\text{m}$)
- Grains de WO_3 ($50 < \bar{D} < 63 \mu\text{m}$).

	Sphères	Grains WO_3
Diamètre calculé (μm) (§ I. eq. (9) avec $z = 6$ et $C = 0,6$)	$60,4 \pm 0,6$	$54,0 \pm 0,5$
Diamètre déduit de l'intercept moyen (μm)	$60,6 \pm 0,4$	$52,5 \pm 0,6$

Table 6 :

Comparaison du diamètre calculé à partir de la pente de la droite $S(d)$ et à partir de l'intercept moyen.

L'observation d'une variation linéaire semble indiquer que le biais lié à la mesure de $S(d)$ est relativement faible dans la gamme d'analyse. En effet, ce biais devrait augmenter avec la distance de séparation d (il est nul pour $d = 0$, voir § 4.C.) et on devrait observer un écart croissant au modèle linéaire. L'analyse de l'empilement de grains de WO_3 à différents grossissements nous a d'ailleurs permis de représenter la variation $S(d)$ pour un plus large éventail de valeurs de d (Figure 16). La courbe théorique correspond à l'équation (9) du § I. ($z = 6$, $\bar{D} = 58 \mu\text{m}$). Quand d augmente, la courbe théorique et les valeurs expérimentales divergent. Ceci est cohérent avec les hypothèses faites pour le calcul (§ I. B. 2. β .) et pour la mesure (§ 4.C.) de $S(d)$. En ce qui concerne l'analyse de l'empilement de grains WO_3 , l'expression théorique de $S(d)$ est valable pour les valeurs de d inférieures à $\bar{D}/4$. Nous utiliserons dans la suite cette valeur pour la limite de validité du modèle (c'est d'ailleurs cette même valeur que nous avons utilisée pour le calcul).

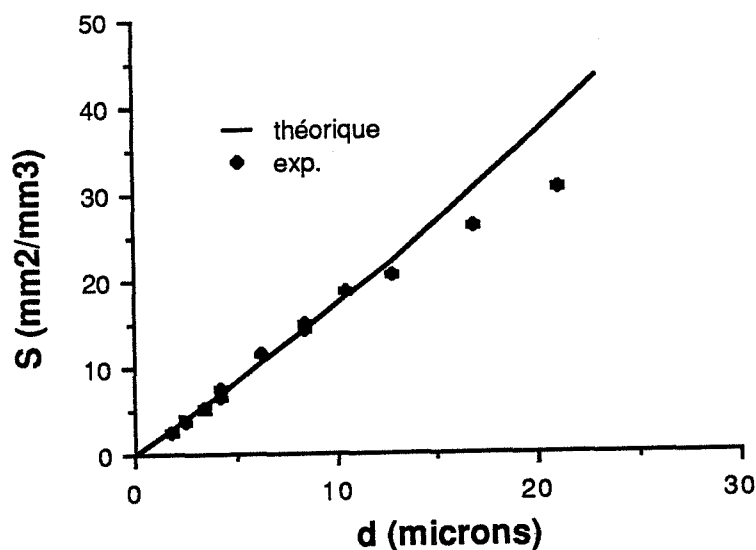


Figure 16 :

Variation $S(d)$ pour un empilement de grains WO_3 analysé à différents grossissements.

B. L'ANALYSE THERMOMAGNETIQUE

1. PRINCIPE DE L'ANALYSE

L'analyse thermomagnétique permet de mesurer en temps réel l'évolution du degré d'avancement d'une réaction solide-solide se déroulant à température constante. Le principe de la méthode a été décrit précisément par Ropital (1984). Nous n'y reviendrons pas ici. Nous avons amélioré le montage de Ropital en installant une commande automatique du champ magnétique, et en adaptant la méthode à l'étude des mélanges "in-situ" (voir § 2.).

2. MODE OPERATOIRE DE L'ANALYSE

L'analyse thermomagnétique est effectuée in-situ, c'est-à-dire dans le creuset qui a servi au mélangeage. Ce creuset cylindrique, de même dimension que le creuset en résine époxy utilisé pour la préparation des mélanges destinés à l'analyse d'images (§ A. 3. a.). Il est en alumine, matériau diamagnétique qui ne perturbe pas la mesure. Après mélangeage, le creuset est directement placé dans le dispositif d'analyse, sans aucun transvasement.

CHAPITRE V. ANALYSE DE MELANGES GRANULAIRES DE WO_3 ET NiO

A. ETUDE D'UN EMPILEMENT DE GRAINS "IDENTIQUES" DE WO_3 - INFLUENCE DU MODE DE CONSTRUCTION SUR LES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT

Dans ce paragraphe, nous présenterons les résultats de l'analyse d'empilements de grains de WO_3 tamisés entre 50 et 63 microns. On considèrera ces grains comme identiques, de même diamètre \bar{D} . Ce diamètre peut être évalué approximativement à partir de l'intercept moyen \bar{L}_1 (§ IV. éq. (40)). mesuré en analyse d'images.

Nous étudierons l'influence du mode de construction de l'empilement sur la compacité et sur les aires de séparation par zones d'influence. Pour chaque mode de construction, 3 à 4 échantillons différents, de masse 250 mg chacun, ont été analysés.

1. L'EMPILEMENT LACHE

L'empilement lâche est réalisé en versant lentement les grains dans un creuset, avec une faible hauteur de chute, à l'aide d'une spatule vibrante. Nos résultats sont comparés à ceux obtenus par C. Jacquet sur des empilements de billes de verre tamisées entre 50 et 63 microns réalisés de manière similaire (Table 1).

a. Compacité

La compacité de l'empilement lâche de grains WO_3 est proche de celle de l'empilement lâche de billes de verre (Table 1).

La valeur que nous obtenons est d'ailleurs compatible avec les résultats de la littérature concernant les empilements lâches de sphères (§ I. B. 1. b.).

b. Analyse des contacts

L'analyse de l'aire de contact, estimée à partir de l'aire de séparation par zones d'influence à 2 pixels (§ IV. A. 4. c.), est délicate car celle-ci dépend beaucoup de la qualité de l'acquisition des images, surtout lorsque les variations que l'on étudie sont faibles. Nous utiliserons plutôt la courbe entière de variation de l'aire de séparation $S(d)$. Nous calculerons la coordonnée moyenne z à partir de la pente de cette courbe (§ I. éq. (9)).

La valeur que nous obtenons pour l'empilement de billes de verre (Table 1) est proche de la valeur théorique de l'empilement de sphères construit grain par grain. Elle est légèrement supérieure à la valeur mesurée par Bernal et Mason (§ I. B. 2. a. γ) pour l'empilement lâche de billes d'acier ($\approx 5,5$) ce qui n'est pas étonnant, vu les différences de conditions expérimentales et aussi de méthode de mesure.

La valeur mesurée pour l'empilement de WO_3 (Table 1) semble un peu plus faible mais l'écart observé est peu significatif.

2. L'EMPILEMENT OBTENU PAR AGITATION "A SEC"

Pour pouvoir étudier les caractéristiques d'un empilement obtenu par une opération de mélangeage, nous avons réalisé un empilement lâche de grains de WO_3 par la méthode décrite au § 1., puis nous avons placé le creuset dans un bocal en matière plastique que nous avons agité au Turbula pendant 20 s. Une telle agitation sans ajout d'aucune sorte sera appelée agitation "à sec".

a. Compacité

L'empilement obtenu est sensiblement moins compact que l'empilement lâche (Table 1). Ceci peut s'expliquer par le mode de construction collectif de l'empilement qui favorise la formation de voûtes comme nous avons pu le montrer par une simulation numérique au § III. C.

b. Analyse des contacts

La coordinance moyenne de l'empilement agité à sec est aussi sensiblement plus faible que celle de l'empilement lâche, pour les mêmes raisons.

3. L'EMPILEMENT OBTENU PAR AGITATION "EN HUMIDE"

Le mélangeage se fait souvent en ajoutant un dispersant liquide à la poudre. Pour étudier les caractéristiques d'un tel empilement, nous avons versé 80 μ l d'alcool éthylique dans le creuset, avant d'y introduire les grains de WO_3 . Le creuset est ensuite agité au Turbula pendant un temps qui peut varier de 20 s à 10 mn. Une telle agitation avec un ajout liquide sera appelée agitation "en humide". Nous n'avons pas observé d'évolution des caractéristiques de l'empilement avec le temps d'agitation.

a. Compacité

La compacité obtenue est voisine de celle de l'empilement lâche et sensiblement supérieure à celle de l'empilement agité à sec (Table 1). Il est probable que la présence d'un liquide diminue les forces de frottements entre surfaces et les voûtes sont alors moins stables que dans l'empilement construit collectivement à sec.

b. Analyse des contacts

La valeur de la coordinance moyenne est également sensiblement supérieure à celle de l'empilement obtenu par agitation à sec, pour les mêmes raisons.

4. EFFET D'UNE VIBRATION SUR UN EMPILEMENT LACHE

Nous avons soumis des empilements lâches de grains de WO_3 à une vibration en fixant le creuset sur une table vibrante pendant 10 mn. Nous avons utilisé plusieurs amplitudes de vibration. On n'observe pas de variation significative des caractéristiques de l'empilement avec l'amplitude de vibration. La compacité et la coordinance moyenne sont légèrement supérieures à celles de l'empilement lâche. La vibration détruit des voûtes dans l'empilement. On est cependant loin encore de la compacité limite $C = 0,64$ observée dans les empilements de sphères (§ I. B. 1. b. γ). En fait, l'amplitude de vibration permise par la table vibrante est probablement trop grande si bien que le mouvement de vibration détruit complètement l'empilement.

Lorsqu'on arrête la vibration, celui-ci se reforme pour donner un empilement qui a des caractéristiques peu différentes de celles de l'empilement lâche. La vibration serait plus efficace si son amplitude était inférieure au diamètre des grains.

Type de grains	Mode de construction	C	z
billes de verre WO ₃ WO ₃ WO ₃ WO ₃	lâche	0,598 ± 0,004	5,89 ± 0,19
	lâche	0,593 ± 0,003	5,63 ± 0,16
	agité à sec	0,573 ± 0,003	5,43 ± 0,11
	agité en humide	0,589 ± 0,003	5,76 ± 0,11
	vibré	0,602 ± 0,003	5,85 ± 0,11

Table 1 :

Compacité et coordinance moyenne estimées pour différents empilements.

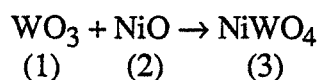
CONCLUSION DE L'ETUDE DU MODE DE CONSTRUCTION

Une des conclusions de cette étude est que les différences observées entre les caractéristiques d'empilements de grains de WO₃ obtenus par différents modes de construction sont relativement faibles. Elles sont par ailleurs peu différentes de celles d'un empilement lâche de billes de verre.

Le résultat le plus significatif est sans doute la compacité et la coordinance moyenne plus faibles de l'empilement obtenu par agitation à sec, indiquant qu'un mode de construction collectif tend à favoriser la formation de voûtes dans l'empilement.

B. ETUDE D'UN MELANGE BINAIRE DE GRAINS DE WO₃ ET DE NiO

Dans ce paragraphe, nous présenterons les résultats de l'analyse de mélanges binaires de grains de WO₃ (1) et NiO (2). Ces grains sont susceptibles de réagir suivant le schéma :



Nous présenterons dans le § 1. une étude cinétique de cette réaction à 700°C.

Afin de se placer dans les conditions d'une réaction totale entre les deux solides, nous avons toujours fixé la composition du mélange à la valeur correspondant à un même nombre de moles de WO₃ et de NiO. La fraction volumique v_2 de grains 2 est alors égale à 0,25.

Nous commencerons par étudier l'influence des conditions de mélangeage sur les caractéristiques de mélanges binaires de grains de même diamètre. Puis, les conditions de mélangeage étant fixées, nous analyserons des mélanges binaires de grains de différents diamètres.

1. INFLUENCE DES CONDITIONS DE MELANGEAGE SUR LES CARACTERISTIQUES D'UN MELANGE BINAIRE DE GRAINS DE MEME DIAMETRE

Pour cette étude, nous utilisons des grains de WO_3 et de NiO tamisés entre 63 et 100 μm . La composition volumique v_2 est fixée à 0,25. L'analyse d'images est faite avec l'analyseur NACHET NS 1500. Cet analyseur ne permet pas un traitement préalable de l'image numérique, mais réalise directement un seuillage de l'image vidéo. Mise à part cette différence, les traitements que nous effectuons avec le NACHET sont identiques à ceux présentés au § IV. Cependant, le NACHET a une moins bonne résolution que le MORPHOPERICOLOR avec lequel nous avons effectué toutes les autres analyses (l'image est digitalisée sur un réseau 192 x 280 au lieu de 512 x 512). Par ailleurs, l'étude de l'homogénéité impose d'avoir un grand nombre d'objets par champ. Aussi, nous utilisons un grossissement du microscope faible ($\times 50$). Pour ces 2 raisons, la résolution des images n'est pas suffisante pour faire des mesures précises (le paramètre de résolution k_R défini au § IV. A. 5. a. est égal à 16 environ). On doit alors s'attendre à obtenir des valeurs de la compacité trop faibles et des valeurs des aires de contact trop grandes (§ IV. A. 5. a.). En revanche, ceci n'affecte pas l'analyse de l'homogénéité, qui repose sur un comptage d'objets.

a. Mélangeage par agitation à sec

α . Etude préliminaire

Nous avons effectué des mélanges au Turbula dans un creuset en verre de même géométrie que le creuset en résine epoxy habituel. Nous avons pu ainsi observer que les grains de NiO avaient tendance à rester groupés contre les parois du creuset. Ce phénomène subsiste même pour des temps de mélangeage importants (2 heures) et si on augmente la vitesse d'agitation. En fait, les mouvements "convectifs" de particules dans ce type de mélangeurs sont probablement trop réguliers et ne permettent pas de réduire les amas initiaux à une taille suffisante. Lacey (1943) observe le même type de comportement avec un mélangeur tournant autour d'un axe fixe : les deux espèces ne parviennent pas à se mélanger, même si on prolonge le mélangeage. Il note qu'on améliore l'homogénéité si on poursuit le mélangeage en faisant tourner le récipient autour d'un axe, incliné à 90° par rapport au premier. En fait, il permet ainsi un mouvement convectif des particules dans une autre direction et le système peut alors atteindre un degré d'homogénéité plus avancé.

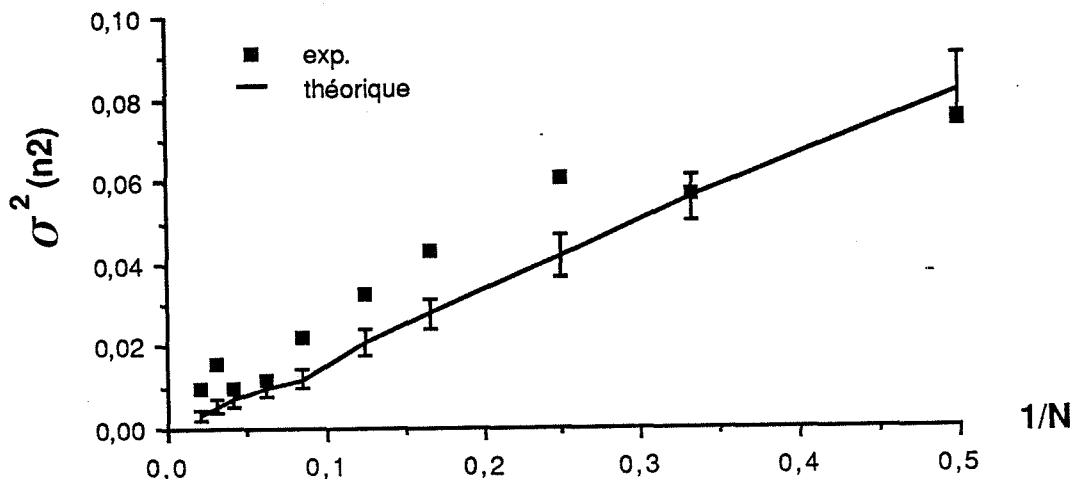


Figure 1 : Variance de la composition numérique mesurée à différentes échelles.

Nous avons étudié par analyse d'images un mélange obtenu après une heure d'agitation au Turbula. La figure 1 représente la variance de la composition numérique $\sigma^2(n_2)$ à différentes échelles (différents nombres N de particules par champ). Elle est caractéristique d'un mélange inhomogène : 7 points sur 10 sont en dehors de l'intervalle de confiance à 95 % (Annexe 7). Ces points correspondent à une variance expérimentale supérieure à la variance théorique. On peut d'ailleurs vérifier que les distributions $N_c(N_2)$ sont en général plus larges que les distributions théoriques (Figure 2). On se trouve donc dans le cas où l'échelle de ségrégation est grande devant l'échelle d'analyse (§ II. B. B₁. 2. b.). Le mélangeage au Turbula présente donc une tendance à la ségrégation à large échelle (> 48 grains). Ceci est cohérent avec l'observation "à l'oeil nu" de domaines inhomogènes.

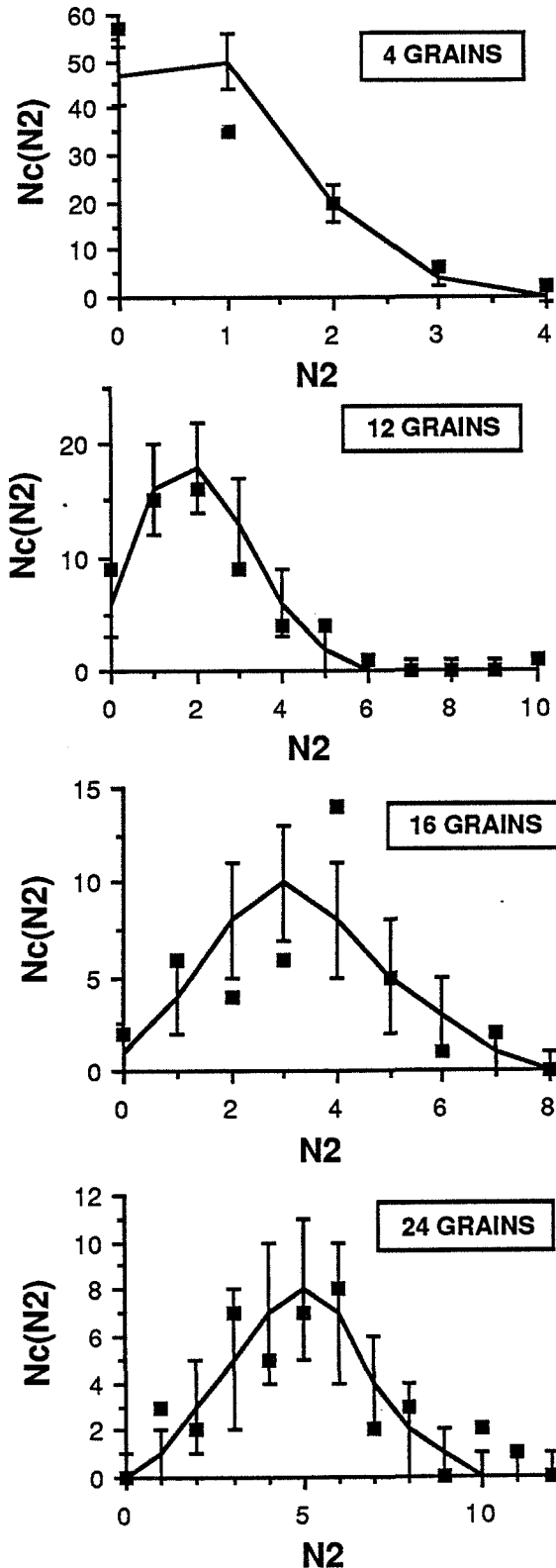


Figure 2 :
Distributions $N_c(N_2)$ à différentes échelles.
■ exp.
— théorique.

Il est intéressant de considérer l'évolution du rapport $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^{*2}(n_2)$ avec l'échelle d'analyse N . En effet, dans le cas d'une ségrégation à large échelle (grande devant toute valeur de N), nous avons vu au § II. B. B₁. 2. a. α . que la variance d'un mélange à ségrégation totale tendait vers la valeur d'un mélange homogène quand N tendait vers 1. Par conséquent, aux erreurs statistiques près, le rapport R_M doit tendre vers 1 quand N tend vers 1, quel que soit l'état d'homogénéité du mélange. A l'inverse, quand N augmente, l'écart entre la variance d'un mélange à ségrégation totale et celle d'un mélange homogène augmente, par conséquent R_M peut prendre des valeurs d'autant plus grandes. Si l'on admet que l'intensité de ségrégation I , telle que nous l'avons définie au § II. B. B₁. 2. a. α ., ne dépend pas de l'échelle d'analyse, R_M varie linéairement avec $N - 1$:

$$R_M = 1 + (N - 1) I \quad (1)$$

Cette hypothèse est parfaitement vérifiée quand le mélange présente une ségrégation à large échelle nettement marquée comme nous le verrons à l'aide d'un exemple (§ b. Figure 11).

Par contre, nous avons vu que la valeur de R_M peut être inférieure à 1 quand l'échelle de ségrégation est inférieure à l'échelle d'analyse (§ II. B. B₁. 2. b.). Par conséquent, une diminution de R_M avec $N - 1$, à partir d'une valeur donnée N_0 de N , sera indicatrice d'une ségrégation à une échelle inférieure à N_0 .

Dans le cas qui nous occupe, la variation de R_M avec $N - 1$, représentée sur la figure 3 a une allure globale croissante. Il semble cependant qu'il subsiste une ségrégation à faible échelle (< 16 grains). On peut donner un ordre de grandeur de l'intensité de ségrégation en faisant une régression linéaire sur les 6 premiers points. On trouve $I \approx 10,4 \%$.

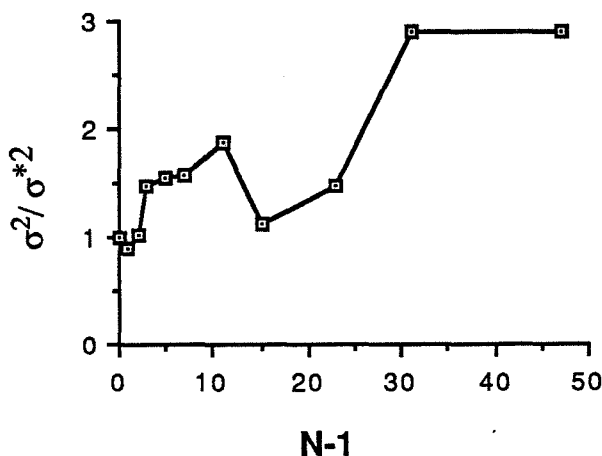


Figure 3 :

Variation du rapport $R_M = \sigma^2/\sigma^{*2}$ avec $N - 1$.

β. Evolution de quelques caractéristiques du mélange avec le temps de mélangeage

Au vu des résultats précédents, et des expériences de Lacey (1943), il semble plus efficace d'utiliser un mouvement de mélangeage moins régulier que celui du Turbula. Nous avons réalisé des mélanges en plaçant le creuset contenant la poudre dans un bocal en matière plastique que l'on agite au Turbula. Nous avons alors étudié la réactivité des mélanges obtenus après différents temps de mélangeage, et analysé leur caractéristiques.

β.1 Etude cinétique

La figure 4 représente la variation du degré d'avancement λ après une heure de la réaction entre WO_3 et NiO , mesurée par analyse thermomagnétique (Ropital 1984), avec le temps de mélangeage t_M . On observe une augmentation de la vitesse de réaction avec t_M même pour les temps de mélangeage supérieurs à plusieurs heures. On peut a priori attribuer cette augmentation à une amélioration de l'homogénéité du mélange (augmentation de l'aire de contact 1-2).

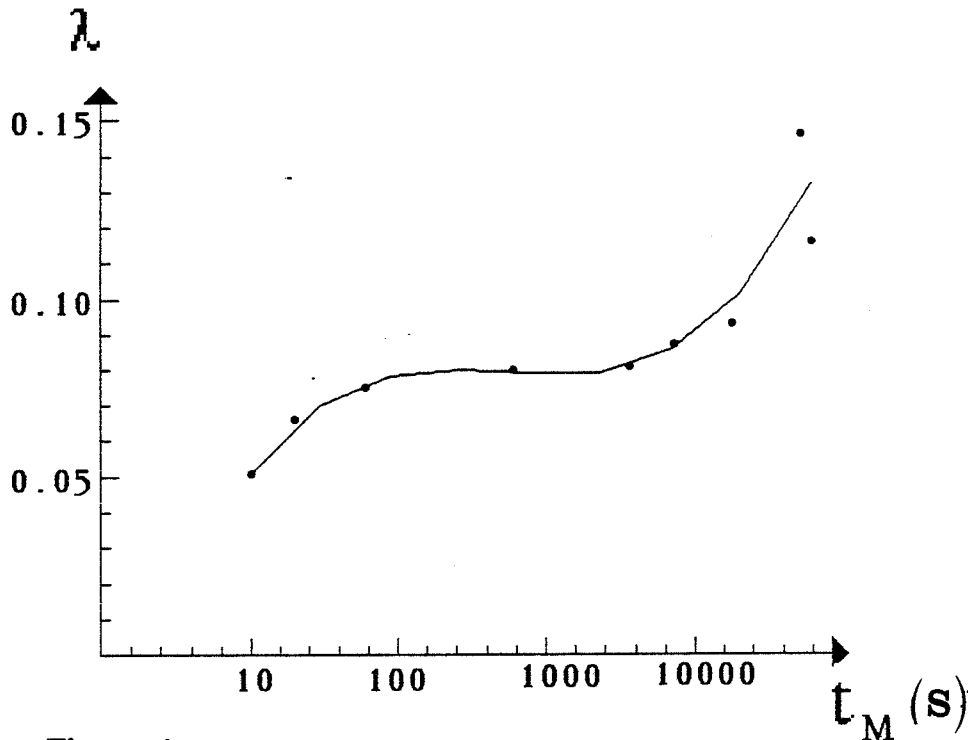


Figure 4 :

Evolution du degré d'avancement λ au bout d'une heure de réaction avec le temps de mélangeage t_M .

β.2 Etude par analyse d'images

Analyse de l'homogénéité :

L'analyse des distributions $N_c(N_2)$ a été faite pour différents temps de mélangeage t_M . Au début du mélangeage ($t_M \leq 20$ s) on observe une tendance à la ségrégation à faible échelle (Figure 5a). Pour les temps de mélangeage supérieurs à 1 mn, le comportement est plutôt caractéristique d'une ségrégation à large échelle (Figure 5b).

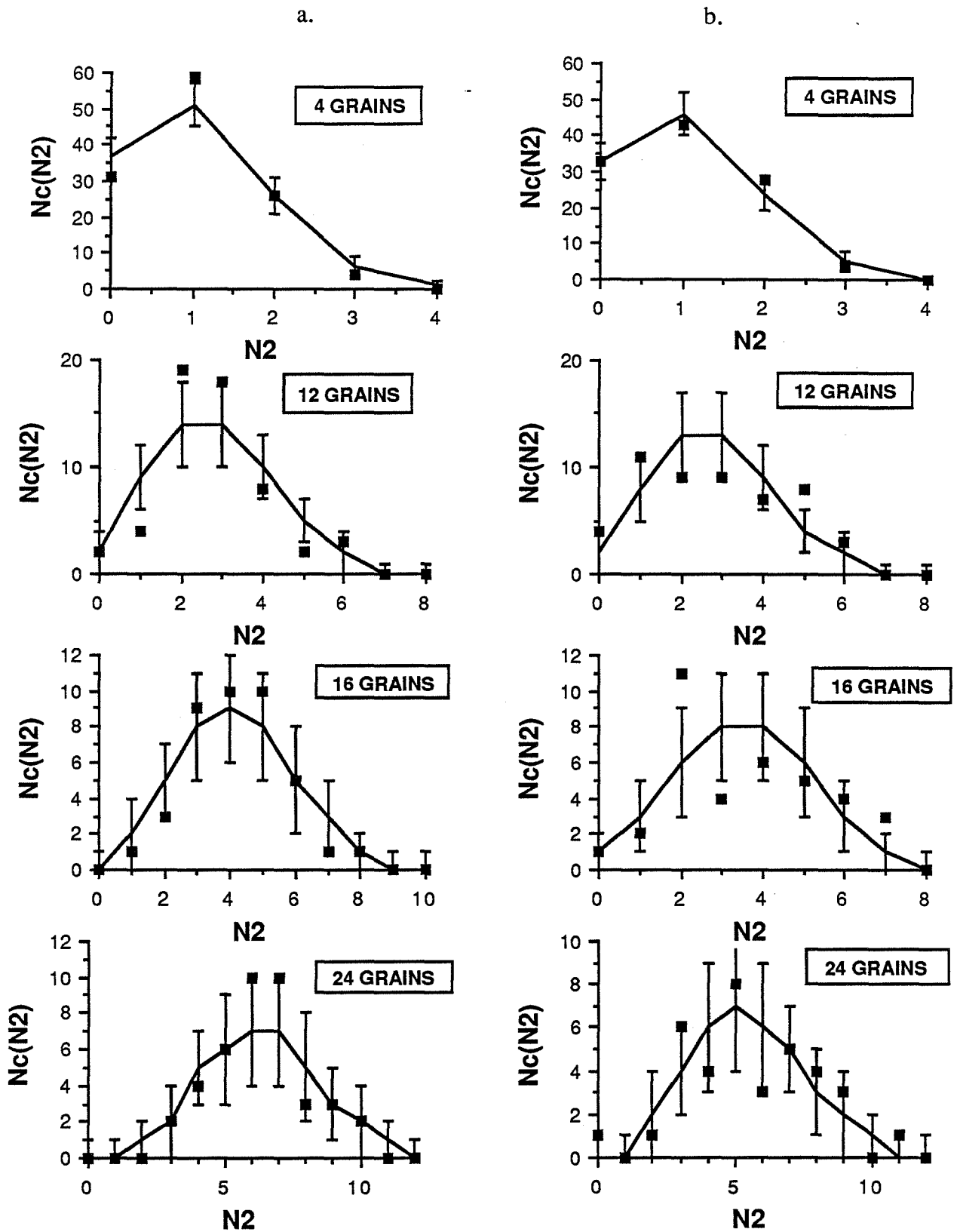


Figure 5 :
 Distribution $N_c(N_2)$ à différentes échelles pour un temps de mélange de 10 s (a) et 10 mm (b).

L'étude de la variation du rapport $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^{*2}(n_2)$ permet une analyse plus précise (Figure 6). Pour les faibles temps de mélangeage, la courbe décroît vers des valeurs inférieures à 1, indiquant une ségrégation à faible échelle (< 12 grains) importante. Quand t_M augmente, on observe plutôt une courbe à maximum, indiquant une ségrégation à une échelle supérieure à 2 grains et inférieure à 48 grains (échelle maximale d'analyse). Pour les temps de mélangeage supérieurs à 1 h, la courbe a une allure globale croissante, indiquant que l'échelle de ségrégation est plutôt supérieure à 48 grains.

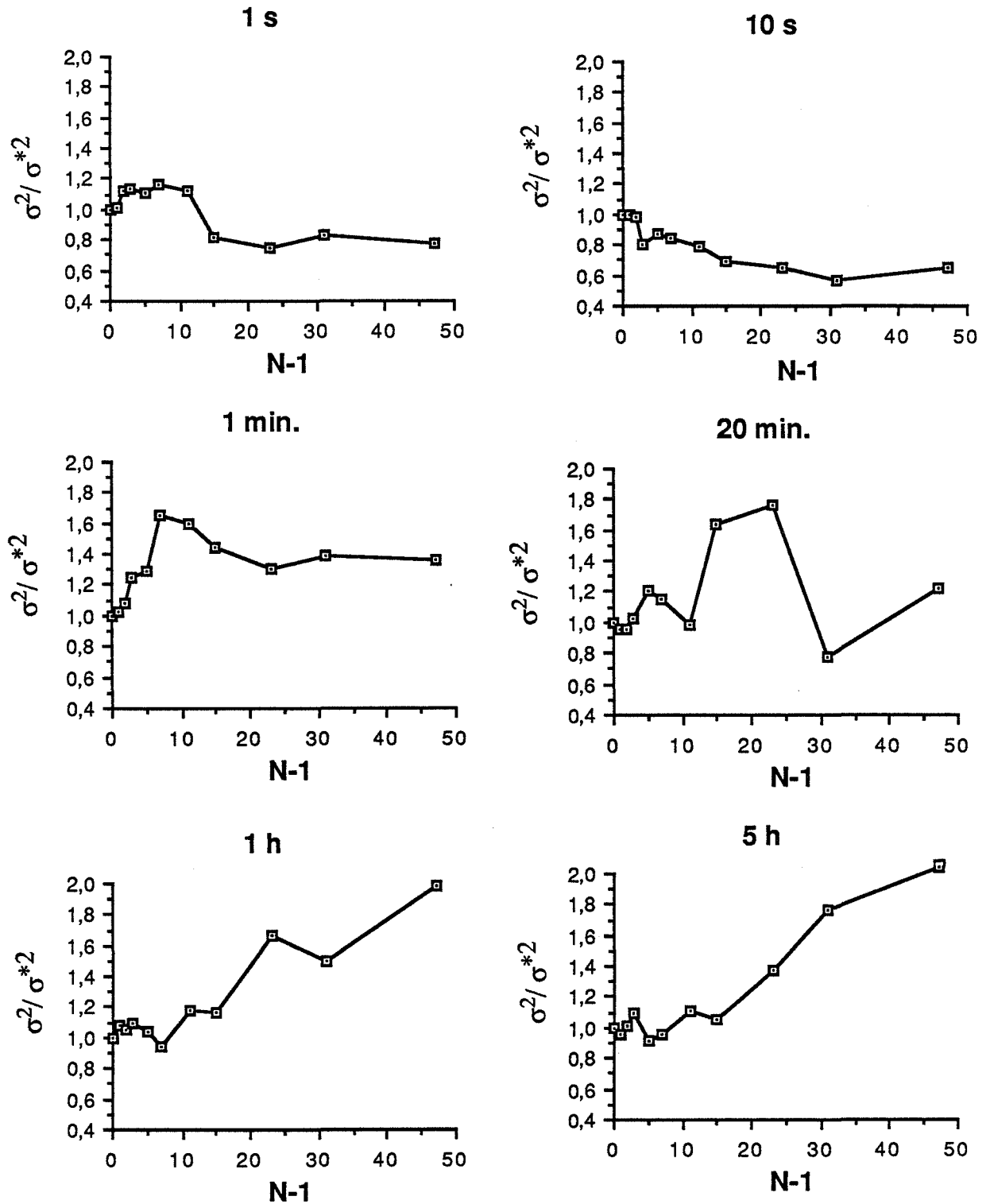


Figure 6 :

Variation de $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^{*2}(n_2)$ avec $N-1$ pour différents temps de mélangeage.

On observe donc une augmentation progressive de l'échelle de ségrégation avec le temps de mélangeage. Notons que la ségrégation à large échelle, présente nécessairement pour les temps de mélangeage très faibles, est probablement omniprésente au cours du mélangeage. Simplement, l'existence d'inhomogénéités importantes à faible échelle pour les faibles temps de mélangeage empêche leur mise en évidence expérimentale. Par contre, le fait que la variance mesurée à l'échelle de 48 grains soit nettement supérieure à la variance théorique pour les temps de mélangeage intermédiaires est probablement le fait de l'existence simultanée d'une ségrégation à faible et à large échelle (Figure 6, $t_M = 1$ mn et $t_M = 20$ mn).

Comme au § $\alpha.$, on peut donner un ordre de grandeur de l'intensité de ségrégation en faisant une régression linéaire sur la partie croissante de la courbe $R_M(N - 1)$. Ces résultats sont rassemblés dans la table 2. Il semble y avoir une diminution sensible de l'intensité de ségrégation quand le temps de mélangeage augmente.

TM	1 mn	10 mn	20 mn	1 h	5 h
I (%)	9	3,9	3,6	2,1	2,4

Table 2 :

Variation de l'intensité de ségrégation avec le temps de mélangeage t_M .

Enfin, on est en droit de se demander dans quelle mesure les écarts observés au modèle du mélange homogène sont significatifs. La table 3 représente pour différents temps de mélangeage et pour différentes échelles d'analyse les résultats qui peuvent être considérés comme caractéristiques d'un mélange non homogène, avec un facteur de confiance de 95 % (tests statistiques présentés en Annexe 7). 14 cases sur les 80 du tableau sont remplies, ce qui est tout à fait significatif. Par ailleurs, ces résultats appellent deux remarques concernant les mélanges de variance supérieure à la variance théorique :

1. L'échelle d'analyse maximale à laquelle les inhomogénéités à large échelle sont significatives a tendance à augmenter avec le temps de mélangeage. Cette échelle correspond à peu près au maximum des courbes de la figure 6. Ceci est donc cohérent avec une augmentation de l'échelle de ségrégation.
2. L'échelle d'analyse minimale à laquelle les inhomogénéités à large échelle sont significatives a tendance à augmenter avec le temps de mélangeage. Sachant que l'analyse de l'homogénéité par la méthode des prélèvements est d'autant plus sensible que l'échelle d'analyse est grande (§ II. B. B₁. 2. a. $\alpha.$), ceci peut s'interpréter par une diminution de l'intensité de ségrégation quand le temps de mélangeage augmente, ce qui est cohérent avec l'analyse des courbes $R_M(N - 1)$.

$t_M \backslash N$	2	3	4	6	8	12	16	24	32	48
1 s		⊕					+			
10 s										
20 s						⊕	⊗			
1 mn				⊗	⊗	⊗				
10 mn						⊗				
20 mn							⊗	⊗		
1 h								⊗		⊗
5 h									⊗	⊗

Table 3 :

Représentation pour différents temps de mélangeage et à différentes échelles des distributions N_c (N_2) rejetées avec un facteur de confiance de 95 %.

X test sur la variance

+ test de raccordement à la loi binomiale

(O indique que la distribution a une variance supérieure à la variance théorique).

Analyse des aires de séparation :

Compte tenu de la mauvaise résolution de nos images, nous avons préféré analyser les aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ (4 pixels) plutôt que les aires de contact (estimées à partir des aires de séparation à $10 \mu\text{m} = 2$ pixels). La figure 7 montre l'évolution des aires de séparation 1-1 et 1-2 avec le temps de mélangeage. On observe une augmentation des aires de séparation 1-1 et 1-2 tandis que les aires de séparation 2-2 restent quasiment constantes.

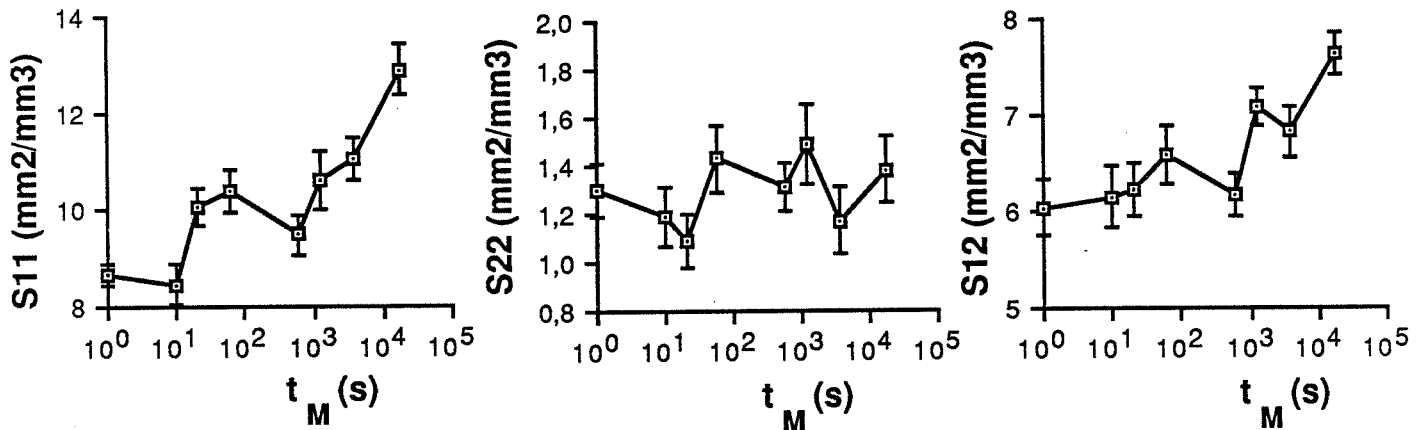


Figure 7 :

Evolution des aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ avec le temps de mélangeage t_M .

Analyse granulométrique :

Afin de mettre en évidence une éventuelle évolution de la granulométrie de notre système au cours du mélangeage, nous avons effectué une analyse de la distribution des intercepts et du volume moyen estimé par la méthode de Miles (§ IV. A. 4. b. γ). La figure 8 représente l'évolution de l'intercept moyen \bar{L}_1 et de l'écart type de la distribution des intercepts $\sigma(l)$ avec le temps de mélangeage pour les grains de WO_3 d'une part, pour les grains de NiO d'autre part.

La figure 9 représente l'évolution de la moyenne volumique du volume des particules. Nous n'utilisons pas l'estimation de la variance de la distribution volumique donnée par Miles car les résultats que nous obtenons sont anormalement élevés, probablement à cause de l'imprécision des mesures.

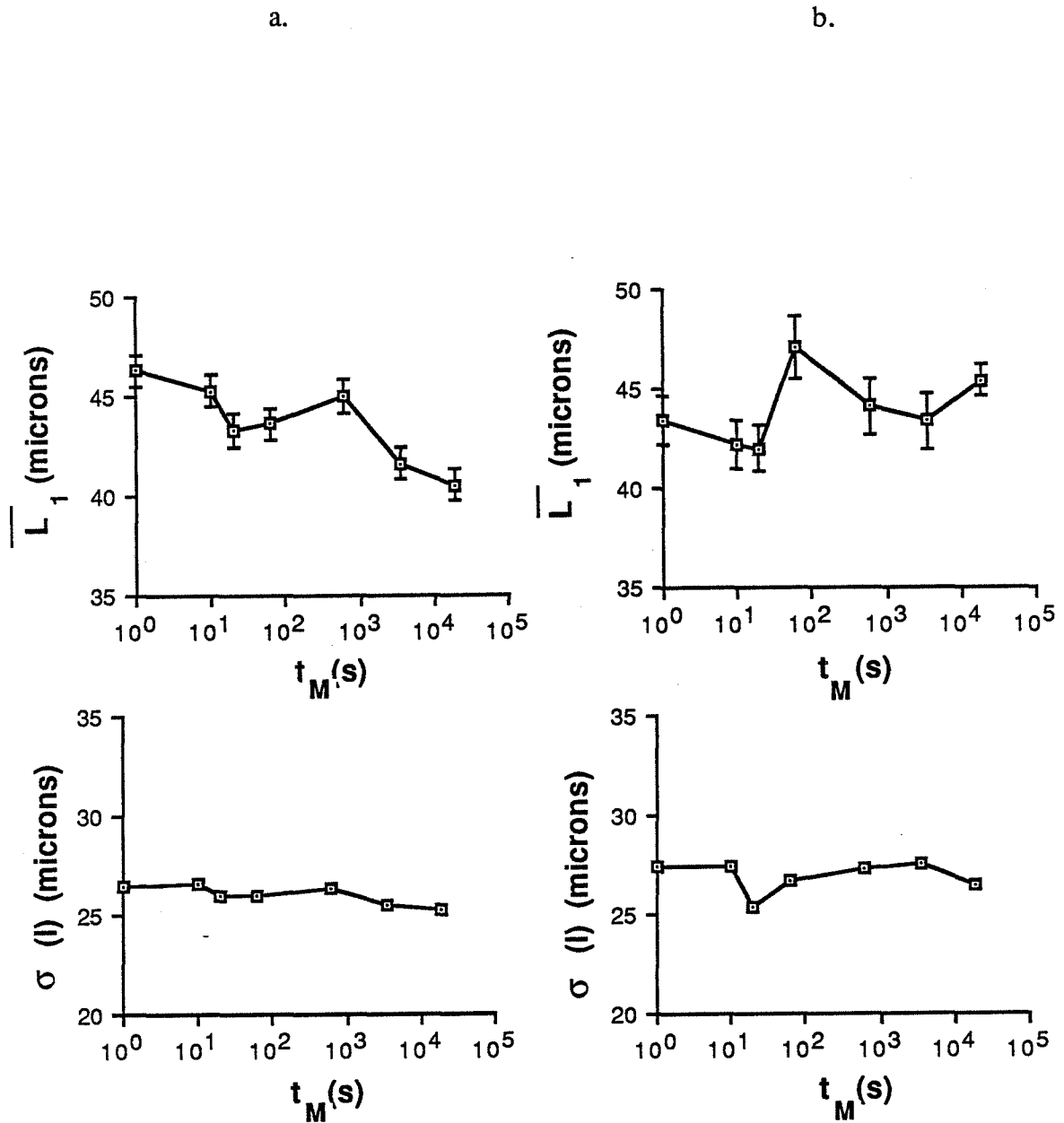


Figure 8 :

Evolution de l'intercept moyen \overline{L}_1 et de l'écart-type de la distribution des intercepts $\sigma(l)$ avec le temps de mélangeage t_M pour les grains de WO_3 (a) et pour les grains de NiO (b).

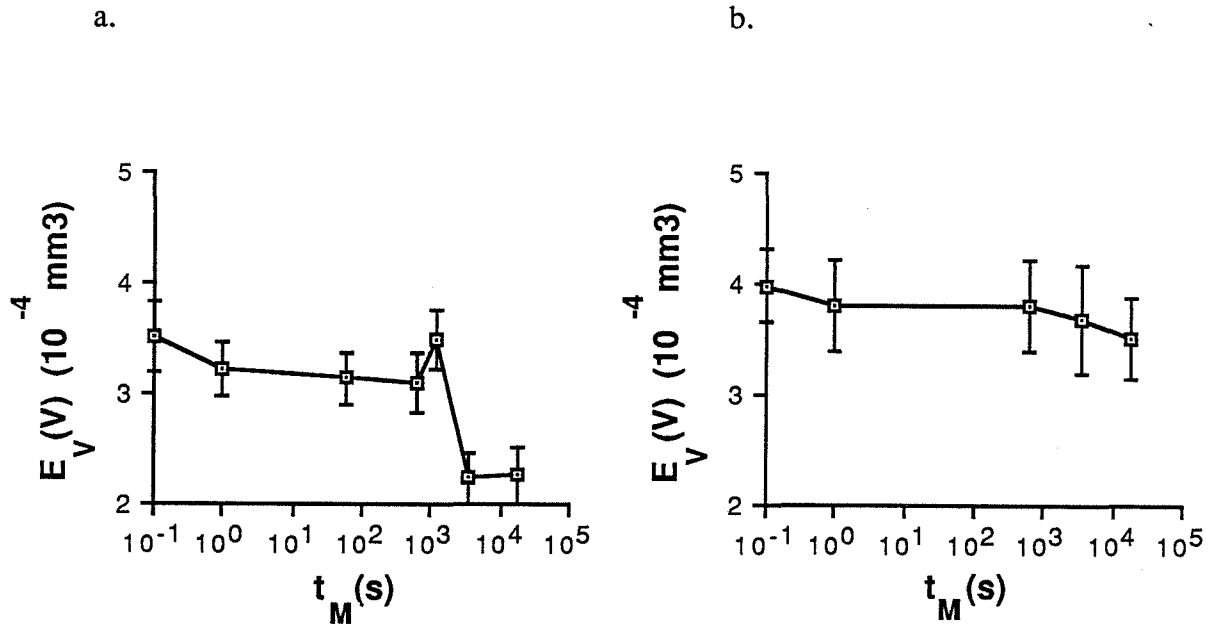


Figure 9 :

Evolution de la moyenne volumique du volume des grains de WO_3 (a) et de NiO (b) avec le temps de mélangeage t_M .

Les deux méthodes mettent en évidence une diminution de la taille moyenne des grains WO_3 tandis que celle des grains de NiO reste inchangée. Le mélangeage conduit donc à une légère abrasion des grains de WO_3 . La diminution relative du volume moyen observée ($\approx 30\%$) est cohérente avec la diminution relative de l'intercept moyen ($\approx 13\%$), soit environ 3 fois plus grande.

Analyse de la compacité et des fractions volumiques :

La compacité et la fraction volumique v_2 ne présentent pas d'évolution significative avec le temps de mélangeage. On trouve les valeurs moyennes :

$$C = 0,528 \pm 0,006 \quad v_2 = 0,27 \pm 0,01$$

La valeur trouvée pour la compacité est probablement trop faible du fait de la mauvaise résolution de nos images (§ IV. A. 5. a.). Elle est en tout cas plus faible que la valeur mesurée avec le MORPHOPERICOLOR sur un empilement de grains de WO_3 (§ A. 2.) et que celle mesurée sur des mélanges WO_3 - NiO (§ 2. b. β .) réalisés dans les mêmes conditions.

La valeur de v_2 , par contre, n'est pas soumise à cette critique puisqu'elle est obtenue à partir d'un rapport d'aires (§ IV. A. 4. a.). On obtient un résultat proche de celui attendu ($v_2 = 0,25$).

$\beta.3$ Interprétation des résultats

L'analyse de l'homogénéité a montré que l'échelle de ségrégation augmentait au cours du mélangeage, tandis que l'intensité de ségrégation avait tendance à diminuer. On peut alors donner la description suivante de l'opération de mélangeage.

Au temps 0, l'intensité de ségrégation vaut 1 et l'échelle de ségrégation est de l'ordre de la taille de l'échantillon. Au début du mélangeage, l'homogénéisation résulte essentiellement d'un mécanisme de **convection** (§ II. B. B₂). Cette première phase d'homogénéisation, très rapide, échappe à notre analyse : dès les tous premiers temps de mélangeage (1 s et 10 s), on observe un mélange où l'échelle de ségrégation est de l'ordre de quelques grains. La deuxième phase d'homogénéisation est contrôlée par la **diffusion** (§ II. B. B₂). Elle conduit simultanément à une diminution de l'intensité de ségrégation (les différences de composition entre différents points du mélange s'amenuisent) et à une augmentation de l'échelle de ségrégation (les variations de composition sont plus étalées dans l'espace). C'est ce que l'on observe expérimentalement pour les temps de mélangeage compris entre 1 mn et 5 h. L'homogénéisation par diffusion est donc beaucoup plus lente que l'homogénéisation par convection. Bien que nous n'ayons pas mené l'étude au-delà d'un temps de mélangeage de 5 h, il est probable que l'intensité de ségrégation tende vers une limite strictement positive car les différences de propriétés physiques entre grains (densité, taille, forme, état de surface) peuvent favoriser une démixtion au sein du mélange (§ II. B. B₂). Dans notre cas, cette limite serait de l'ordre de 2 %, une valeur nettement plus faible que celle obtenue par simple agitation (§ α).

L'analyse de l'homogénéité a montré que l'échelle de ségrégation est supérieure à 2 grains après une minute de mélangeage (la variation $R_M (N - 1)$ est croissante pour les faibles valeurs de N). Ceci signifie que le mélange est alors homogène à l'échelle microscopique. Par conséquent, l'environnement moyen d'un grain n'évolue plus guère avec le temps de mélangeage, si ce n'est du fait de l'homogénéisation à large échelle. L'intensité de ségrégation étant relativement faible, cet effet ne suffit pas pour expliquer l'augmentation de l'aire de séparation S_{12} observée expérimentalement. Par ailleurs, l'augmentation en parallèle des aires de séparation S_{11} et S_{12} ne peut être le fait de l'homogénéisation. On explique cette augmentation des aires S_{11} et S_{12} par l'abrasion observée des grains de WO_3 . Ceci est cohérent avec le modèle théorique que nous avons proposé au § II. C. 4. pour décrire le comportement des aires de séparation par zones d'influence (voir aussi § 2., Figure 13). L'abrasion des grains 1 devrait également entraîner une diminution de l'aire de séparation S_{22} . Cette diminution, théoriquement assez faible, n'est pas observée expérimentalement. Il faut dire aussi que l'aire de séparation S_{22} est faible et la précision de la mesure est donc moins bonne (voir figure 7). La table 4 compare les résultats expérimentaux concernant les aires de séparation à 20 μm avec les expressions théoriques obtenues à partir de l'éq. (60) du § II pour des temps de mélangeage de 1 s et 5 h. Nous prenons pour le calcul, la valeur de la compacité mesurée. Nous utilisons le modèle de Suzuki pour le calcul des nombres de contact (§ II. éq. (59)). La difficulté est dans le choix d'un diamètre de grains correct pour le calcul, car ce paramètre est le plus sensible (§ II. éq. (58)). Aussi, nous avons fait une optimisation des diamètres des grains par une méthode de moindres carrés. Le résultat obtenu est tout à fait satisfaisant (Table 4) : il indique une tendance à la diminution du diamètre moyen des grains de WO_3 , tandis que celui des grains de NiO reste quasiment inchangé. Cette diminution, de l'ordre de 15 %, est cohérente avec la diminution de l'intercept moyen mesuré (environ 13 %). La concordance entre les valeurs des aires de séparation mesurées et calculées est également assez bonne.

t_M	1 s	5 h
S_{11} mesuré (mm^2/mm^3)	$9,15 \pm 0,22$	$13,7 \pm 0,52$
S_{11} calculé (mm^2/mm^3)	8,94	13,1
S_{22} mesuré (mm^2/mm^3)	$1,12 \pm 0,11$	$1,16 \pm 0,14$
S_{22} calculé (mm^2/mm^3)	1,08	1,13
S_{12} mesuré (mm^2/mm^3)	$5,75 \pm 0,30$	$7,23 \pm 0,23$
S_{12} calculé (mm^2/mm^3)	6,22	7,73
\overline{D}_1 (μm)	80,5	68,5
\overline{D}_2 (μm)	83,5	80,4

Table 4 :

Comparaison des aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ expérimentales et théoriques et diamètres moyens optimisés.

b. Mélangeage par agitation en humide

Dans le cas de particules cohésives, le mélangeage par agitation est plus efficace en utilisant un dispersant liquide (§ II. B. B₂). Nous avons réalisé des mélanges en ajoutant à 250 mg de poudres ($\text{WO}_3\text{-NiO}$) 70 μl d'alcool éthylique, puis en agitant le creuset au Turbula. La quantité d'alcool ajouté correspond à une fraction volumique de liquide d'environ 63 %. Cette composition est la limite à partir de laquelle le système a les propriétés d'écoulement d'un liquide.

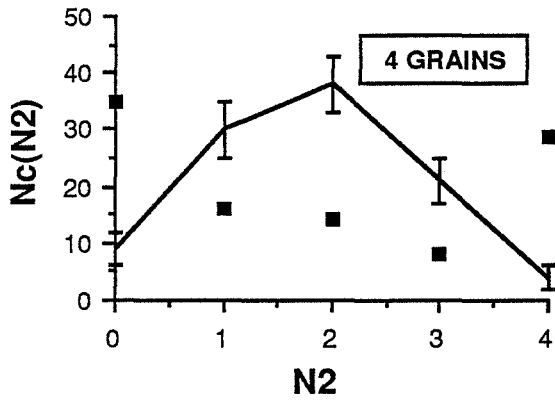
L'étude que nous présentons maintenant est assez sommaire puisqu'elle repose sur l'analyse de 4 mélanges seulement. Il s'agit essentiellement de dégager les caractéristiques essentielles qui différencient le mélangeage en humide du mélangeage à sec.

α. Evolution de quelques caractéristiques du mélange avec le temps de mélangeage

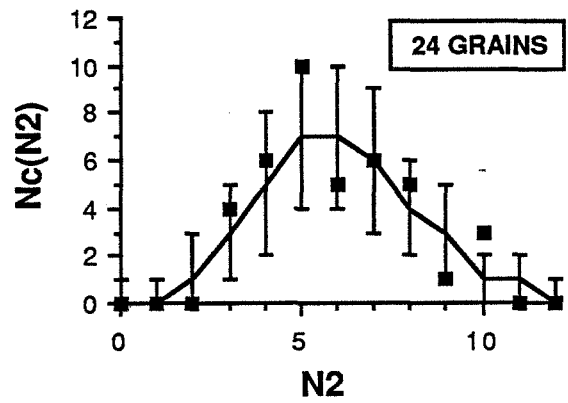
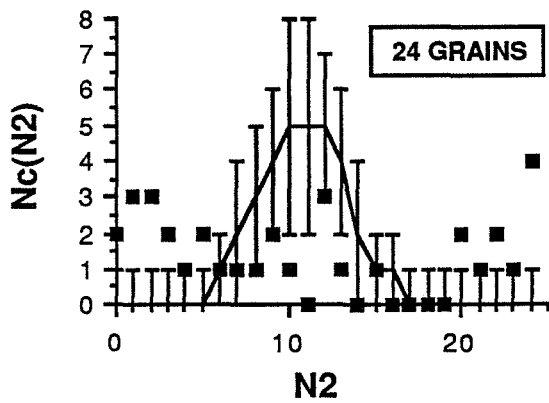
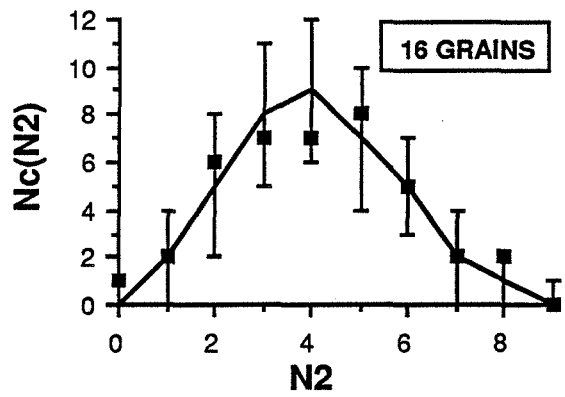
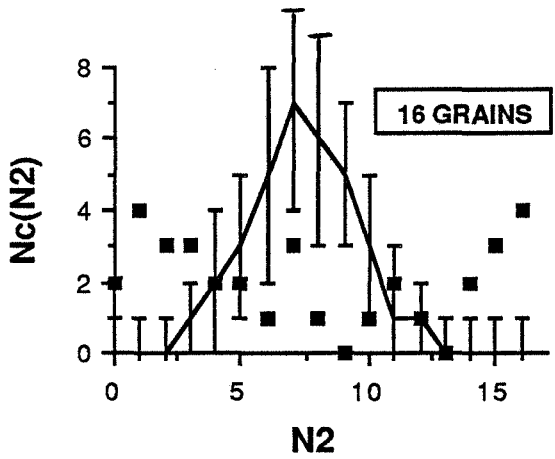
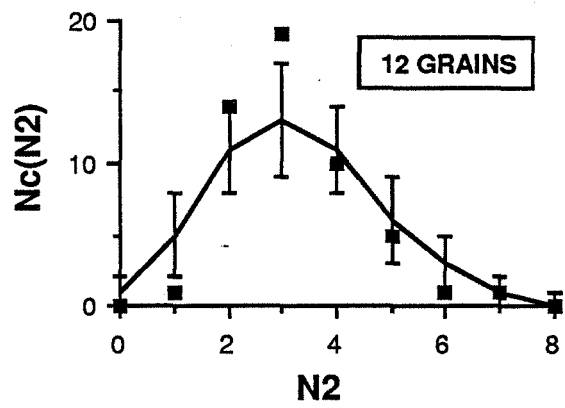
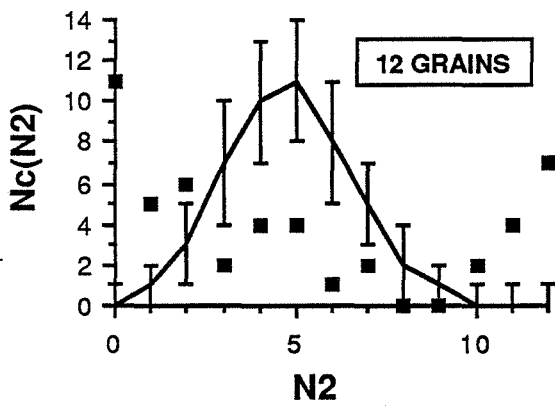
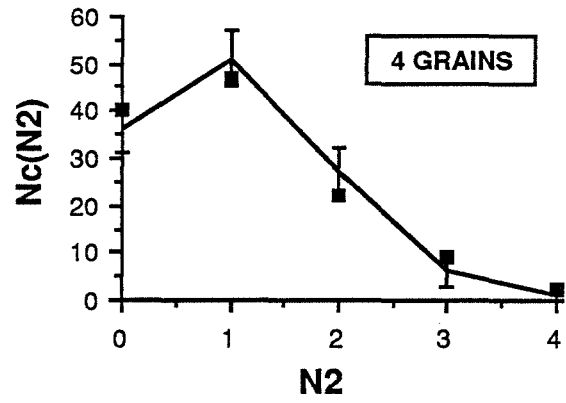
Analyse de l'homogénéité :

L'analyse des distributions N_c (N_2) a été faite pour différents temps de mélangeage t_M . Au début du mélangeage ($t_M = 2 \text{ mn}$), on observe une ségrégation à large échelle très importante (Figure 10a). Après 2 mn de mélangeage, la ségrégation est nettement moins importante et plutôt à faible échelle (Figure 10b) ; $N \leq 12$). Pour les temps de mélangeage plus grands, on observe encore de légers écarts au modèle du mélange homogène, mais l'interprétation est moins évidente (Figure 10c).

a.



b.



c.

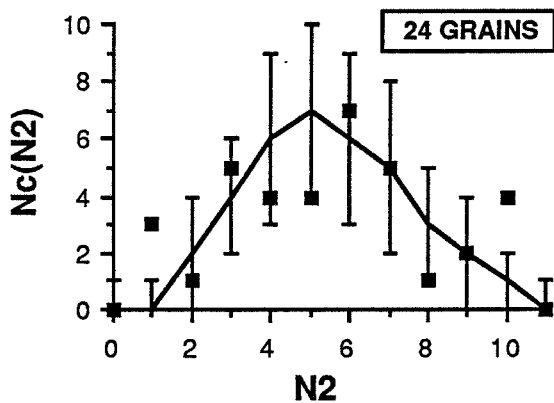
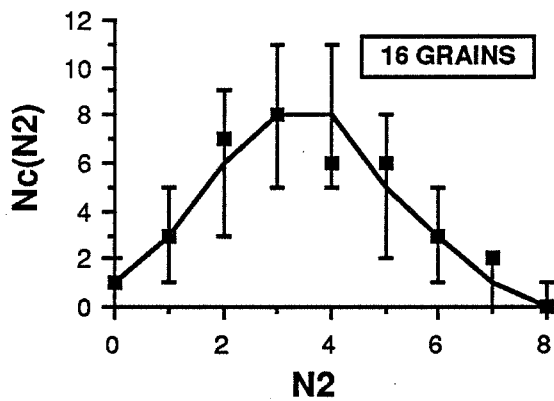
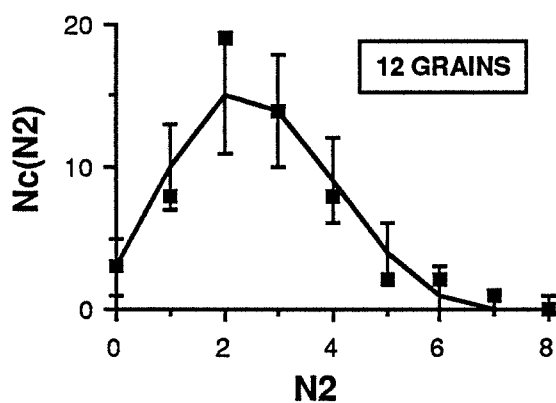
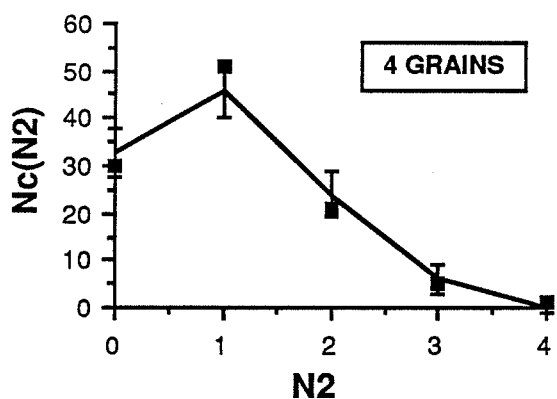


Figure 10 :

Distributions $N_c(N_2)$ à différentes échelles pour des temps de mélangeage de 1 mn (a), 2 mn (b) et 1 h (c).

En fait, si l'on étudie la variation du rapport $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^{*2}(n_2)$ avec $N - 1$ (Figure 11), on observe quasiment une droite pour $t_M = 1$ mn, indiquant que la ségrégation est purement à large échelle. L'intensité de ségrégation, calculée à partir de la pente de la droite vaut $I = 50$ %. Pour $t_M = 2$ mn, la courbe, pour $N \geq 12$, conduit à des valeurs de $\sigma^2(n_2)$ inférieures à $\sigma^{*2}(n_2)$. Ceci semble indiquer la présence d'une ségrégation à faible échelle (≤ 12 grains). Pour les temps de mélangeage supérieurs, la variation "en dents de scie" que l'on observe est probablement le fait d'une ségrégation à multiples échelles.

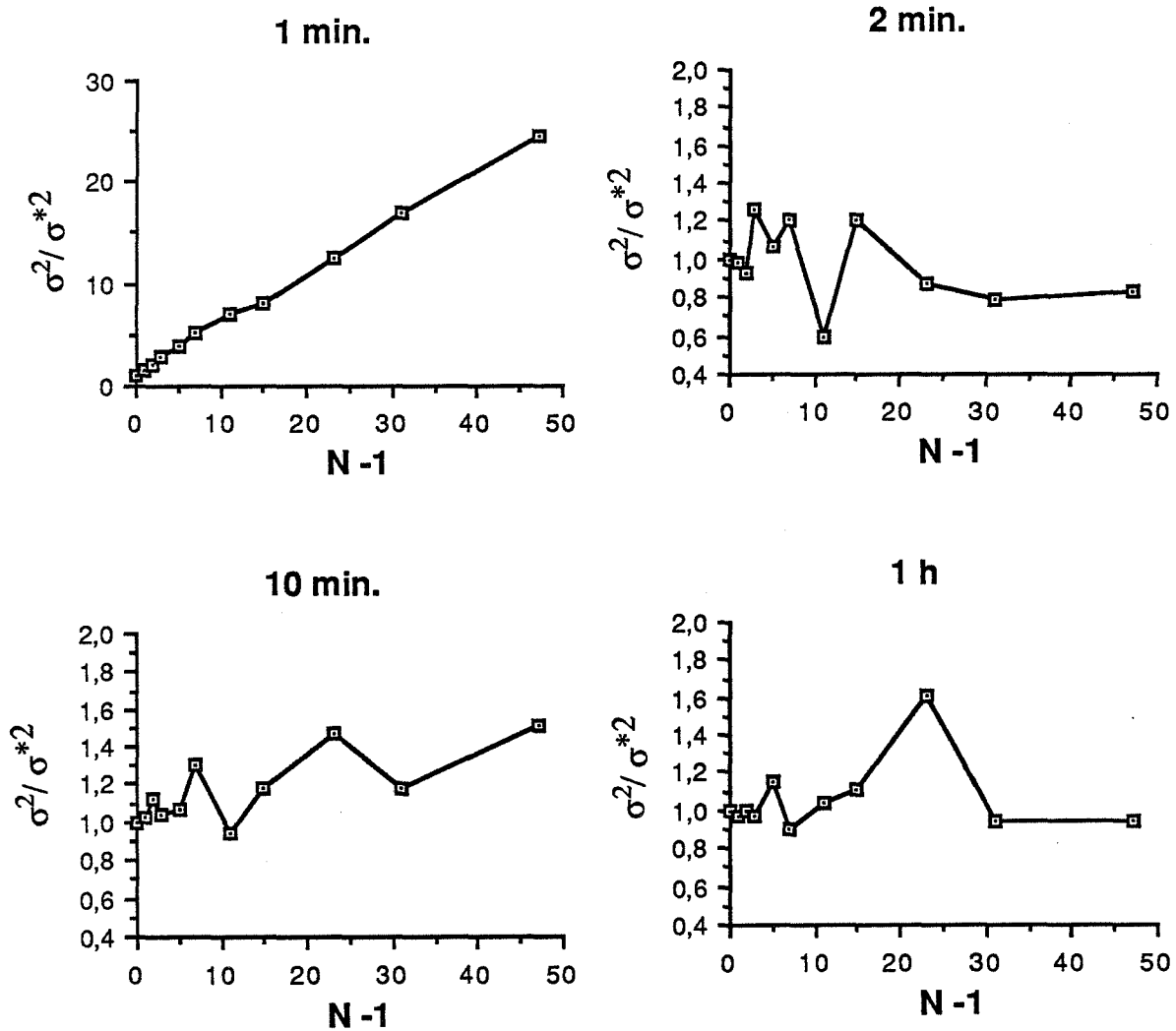


Figure 11 :

Variation de $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^{*2}(n_2)$ avec $N - 1$ pour différents temps de mélangeage.

On peut donner un ordre de grandeur de l'intensité de ségrégation en faisant une régression linéaire jusqu'au premier maximum "significatif" de la courbe (Table 5). Comme pour le mélangeage à sec, I tend vers une valeur de 2 à 3 % quand t_M augmente.

TM	1 mn	10 mn	1 h
I (%)	50	3,4	2,9

Table 5 : Variation de l'intensité de ségrégation avec le temps de mélangeage t_M .

Enfin, on est en droit de se demander dans quelle mesure les écarts au modèle homogène que nous observons sont significatifs. La table 6 représente pour différents temps de mélange et pour différentes échelles d'analyse les résultats qui peuvent être considérés comme caractéristiques d'un mélange non homogène, avec un facteur de confiance de 95 %. Le mélange après une minute peut être considéré comme inhomogène à toute échelle. Après 2 mn, il présente à la fois une ségrégation à large échelle ($\sigma^2(n_2) > \sigma^{*2}(n_2)$ de façon significative à l'échelle de 4 grains) et à faible échelle ($\sigma^2(n_2) < \sigma^{*2}(n_2)$ de façon significative à l'échelle de 12 grains). Pour les temps de mélange supérieurs, il semble qu'il y ait une augmentation de l'échelle de ségrégation avec le temps de mélange, mais il est clair que la confirmation d'une telle hypothèse nécessiterait davantage de points expérimentaux.

$t_M \backslash N$	2	3	4	6	8	12	16	24	32	48
1 mn	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗	⊗
2 mn			⊗			⊗				
10 mn					⊗		⊗			
1 h							⊗			

Table 6 :

Représentation pour différents temps de mélange et à différentes échelles des distributions $N_c(N_2)$ rejetées avec un facteur de confiance de 95 %

X test sur la variance

+ test de raccordement à la loi binomiale

(O indique que la distribution a une variance supérieure à la variance théorique).

Analyse des aires de séparation :

La figure 12 montre l'évolution des aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ avec le temps de mélange. On observe une augmentation des aires 1-1 et 1-2 et une diminution de l'aire 2-2.

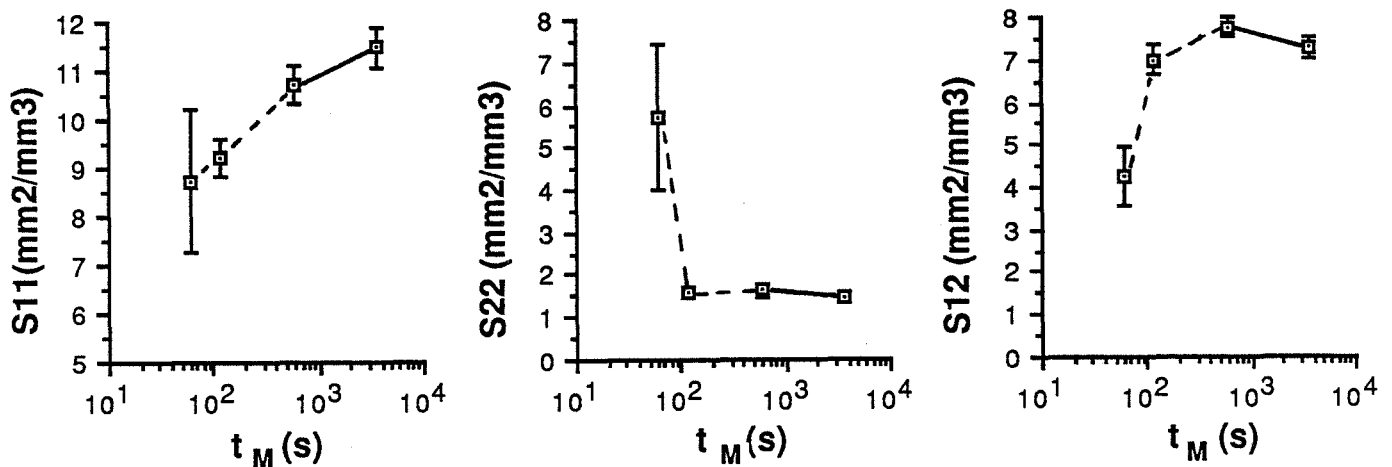


Figure 12 :

Evolution des aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ avec le temps de mélange t_M .

Analyse granulométrique :

On n'observe pas d'évolution significative de \bar{L}_1 et de E_V (V) avec le temps de mélangeage, ni pour les grains de WO_3 , ni pour les grains de NiO.

Analyse de la compacité et des fractions volumiques :

La compacité ne présente pas d'évolution significative avec le temps de mélangeage. On trouve la valeur moyenne :

$$C = 0,558 \pm 0,008$$

soit une valeur sensiblement supérieure à la valeur obtenue pour les mélanges à sec. Ceci est cohérent avec l'analyse faite sur un empilement de grains de WO_3 réalisé dans les mêmes conditions (§ A. 3.). La valeur obtenue ici est légèrement plus faible du fait de la mauvaise résolution de nos images.

La fraction volumique v_2 , par contre, a tendance à décroître avec t_M (Table 7). La valeur mesurée pour $t_M = 1$ mn est d'ailleurs exceptionnellement élevée. Ceci s'explique par la ségrégation à large échelle, qui est très importante pour les faibles temps de mélangeage, ce qui implique une probabilité non négligeable d'obtenir une section de composition nettement différente de la moyenne sur l'échantillon.

TM	1 mn	2 mn	10 mn	1 h
v 2	0,46 ± 0,08	0,29 ± 0,01	0,28 ± 0,01	0,26 ± 0,1

Table 7 :

Variation de la fraction volumique v_2 avec t_M .

β. Interprétation des résultats

Qualitativement, on peut décrire l'opération de mélangeage en humide comme celle de mélangeage à sec. La première phase de l'homogénéisation résulte essentiellement d'une convection et l'échelle de ségrégation diminue. La seconde phase est contrôlée par la diffusion et l'échelle de ségrégation augmente tandis que l'intensité de ségrégation diminue lentement. La différence essentielle est que l'homogénéisation est ici beaucoup plus lente : la première phase se termine après un temps de l'ordre de 2 mn et la deuxième phase n'est pas achevée après une heure (on observe encore une ségrégation à faible échelle). Il faut dire que les conditions d'agitation étaient différentes dans l'étude du § 1. a. β. On observe par compte une meilleure homogénéité que pour le mélange réalisé à sec dans les mêmes conditions (§ 1. a. α.) ($I \approx 3$ % après 1 h contre 10 % pour le mélangeage à sec). L'ajout d'un dispersant liquide favorise donc, semble-t-il, l'homogénéisation.

On peut considérer que le mélange est homogène à l'échelle microscopique à partir de 10 mn de mélangeage (la variation $R_M (N - 1)$ a une allure plutôt croissante pour les faibles valeurs de N). Par conséquent, l'environnement moyen d'un grain n'évolue plus guère avec le temps de mélangeage si ce n'est du fait de l'homogénéisation à large échelle. Comme par

ailleurs l'intensité de ségrégation est relativement faible après 10 mn de mélangeage, cette homogénéisation n' a probablement alors plus d'effet sensible sur les aires de séparation.

L'augmentation de S_{11} et la diminution de S_{22} avec t_M sont dues essentiellement à la diminution de v_2 . Cette diminution observée est probablement le fait de coupes "malchanceuses", c'est-à-dire ayant une composition surfacique nettement différente de l'espérance mathématique. Cet effet est d'autant plus probable que le mélange est inhomogène, par conséquent, la convergence de v_2 vers la valeur 0,25 est une mise en évidence indirecte de l'homogénéisation. L'augmentation de S_{12} ne peut en revanche être expliquée par la diminution de v_2 (voir Figure 13c) et elle est liée à la diminution importante de l'intensité de ségrégation au début du mélangeage.

Enfin, une autre caractéristique importante des mélanges en humide est leur plus grande compacité. Ceci peut s'expliquer par le fait que la présence du liquide favorise le glissement des grains les uns sur les autres au moment de la formation de l'empilement comme nous l'avons vu au § A. 3. Les aires de séparation sont également plus grandes. Ceci peut être relié à l'augmentation de compacité (§ II. éq. (58), (59), (60)). On peut vérifier que les rapports entre les aires de contact pour un mélange après une heure en humide et les aires de contact après 1 mn à sec (avant abrasion) montrent une augmentation de l'ordre de 10 % tandis que l'augmentation de compacité est de 8 %.

Compte tenu des hypothèses faites, on devrait pouvoir comparer les aires de séparation mesurées pour $t_M = 1$ h avec les valeurs théoriques prédites par l'éq. (60) du § II. Nous avons fait cette comparaison en utilisant le modèle de Suzuki pour les nombres de contacts et en recherchant le diamètre moyen des grains par optimisation. La table 8 montre le résultat obtenu. La concordance est relativement bonne.

t_M	10 mn	1 h
S_{11} mesuré (mm^2/mm^3)	$10,7 \pm 0,40$	$11,5 \pm 0,42$
S_{11} calculé (mm^2/mm^3)	10,40	10,9
S_{22} mesuré (mm^2/mm^3)	$1,64 \pm 0,15$	$1,47 \pm 0,13$
S_{22} calculé (mm^2/mm^3)	1,62	1,44
S_{12} mesuré (mm^2/mm^3)	$7,75 \pm 0,22$	$7,29 \pm 0,25$
S_{12} calculé (mm^2/mm^3)	8,21	7,94
\overline{D}_1 (μm)	75,5	77,5
\overline{D}_2 (μm)	75,5	75,5

Table 8 :

Comparaison des aires de séparation à $20 \mu\text{m}$ expérimentales et théoriques et diamètres moyens de l'optimisation.

c. Conclusion de l'étude des conditions de mélangeage

L'analyse de l'homogénéité à différentes échelles telle que nous l'avons menée par analyse d'images nous a permis de quantifier à la fois l'intensité de ségrégation et l'échelle de ségrégation dans un mélange. Nous avons ainsi pu effectuer une vérification expérimentale directe de certaines hypothèses faites dans la littérature pour décrire théoriquement un processus d'homogénéisation (§ II. B. B₂.): au début du mélangeage, la vitesse d'homogénéisation est régie par la convection de "paquets" de particules à l'intérieur du mélangeur. Puis, très vite, elle est contrôlée par la diffusion de particules individuelles au sein du mélange.

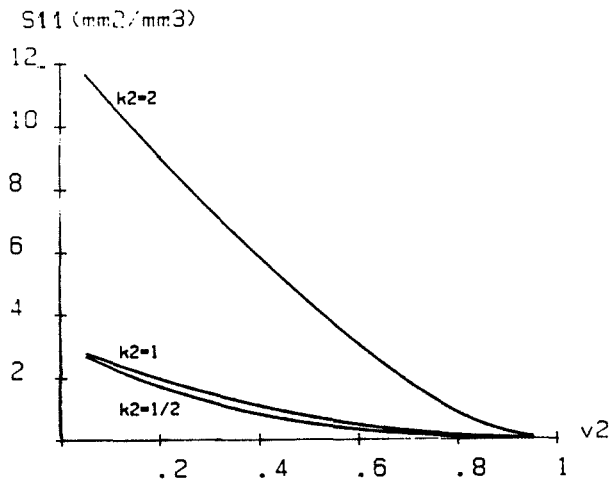
Le mélange classique au Turbula à sec (§ 1. a. α .) ne permet pas d'atteindre une homogénéité satisfaisante car les mouvements de convection de particules sont alors probablement trop réguliers. On obtient de meilleurs résultats en utilisant un mouvement d'agitation moins régulier (§ 1. a. β .) ou en ajoutant un dispersant liquide (§ 1. b.). Dans tous les cas, on observe cependant une tendance à la démixtion, caractérisée par l'observation d'une ségrégation à large échelle pour les temps de mélangeage importants.

2. ETUDE PAR ANALYSE D'IMAGES DE L'INFLUENCE DES DIAMETRES DES GRAINS SUR LES CARACTERISTIQUES D'UN MELANGE BINAIRE DE GRAINS REALISE PAR AGITATION A SEC

a. Introduction

Les modèles que nous avons développés au § II. nous permettent d'exprimer théoriquement les aires de séparation $S_{ij}(d)$ (d petit) d'un mélange binaire de sphères pour toute composition volumique v_2 et pour tout rapport de taille $k_2 = R_2/R_1$. La figure 13 représente la variation de ces aires avec v_2 pour 3 rapports de taille ($k_2 = 1/2$, $k_2 = 1$ et $k_2 = 2$), le diamètre des grosses sphères étant fixé à la valeur $90 \mu\text{m}$. Nous avons utilisé le modèle de Suzuki et Oshima pour le calcul des nombres de contacts et le modèle de Ben Aïm pour le calcul de la compacité (l'empilement étant supposé dense : $C_0 = 0,64$).

a.



b.

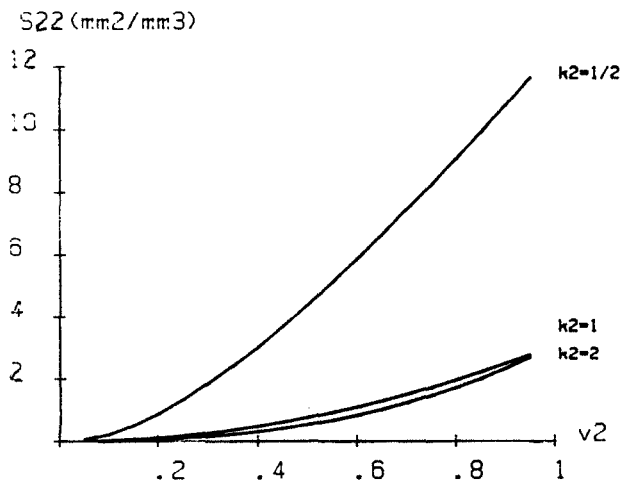
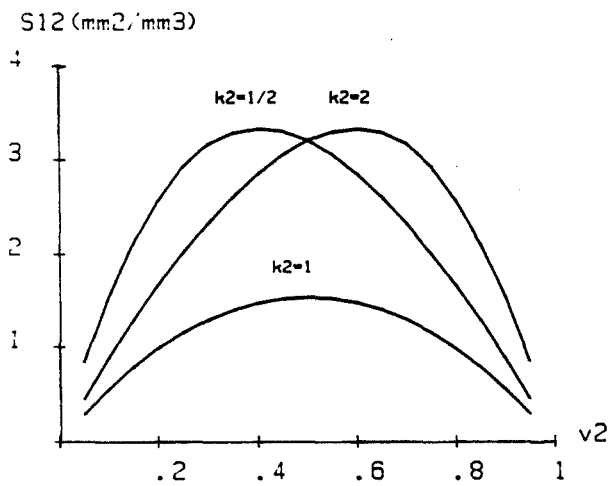


Figure 13 :
Variation théorique des aires de séparation S_{11} (a) S_{22} (b) et S_{12} (c) à 4,2 μm avec v_2 pour différents rapports de taille $k_2 = R_2/R_1$ (le diamètre des grosses sphères est fixé à 90 μm).

c.



On peut alors faire l'analyse suivante : considérons un empilement de sphères de mêmes rayons ($\bar{D}_1 = \bar{D}_2 = 90 \mu\text{m}$). Si l'on diminue le diamètre des grains 2 ($k_2 = 1 \rightarrow k_2 = 1/2$), on provoque une augmentation très rapide de l'aire de séparation S_{22} , tandis que l'aire de séparation S_{11} diminue, mais de façon beaucoup moins sensible. A l'inverse, si l'on diminue le diamètre des grains 1 ($k_2 = 1 \rightarrow k_2 = 2$), on provoque une augmentation rapide de l'aire de séparation S_{11} tandis que l'aire de séparation S_{22} diminue de façon très peu sensible. Par contre, en ce qui concerne l'aire de séparation S_{12} , elle augmente systématiquement, que l'on diminue le diamètre des grains 1, ou celui des grains 2. Mais pour un facteur de diminution donné, on n'observe pas la même augmentation de l'aire S_{12} suivant que l'on diminue la taille des grains 1 ou la taille des grains 2 sauf pour $v_2 = 0,5$. On peut d'ailleurs énoncer le principe suivant :

Partant d'un mélange binaire de grains sphériques de même diamètre, l'augmentation théorique de l'aire de séparation S_{12} est plus grande si l'on diminue la taille de l'espèce la moins abondante en volume que si l'on diminue la taille de l'espèce la plus abondante en volume d'un même facteur.

Les comportements que nous avons décrits pour une diminution de taille d'un facteur 2 sont valables quel que soit le facteur de diminution. Les différences observées par rapport aux courbes correspondant à $k_2 = 1$ sont d'ailleurs d'autant plus importantes que le facteur de diminution est élevé. On observera des comportements analogues pour les aires de contact si l'on fait l'hypothèse que les aires élémentaires de contact varient avec k_2 comme les aires élémentaires de séparation à une distance d petite. En effet, les aires de séparation à une distance d petite sont égales, dans l'approximation que nous avons faite, au produit des nombres de contacts par les aires élémentaires de séparation (§ II. éq. (60)), alors que les aires de contact sont égales au produit des nombres de contacts par les aires élémentaires de contact. Nous donnerons, à la fin de ce paragraphe, une justification expérimentale de cette hypothèse.

L'optimisation de l'aire de contact (ou de l'aire de séparation) S_{12} , qui constitue l'objectif principal de ce travail, peut donc être menée en fixant la valeur de v_2 au maximum de la courbe de la figure 13c, pour une granulométrie fixée. La valeur de v_2 nous étant imposée par la stoechiométrie de la réaction solide-solide, nous ne pouvons utiliser cette approche. Par contre, nous pouvons faire varier la granulométrie des 2 espèces. D'après les remarques précédentes, plus on diminue la taille de l'une des espèces, plus on augmente l'aire de contact S_{12} . NiO ayant une fraction volumique plus faible que WO_3 , cette augmentation doit être plus prononcée lorsqu'on diminue la taille des grains de NiO que lorsqu'on diminue la taille des grains de WO_3 . Nous avons cherché à vérifier expérimentalement ces résultats théoriques, qui s'appliquent en toute rigueur à des empilements de sphères.

b. Etude expérimentale

α. Conditions de l'étude

Nous avons tamisé des grains de WO_3 et des grains de NiO pour obtenir 4 tranches granulométriques différentes (Table 9). On peut alors obtenir 4 facteurs de diminution différents k entre 1 et 3. Nous avons réalisé des mélanges, d'une part en fixant la granulométrie des grains de WO_3 dans la tranche 80 - 100 μm et en faisant varier la taille des grains de NiO

($k = k_1 = R_1/R_2$ variant de 1 à 3), d'autre part en fixant la granulométrie des grains de NiO dans la tranche 80 - 100 μm et en faisant varier la taille des grains de WO_3 ($k = k_2 = R_2/R_1$ variant de 1 à 3).

Nous avons effectué le mélangeage au Turbula à sec, selon le mode opératoire décrit au § 1. a. β . Nous avons agité pendant un temps de 10 mn. D'après l'étude faite au § 1. a. β ., le mélange est alors homogène à l'échelle d'un grain et les faibles inhomogénéités qui subsistent sont dues à une ségrégation à large échelle. Notons que ceci suppose que la cinétique d'homogénéisation est la même pour un mélange de grains de différents diamètres et pour un mélange de grains de mêmes diamètres, ce qui n'est pas évident. On supposera également que l'abrasion des grains peut être négligée après 10 mn de mélangeage. Après le mélangeage, nous avons soumis l'empilement à une vibration de faible amplitude pendant 10 mn, afin de détruire les voûtes présentes.

Tranches granulométriques (μm)	80 - 100	50 - 63	40 - 50	20 - 40
Diamètre moyen dans la tranche (μm)	90	56,5	45	30
Facteur de diminution k (k1 ou k2)	1	1,6	2	3

Table 9 :

Tranches granulométriques utilisées et facteurs de diminution correspondants.

$k_1 \backslash N$	2	3	4	6	8	12	16	24
1					⊗			
1,6	⊗	⊗	⊗			⊗		
2								
3		⊗			⊗	⊗	⊗	⊗

$k_2 \backslash N$	2	3	4	6	8	12	16	24
1					⊗			
1,6								
2								
3								

Table 10 :

Représentation pour différents facteurs de diminution k_1 et k_2 , et à différentes échelles des distributions N_c (N_2) rejetées avec un facteur de confiance de 95 %

X distribution rejetée par le test sur la variance

(O indique que la distribution a une variance supérieure à la variance théorique).

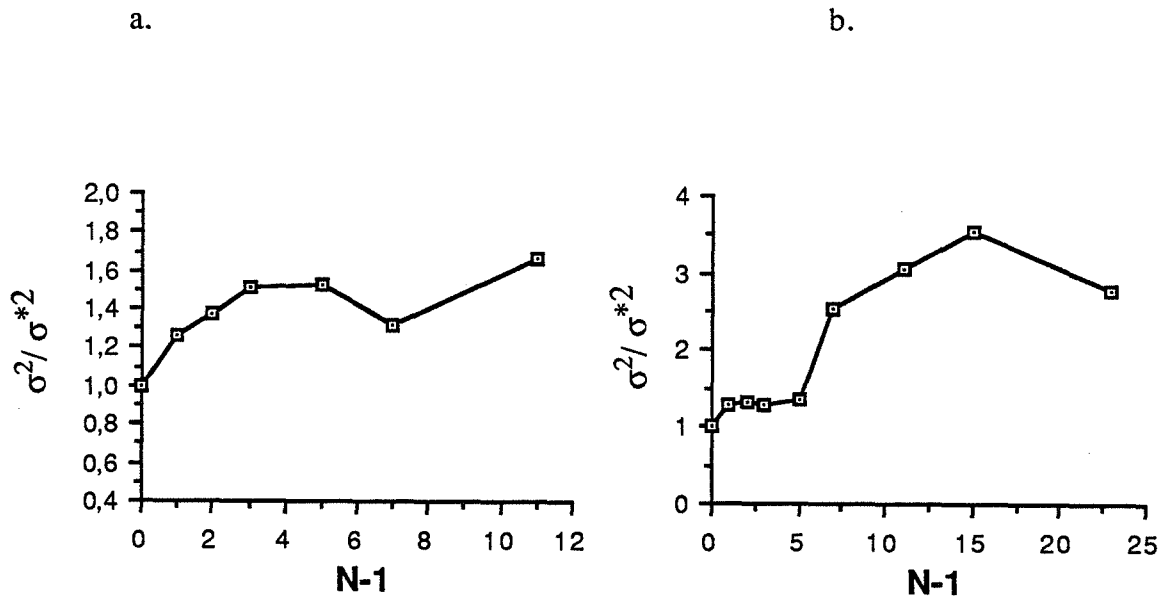


Figure 14 :

Variation de $R_M = \sigma^2(n_2)/\sigma^2(n_1)$ avec $N - 1$ pour $k_1 = 1,6$ (a) et $k_1 = 3$ (b).

L'analyse d'images est faite avec le MORPHOPERICOLOR. Le grossissement du microscope (x 200) est identique pour toutes les sections analysées. Avec ce grossissement, le nombre de grains par image est faible pour le mélange de grains de mêmes diamètres. Il augmente quand le facteur de diminution k augmente. Par conséquent, l'analyse de l'homogénéité sera moins précise pour les faibles valeurs de k . En revanche, la mesure de la compacité, des aires de contact et des caractéristiques granulométriques sera plus précise. On peut considérer qu'elles présentent un biais pour $k \geq 2$ (le paramètre de résolution k_R est alors inférieur à 50).

β. Résultats

Analyse de l'homogénéité :

Compte tenu des remarques faites plus haut, nous nous contenterons d'analyser les distributions $N_c(N_2)$ à l'aide d'un test sur la variance, afin de déceler les mélanges qui sont inhomogènes de façon significative (Table 10). Le résultat est tout à fait surprenant : les mélanges obtenus par diminution de la taille des grains de WO_3 ne présentent pas d'inhomogénéités significatives. En revanche, ceux obtenus par diminution de la taille des grains de NiO présentent une tendance à la ségrégation à large échelle très marquée, particulièrement les mélanges pour $k_1 = 1,6$ et $k_1 = 3$. Les courbes de variation $R_M(N - 1)$ de ces mélanges ont d'ailleurs une allure globale croissante (Figure 14). On peut donner un ordre de grandeur de l'intensité de ségrégation de ces mélanges : on trouve $I \approx 16,4 \%$ pour $k_1 = 1,6$ et $I = 18,0 \%$ pour $k_1 = 3$, soit des valeurs nettement plus importantes que celles observées dans les mélanges de grains de même taille réalisés dans les mêmes conditions (§ 1. a. β.). Il semble donc que l'augmentation de la teneur numérique en grains de NiO freine considérablement l'homogénéisation. Ces grains sont probablement moins mobiles et diffusent moins bien dans le mélange. L'augmentation de la teneur numérique en grains de WO_3 facilite au contraire l'homogénéisation.

Analyse granulométrique :

Nous avons analysé la distribution des intercepts pour les grains de WO_3 et pour les grains de NiO , pour chaque valeur du facteur de diminution. La table 11 donne les diamètres moyens estimés à partir de \bar{L}_1 (§ IV. éq. (40)). Les valeurs obtenues sont peu différentes des moyennes calculées des tranches de tamisage (Table 9). Elles sont en général légèrement inférieures. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'éq. (40) du § IV. n'est valable que pour des sphères. Pour nos grains non convexes, la proportion de petits intercepts est importante, ce qui conduit probablement à une estimation de \bar{D} un peu trop faible.

WO3	k1	1	1,6	2	3
	\bar{D} (μm)	84 \pm 2	86 \pm 2	89 \pm 3	84 \pm 2
NiO	k1	1	1,6	2	3
	\bar{D} (μm)	84 \pm 4	51 \pm 1	45 \pm 1	29 \pm 1
WO3	k2	1	1,6	2	3
	\bar{D} (μm)	84 \pm 2	54 \pm 1	43,9 \pm 0,2	28,2 \pm 0,2
NiO	k2	1	1,6	2	3
	\bar{D} (μm)	84 \pm 4	80 \pm 3	77 \pm 5	76 \pm 4

Table 11 :
Diamètres moyens \bar{D} estimés à partir de l'intercept moyen \bar{L}_1 .

Analyse de la compacité et de la fraction volumique v_2 :

La table 12 présente l'évolution de C avec k_1 et k_2 . Il semble qu'il y ait une légère diminution de C avec k_1 et k_2 . Selon nous, cette diminution n'est pas significative car nous avons vu que la moins bonne résolution de nos images pour les valeurs du facteur de diminution supérieures ou égales à 2 entraînait probablement une sous-évaluation de la compacité.

Quand k_2 passe de 1 à 3, le modèle de Ben Aïm prévoit une augmentation de compacité de 4 % (§ II. éq. (39)). Une variation aussi faible n'est probablement pas décelable, compte tenu des remarques que nous venons de faire. En revanche, quand k_1 passe de 1 à 3, le même

modèle prévoit une augmentation de compacité de 25 % ! Une telle variation serait normalement décelable, malgré les problèmes de résolution. Il faut donc conclure que l'augmentation de compacité (si elle existe) lorsqu'on diminue la taille des grains de NiO est largement inférieure à celle observée dans les mélanges de sphères. Ce résultat est à rapprocher des analyses d'Oger qui n'observe quasiment pas d'augmentation de compacité dans des mélanges de sables-graviers tant que le rapport de taille est inférieur à 5 (§ II. Figure 19). Oger explique ceci par le fait que les petits grains peuvent rester coincés entre deux gros grains, entraînant localement une diminution de la compacité qui compense l'augmentation produite par les mécanismes d'insertion et de substitution (§ II. C. 1. b.).

kl	1	1,6	2	3
C (k1)	0,60 ± 0,01	0,60 ± 0,01	0,589 ± 0,006	0,593 ± 0,006
C (k2)	0,60 ± 0,01	0,59 ± 0,01	0,576 ± 0,005	0,580 ± 0,008

Table 12 :

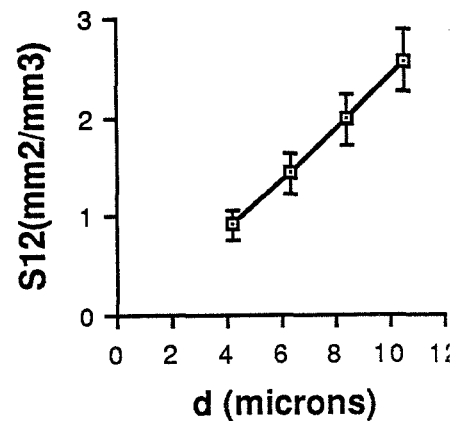
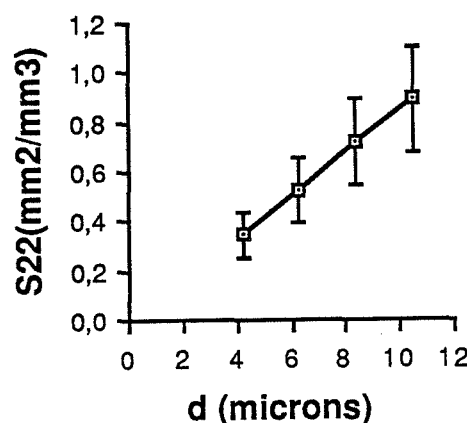
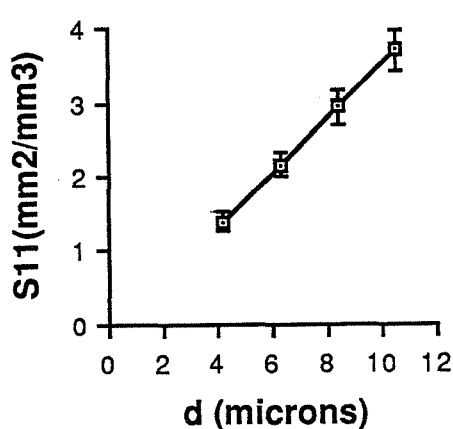
Variation de la compacité avec k_1 et k_2 .

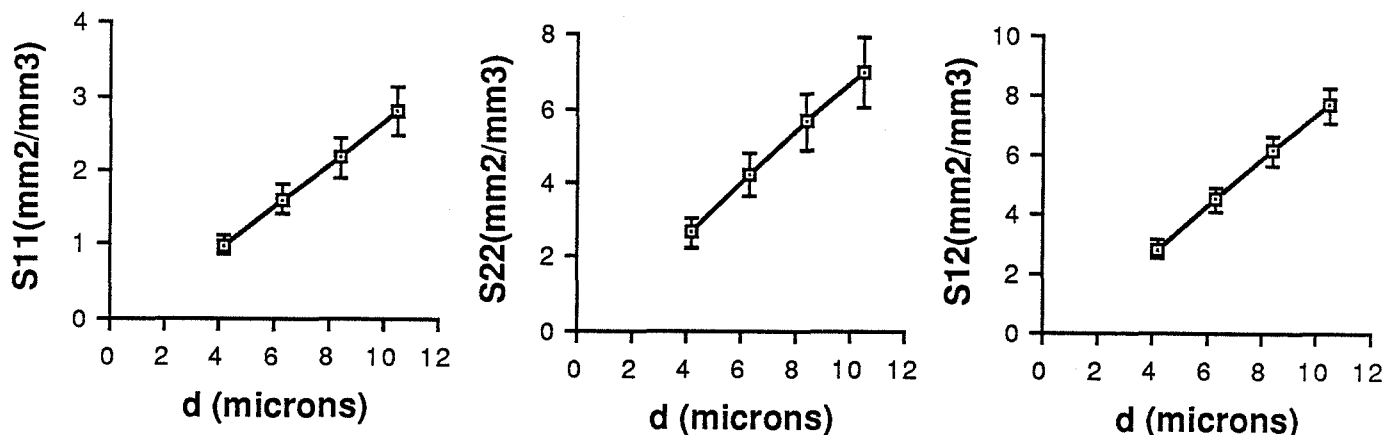
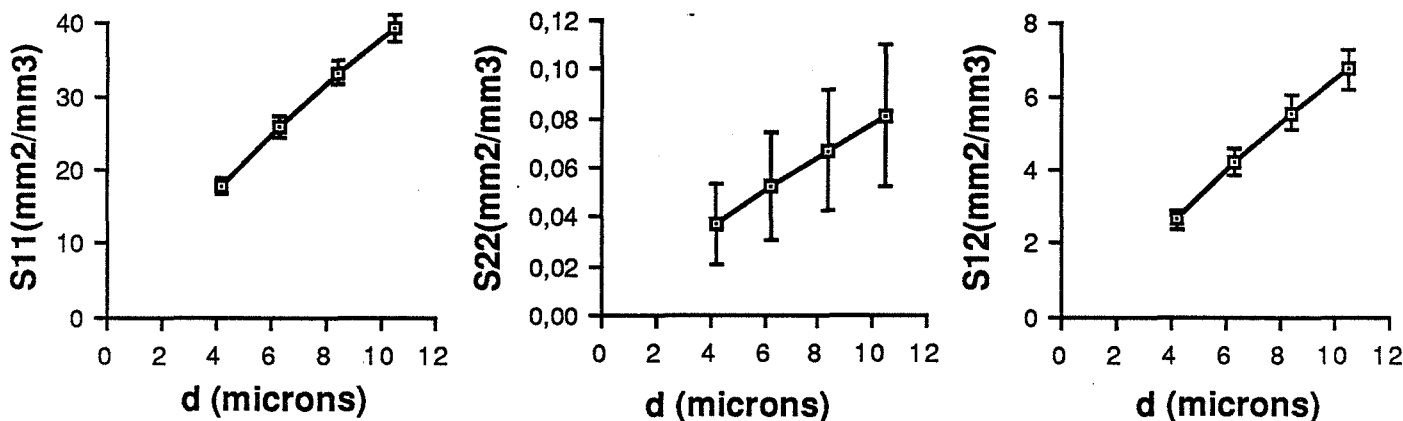
La fraction volumique v_2 ne présente pas de variation significative. On trouve une valeur moyenne : $v_2 = 0,270 \pm 0,008$.

Analyse des aires de séparation et des nombres de contacts :

Les courbes de variation des aires de séparation $S_{ij}(d)$, pour les faibles valeurs de d peuvent être assimilées à des droites passant par l'origine pour tous les facteurs de diminution étudiés (Figure 15).

$$k_1 = k_2 = 1 :$$



$k_1 = 3 :$

 $k_2 = 3 :$

Figure 15 :

 Variation des aires de séparation S_{ij} (d) pour différents facteurs de diminution.

Ce résultat est analogue à celui que nous avons observé dans l'empilement de grains d'une seule espèce (IV. A. 5. b.) et correspond au comportement prévu par la théorie pour les faibles valeurs de d (§ II. eq. (60), Annexe 2 eq. (7)).

D'après le modèle que nous avons présenté au § II. C. 4., ces aires sont le produit des nombres de contacts par les aires de séparation élémentaires que l'on peut calculer (Annexe 2). On peut alors évaluer les nombres de contacts. Les estimations faites à partir des 4 points de chacune des droites S_{ij} (d) conduisent bien sensiblement au même résultat, pour tous les facteurs de diminution étudiés. Tout au plus, observe-t-on une légère diminution avec d des estimations de N_{11} quand $k_2 \geq 2$, qui s'explique par le fait que la limite de validité du modèle décroît avec la taille des particules (nous avons vu au § IV. A. 5. b. que les aires de séparation mesurées étaient inférieures à celles prédites par le modèle pour $d \geq \overline{D}/4$, ce qui correspond à $d \geq 11 \mu\text{m}$ pour S_{11} quand $k_2 = 2$).

On admettra donc que notre modèle fournit une estimation correcte des nombres de contacts. Il est intéressant de comparer ces résultats à ceux obtenus à partir des modèles théoriques du § II. (éq. (59)). La figure 16 montre le résultat obtenu, en utilisant le modèle de Suzuki et Oshima pour les fractions de contacts, les valeurs mesurées pour la compacité et les valeurs moyennes dans la tranche pour les diamètres des grains. On voit que le modèle de Suzuki décrit bien l'allure de la variation des nombres de contacts dans nos empilements de grains avec le facteur de diminution. Les seuls écarts significatifs que nous observons correspondent à une diminution des nombres de contacts avec les grains 2 (N_{22} et N_{12}) quand k_1 augmente. Il faut d'ailleurs noter que cette diminution ne se fait pas au dépens du nombre de contacts 1-1. Elle correspond à une diminution du nombre total de contacts (ou, ce qui revient au même, de la coordinance moyenne) par rapport à la valeur théorique. Ceci peut s'interpréter si l'on considère que les forces de liaisons avec les grains de NiO sont plus fortes qu'avec les grains de WO_3 , de sorte que les voûtes dans l'empilement sont plus stables quand le nombre de grains de NiO augmente (donc quand k_1 augmente). Cette interprétation est cohérente avec l'hypothèse que nous avons faite de la moins bonne mobilité de ces grains, lors de l'analyse de l'homogénéité.

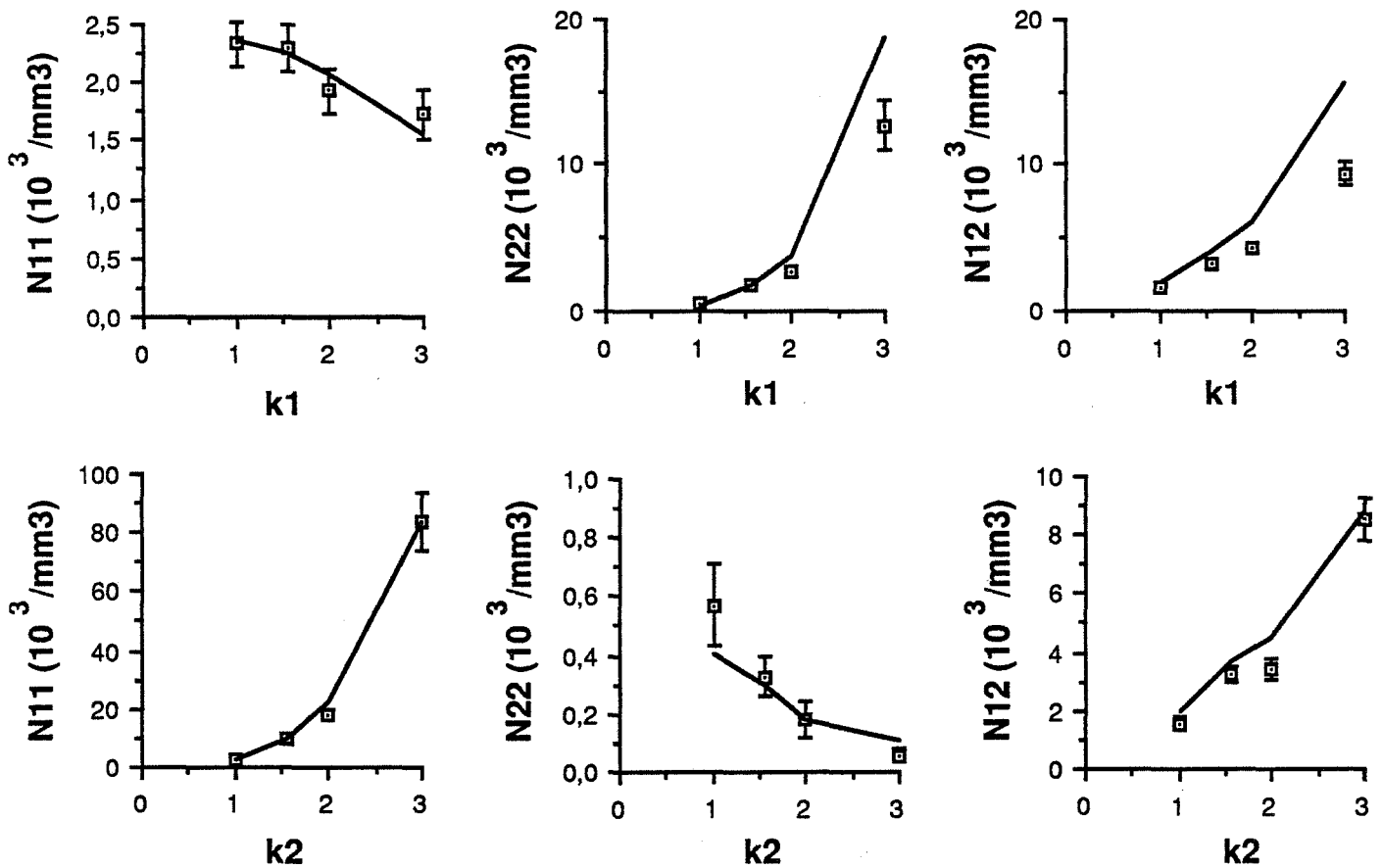


Figure 16 :

Variation des nombres de contacts N_{ij} avec k_1 et k_2 (□ exp., — modèle de Suzuki).

On peut rendre compte de cette diminution des nombres de contacts par un calcul simple, qui suppose que N_{22} et N_{12} décroissent linéairement avec n_2 :

$$N_{22} = N_{22}^* (1 - f n_2) \quad (2)$$

$$N_{12} = N_{12}^* (1 - f n_2) \quad (3)$$

L'exposant * indiquant que la valeur est celle du modèle de Suzuki, f étant un coefficient ajustable. En minimisant la somme des carrés des écarts entre les nombres de contacts mesurés et ceux calculés par les équations (2) et (3) (N_{11} étant calculé simplement par le modèle de Suzuki), on trouve une valeur de $f = 0,39$ et la concordance entre résultats mesurés et résultats théoriques est alors bonne (Figure 17).

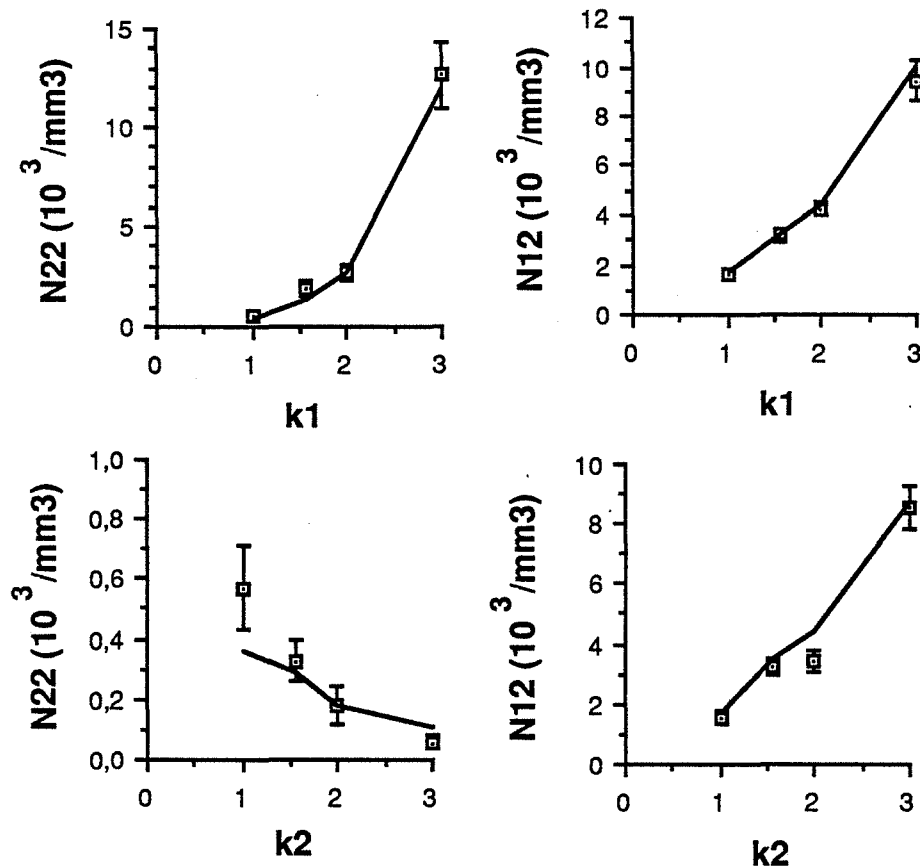


Figure 17 :

Variation des nombres de contacts N_{ij} avec k_1 et k_2 (\square exp., — éq. (2) et (3)).

Notons que le modèle simple que nous proposons ici n'a probablement pas un caractère général. Il ne faut pas oublier que nous travaillons à fraction volumique v_2 constante et les équations (2) et (3) ne seraient probablement plus vérifiées si, en plus du rapport de taille, on faisait varier v_2 . En effet, on obtiendrait alors pour l'empilement de grains de NiO seuls, une coordinance moyenne théorique égale à 3,7 ce qui est anormalement faible.

En fait, le point important est probablement le changement de comportement qui se produit quand on passe d'un empilement où les grains de NiO sont relativement dispersés à un empilement où ces grains forment un réseau continu de contacts d'un bord à l'autre de l'empilement (seuil de percolation) et commencent alors à imposer leurs caractéristiques propres d'empilement au mélange. Ropital (1984) a mesuré le seuil de percolation volumique en NiO de mélanges de grains de WO_3 et de NiO et trouve une valeur voisine de 0,26 pour des grains de même taille. Les mélanges que nous analysons correspondent donc à un domaine de variation très sensible des caractéristiques de l'empilement. Par ailleurs, Oger (1987) a étudié la variation du seuil de percolation volumique s_{v2} avec le rapport de taille $k_2 = R_2/R_1$ pour des mélanges binaires de sphères (Figure 18) et le résultat qu'il obtient montre une partie fortement croissante pour k_2 variant de 0,22 à 2. Le rapprochement des mesures de Ropital et des analyses d'Oger nous conduit à penser que notre système correspond à une fraction volumique v_2 inférieure au seuil de percolation volumique de NiO pour $k_2 \geq 1$ et supérieure au seuil de percolation volumique de NiO pour $k_1 \geq 1$ ($k_2 \leq 1$). Ceci expliquerait les différences de comportement observées pour les mélanges où $k_2 \geq 1$ et les mélanges où $k_2 \leq 1$, en ce qui concerne l'homogénéité, la compacité et les aires de séparation (ou nombres de contacts).

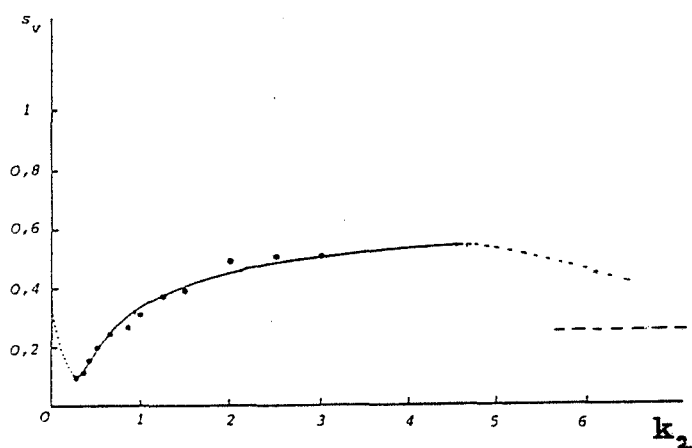


Figure 18 :
Variation du seuil de percolation s_{v2}
avec k_2
(D'après Oger 1987).

Analyse des aires de contact :

A partir des nombres de contacts que nous venons d'évaluer et des aires totales de contact (estimées à partir des aires de séparation à 2 pixels = 2,1 μm), nous pouvons calculer les aires élémentaires moyennes de contact s_{ij} ($d = 0$). En effet, on a la relation :

$$S_{ij}(d = 0) = N_{ij} s_{ij}(d = 0)$$

On représente ces aires par le diamètre ρ_{ij} du disque de même aire. Pour des sphères, pour une valeur petite de d fixée, l'aire élémentaire de séparation $s_{11}(d)$ varie linéairement avec \overline{D}_1 (Annexe 2, éq. (6)), donc avec $1/k_2$ quand k_2 augmente. De même l'aire $s_{22}(d)$ varie linéairement avec $1/k_1$. On peut montrer aussi (Annexe 2, éq. (7)) que l'aire de séparation $s_{12}(d)$, pour une valeur petite de d fixée, varie linéairement avec $1/1+k_2$ quand k_2 augmente et avec $1/1+k_1$ quand k_1 augmente. Nous avons cherché à savoir si un tel résultat pouvait s'appliquer aux aires moyennes de contact entre nos grains. La figure 19 représente l'évolution du diamètre moyen de contact ρ_{11} avec $\sqrt{1/k_2}$ quand k_2 augmente, du diamètre moyen ρ_{22} avec $\sqrt{1/k_1}$ quand k_1 augmente et du diamètre moyen ρ_{12} avec $1/\sqrt{1+k_i}$ quand k_i augmente ($i = 1$ ou 2). On observe un comportement linéaire pour les diamètres moyens de contact 11 et 22. ρ_{11} est de l'ordre de 0,23 fois le diamètre moyen des grains 1 et ρ_{22} de l'ordre de 0,31 fois le diamètre moyen des grains 2, indiquant probablement que ces grains ont une forme davantage polyédrique (contacts face-face plus importants). Le comportement des diamètres moyens de contact ρ_{12} est un peu moins net et nécessiterait un intervalle d'étude plus large. On admettra cependant qu'on peut, en première approximation, utiliser une variation linéaire en fonction de $1/\sqrt{1+k_i}$.

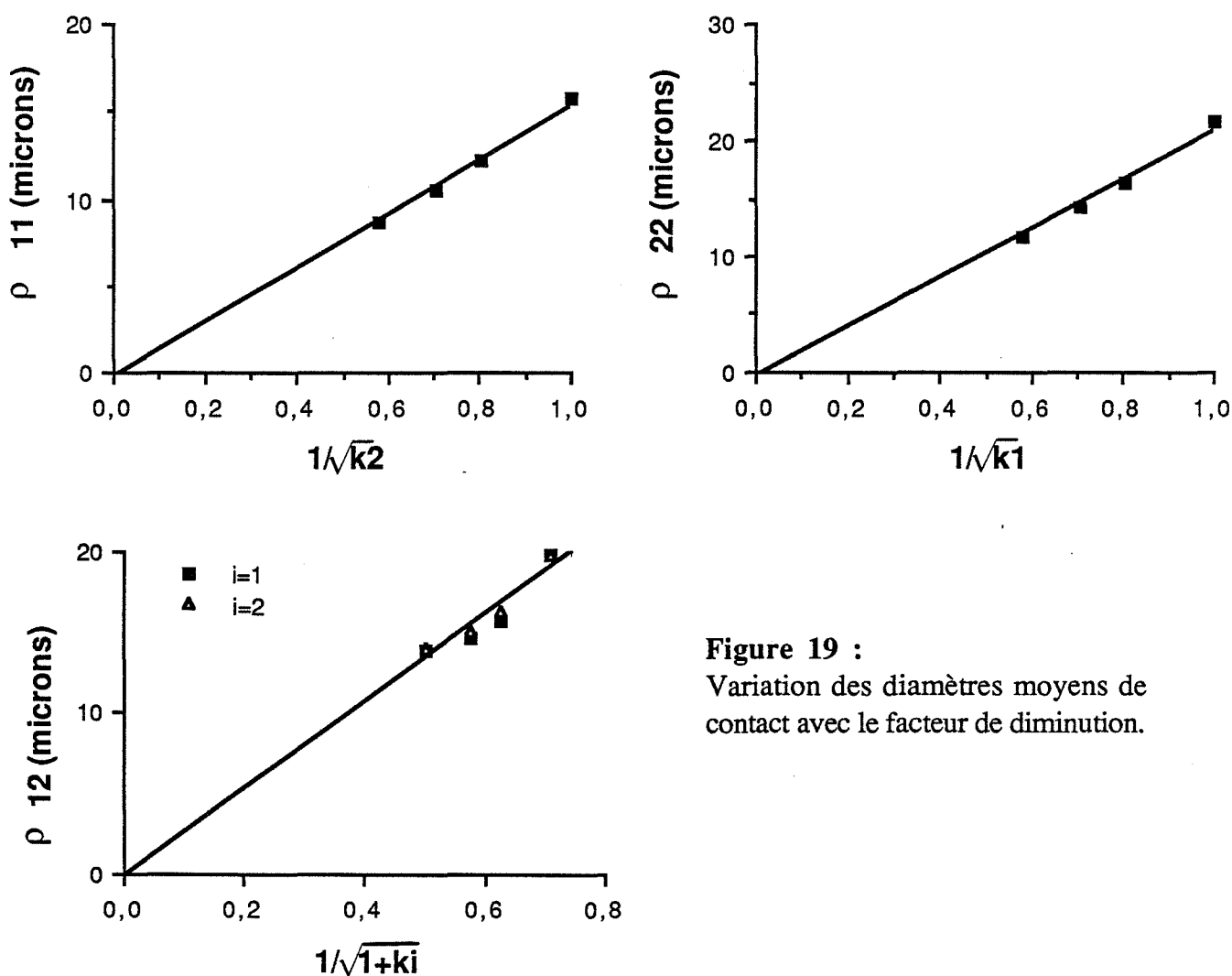


Figure 19 :
Variation des diamètres moyens de contact avec le facteur de diminution.

Ce résultat est très important. Il signifie pratiquement qu'en première approximation, les aires de séparation à une distance d fixée, petite devant les diamètres des grains, sont égales, à une constante multiplicative près, aux aires de contact. La constante ne dépend pas de la taille des grains mais uniquement de leur forme (la variation de ρ_{11} avec $1/\sqrt{k_2}$ n'est pas la même que la variation de ρ_{22} avec $1/\sqrt{k_1}$). Le modèle que nous avons développé au § II. pour décrire les aires de séparation à une distance d permet donc de prévoir, à une constante près, les valeurs des aires de contact dans un mélange binaire de grains de granulométrie connue. La constante dépendra de la morphologie des grains utilisés mais pas de leur taille. Elle pourra être déterminée par une étude en analyse d'images.

c. Conclusion de l'étude des mélanges binaires

Les différentes méthodes d'analyse que nous avons utilisées nous permettent de donner une description cohérente des mélanges binaires de grains de WO_3 et de NiO . On observe, comme le prévoient les modèles théoriques, une augmentation de l'aire de séparation S_{12} plus grande quand on diminue la taille de l'espèce la moins abondante en volume (NiO) que lorsqu'on diminue la taille de l'autre espèce (WO_3). L'écart observé est cependant sensiblement inférieur à l'écart théorique. D'une manière générale, lorsqu'on diminue la taille des grains de NiO , on observe une compacité et des aires de séparation (ou nombres de contacts) avec les grains 2 sensiblement inférieurs aux valeurs théoriques données pour des empilements de sphères, ainsi qu'une homogénéisation plus difficile. Ces résultats sont probablement dus à des forces de frottements plus importantes avec ces grains, du fait d'une rugosité de surface plus grande, ou d'une forme polyédrique plus marquée de ces grains (aires élémentaires de contact plus grandes). Notons que la confirmation d'une telle hypothèse nécessiterait une étude de la variation des caractéristiques du mélange avec la composition volumique v_2 . Il se pourrait en effet que les mélanges de grains polyédriques se comportent différemment des mélanges de sphères quand les gros grains sont en excès, indépendamment de leur morphologie.

Enfin, l'étude nous a permis de contrôler la validité du modèle théorique proposé aux § I et II pour décrire les aires de séparation par zones d'influence. Nous pouvons alors, à l'aide de ce modèle, donner une valeur approximative des nombres de contacts par unité de volume dans un mélange binaire de grains de granulométrie connue. Ceci est important car il n'existe pas d'estimation stéréologique de ce nombre. Tout au plus peut-on estimer le nombre de contacts par unité de volume dans un empilement de sphères de même taille (Pomeau et Serra 1985, Gardner 1985).

CONCLUSION

Nous avons mis au point une méthode d'étude originale des caractéristiques d'un empilement de grains, fondée sur l'analyse d'images de sections de l'empilement enrobé dans une résine.

Ceci nous a permis, par des opérations classiques d'analyse d'images, d'accéder à des paramètres importants de l'empilement (compacité, aires de contact, taille des grains, fractions volumiques). De plus, nous avons développé deux protocoles d'analyse plus spécifiques. Le premier permet de définir complètement l'état d'homogénéité d'un mélange de deux espèces granulaires, en évaluant à la fois l'intensité et l'échelle de ségrégation dans le mélange. Le second fait une analyse approfondie des contacts entre grains à partir de la mesure des aires de séparation $S_{ij}(d)$ à une distance d entre grains. Ces aires permettent d'obtenir les aires de contact pour $d=0$. Mais leur intérêt majeur est de rendre possible une estimation des nombres de contacts et, par suite, des aires élémentaires de contact, à condition de connaître la taille des grains de chaque espèce. Par ailleurs, dans le cas particulier de mélanges de grains de WO_3 et de NiO , nous avons pu constater expérimentalement que les aires $S_{ij}(d)$, pour une distance d fixée, étaient simplement proportionnelles aux aires de contact. Si l'on admet que ce résultat a un caractère général, il a deux conséquences importantes:

- on peut obtenir expérimentalement les aires de contact, à une constante multiplicative près, à partir des aires de séparation à une distance $d > 0$. Ceci est important car la mesure des aires de séparation quand $d \rightarrow 0$ est délicate et nécessite des images d'une excellente résolution.
- on peut donner une expression théorique des aires de contact, à une constante multiplicative près, à partir des aires de séparation. Ceci est important car il n'existe pas de modèles capables de prévoir la valeur des aires de contact dans un mélange de grains non sphériques. Par contre, nous avons proposé un modèle permettant de calculer les aires de séparation à une distance d , à partir des paramètres descriptifs du système granulaire.

A l'aide de ces méthodes, nous avons pu mener différentes analyses des caractéristiques des milieux granulaires.

Tout d'abord, dans le cas d'un empilement d'une seule espèce de grains (WO_3), nous avons étudié l'influence du mode de construction de l'empilement sur ses caractéristiques. Nous avons montré que la compacité et la coordinance moyenne de l'empilement construit collectivement (par agitation dans un mélangeur) étaient plus faibles que pour les autres modes de construction étudiés. L'influence d'effets collectifs du mode de construction sur les caractéristiques d'un empilement a par ailleurs pu être démontrée par une simulation numérique à 2 D (§ III.).

Nous avons également étudié l'influence des conditions de mélangeage sur les caractéristiques d'un mélange de grains de WO_3 et de NiO de granulométrie voisine. Le protocole d'analyse que nous avons mis au point nous a permis de mener une analyse

microscopique de l'homogénéité. Nous avons ainsi pu justifier expérimentalement l'importance des deux mécanismes invoqués dans la littérature pour décrire théoriquement le mélangeage par agitation, à savoir la "convection" de paquets de particules à l'intérieur du mélangeur et la "diffusion" de particules individuelles dans le mélange. Le mélangeage classique par agitation à sec au Turbula s'avère peu efficace pour notre système. Les mouvements de convection de paquets de particules sont probablement trop réguliers avec ce type de mélangeur. L'utilisation d'un mouvement de mélangeage moins régulier d'une part, l'ajout d'un dispersant liquide (alcool) d'autre part, nous ont permis d'obtenir des mélanges plus homogènes. Dans tous les cas, la convection est plus rapide que la diffusion et on peut considérer que très vite, la vitesse d'homogénéisation est contrôlée par la diffusion. On observe également une tendance à la démixtion caractérisée par une ségrégation à large échelle pour les temps de mélangeage importants. Ces résultats sont conformes aux hypothèses faites dans la littérature pour décrire le mélangeage par agitation.

Enfin, nous avons analysé des mélanges binaires de grains de WO_3 et de NiO pour différents rapports de taille. L'allure de la variation des aires de séparation avec le rapport de taille est comparable à celle prévue par les modèles théoriques. On observe cependant une valeur plus faible des nombres de contacts (ou des aires de séparation) avec les grains de NiO quand la teneur numérique de ces grains augmente. Cette diminution peut s'interpréter par l'intervention de forces de frottements plus importantes avec ces grains, du fait d'une rugosité de surface plus grande et d'une forme polyédrique plus prononcée.

De plus, ce travail a montré tout l'intérêt que représente l'analyse d'images dans l'étude des milieux granulaires. Cette technique permet en effet d'évaluer sur un même échantillon toute une série de caractéristiques différentes. Nous avons montré, dans la partie expérimentale, combien la connaissance de toutes ces caractéristiques était nécessaire pour pouvoir proposer une interprétation fiable des phénomènes observés.

ANNEXE 1

PARTITION D'UN EMPILEMENT

On appelle partition tout découpage de l'espace en éléments de volume disjoints dont la réunion forme l'espace tout entier. On peut réaliser la partition d'un empilement de grains à l'aide de critères géométriques bien définis. Nous allons présenter quelques partitions couramment utilisées dans l'étude des empilements de grains.

a- Polyèdres de coordinance

Ce sont les polyèdres que l'on obtient en joignant par des segments de droite les centres de tous les grains en contact (figure 1).

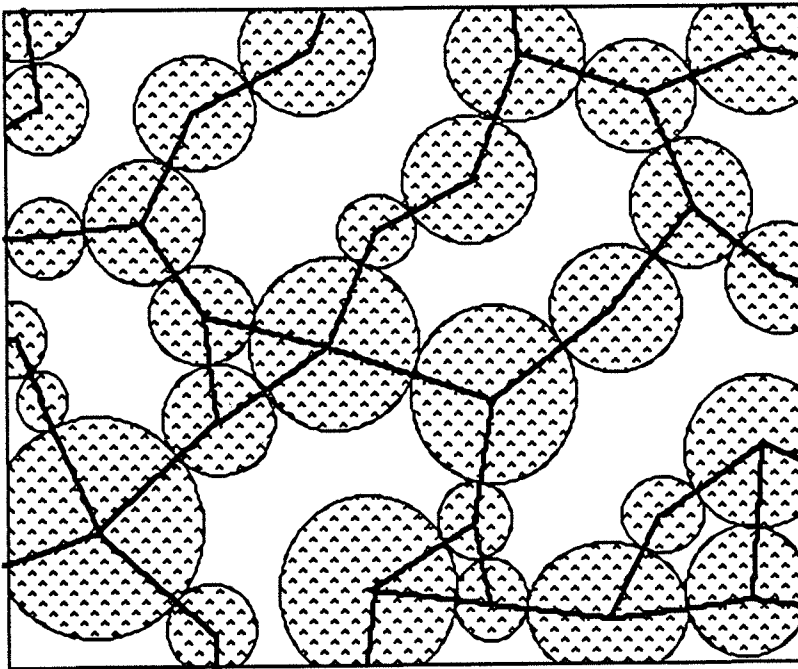


Figure 1 :

Représentation à 2 D de la partition par les polyèdres de coordinance.

b- Partition par zones d'influence

On appelle zone d'influence d'un grain le domaine de l'espace dont les points sont plus proches du bord du grain considéré que des bords de tous les autres grains de l'empilement. L'ensemble des zones d'influence des grains constitue une partition de l'empilement (figure 2). Cette partition peut être appliquée avec des grains de forme quelconque, et présentant éventuellement une distribution de taille. Les surfaces de séparation des domaines ne coupent jamais les grains.

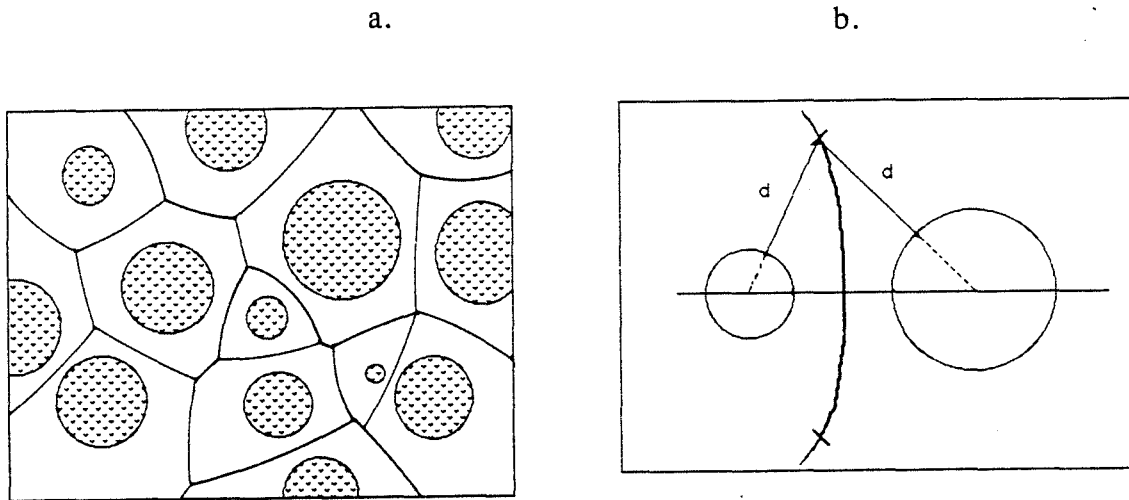


Figure 2 :

Représentation à 2 D de la partition par zones d'influence

a) Pour un empilement

b) Pour 2 disques isolés

c- Partition de Voronoï (Voronoi 1908)

Dans cette partition, on définit autour de chaque grain un domaine dont les points sont plus proches du centre du grain considéré que du centre de tout autre grain. En pratique, cette partition n'est utilisée que dans le cas de sphères de même taille. Les domaines sont alors des polyèdres dont les faces sont les plans bissecteurs des droites joignant les centres des sphères (figure 3). Dans ce cas seulement, la partition de Voronoï est identique à la partition par zones d'influence. Pour des sphères de tailles différentes, les plans de Voronoï peuvent intersecter les sphères (figure 3a), ce qui limite l'intérêt de cette construction.

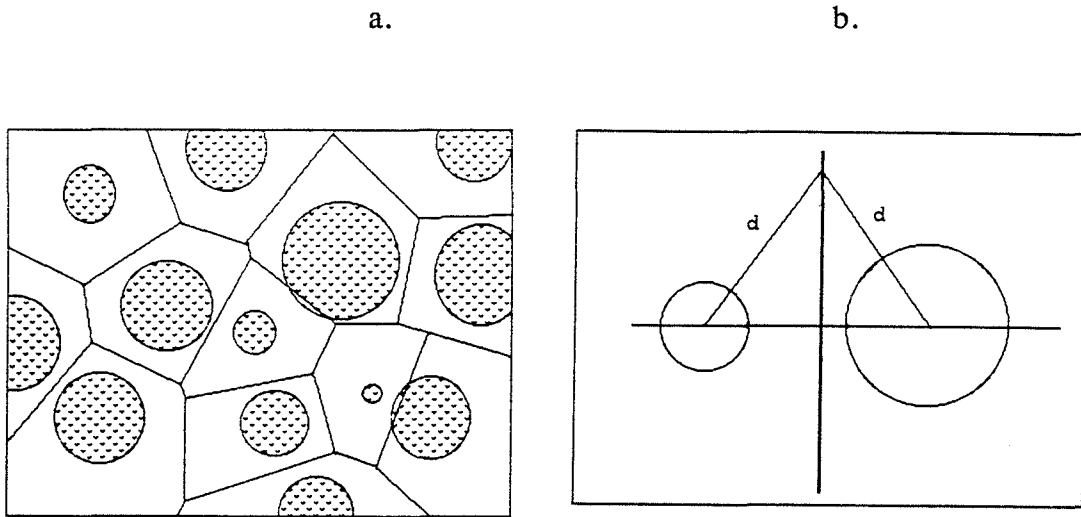


Figure 3 :

Représentation à 2 D de la partition de Voronoï

a) Pour un empilement

b) Pour 2 disques isolés

d- Plans radicaux (Gellatly, Finney 1982)

Cette partition est utilisable pour un empilement de sphères de différentes tailles. On définit autour de chaque sphère un domaine constitué des points tels que la longueur de tangence à la sphère considérée est plus petite que la longueur de tangence à toute autre sphère (figure 4). On obtient alors un ensemble de polyèdres réalisant une partition de l'espace. Cette partition n'est pas, en général, équivalente à la partition par zones d'influence. En effet, celle-ci, dans le cas de sphères de taille différente, est formée d'éléments de volume qui ne sont pas des polyèdres (leur surface externe est courbe (figure 2b)).

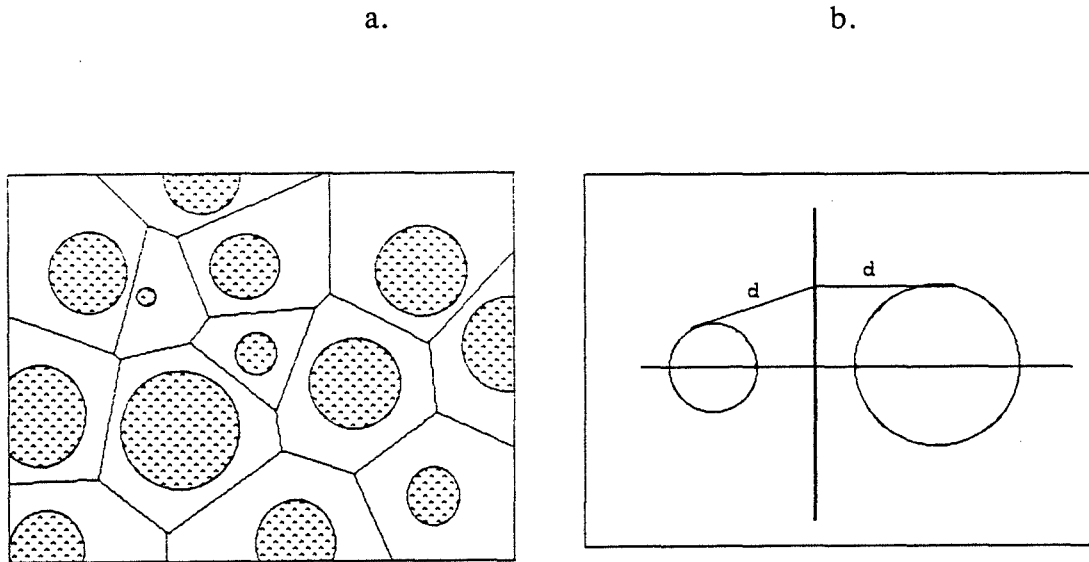


Figure 4 :

Représentation à 2 D de la partition par les plans radicaux.

- a) Pour un empilement
- b) Pour 2 disques isolés

Quand les sphères ont la même taille, la partition par les plans radicaux est équivalente à la partition de Voronoï et à celle par zones d'influence.

e- Graphe de Delaunay (Delaunay 1961)

Il est utilisé dans le cas d'empilements de sphères. C'est la partition duale de celle des plans radicaux. On l'obtient en traçant les bissectrices des plans radicaux (figure 4). Il relie en fait les sphères "voisines" relativement à la partition par les plans radicaux. Il a la propriété remarquable d'être constitué exclusivement de tétraèdres.

ANNEXE 2

**CALCUL DE L'AIRE ELEMENTAIRE DE SEPARATION
PAR ZONES D'INFLUENCE A UNE DISTANCE d POUR DEUX
SPHERES DE RAYONS R_1 ET R_2 EN CONTACT**

On note $s_{12}(o, d)$ l'aire de la surface élémentaire de séparation par zones d'influence à une distance d pour deux sphères 1 et 2 de rayons R_1 et R_2 en contact (distance entre les surfaces externes $\delta = 0$). On notera simplement $s(o, d)$ cette aire dans le cas de deux sphères de même taille.

Soit σ l'arc paramétré sur la courbe plane obtenue par section de la surface de séparation par zones d'influence dans le plan des centres des sphères (figure 1). Avec les notations de la figure, l'aire $s_{12}(o, d)$ s'exprime comme l'intégrale curviligne :

$$s_{12}(o, d) = 2 \Pi \int_{\Pi} \zeta d\sigma \quad (1)$$

ζ et $d\sigma$ peuvent s'exprimer comme fonction de la distance de séparation d :

$$\zeta = \frac{\sqrt{R_1 R_2}}{R_1 + R_2} \sqrt{d^2 + 2(R_1 + R_2)d} \quad (2)$$

$$d\sigma = \frac{dd}{2} \sqrt{\frac{d^2 + 2(R_1 + R_2)d + 4R_1 R_2}{d^2 + 2(R_1 + R_2)d}} \quad (3)$$

En reportant (2) et (3) dans l'intégrale (1) :

$$s_{12}(o, d) = \frac{\Pi \sqrt{R_1 R_2}}{R_1 + R_2} \int_0^d \sqrt{d^2 + 2(R_1 + R_2)d + 4R_1 R_2} dd \quad (4)$$

Posons :

$$t = 1 + \frac{d}{R_1 + R_2} \quad \text{et} \quad a = \frac{R_1 - R_2}{R_1 + R_2}$$

$$s_{12}(0, d) = \Pi (R_1 + R_2) \sqrt{R_1 R_2} \int_1^{1 + \frac{d}{R_1 + R_2}} \sqrt{t^2 - a^2} dt$$

$\sqrt{t^2 - a^2}$ a pour primitive :

$$\int \sqrt{t^2 - a^2} = \left[t \sqrt{t^2 - a^2} - a^2 \log(t + \sqrt{t^2 - a^2}) \right]$$

D'où finalement :

$$s_{12}(0, d) = \frac{4\Pi\sqrt{R_1 R_2}}{R_1 + R_2} \left[\frac{d + R_1 + R_2}{4} \sqrt{\left(R_1 + \frac{d}{2}\right) \left(R_2 + \frac{d}{2}\right)} - \frac{(R_1 + R_2) \sqrt{R_1 R_2}}{4} - \frac{1}{8} (R_1 - R_2)^2 \log \frac{d + R_1 + R_2 + 2 \sqrt{\left(R_1 + \frac{d}{2}\right) \left(R_2 + \frac{d}{2}\right)}}{(R_1 + R_2) + 2 \sqrt{R_1 R_2}} \right] \quad (5)$$

Dans le cas de sphères de même rayon R, la relation (5) se simplifie en :

$$s(0, d) = \frac{\Pi R^2}{4} \left[4 \frac{d}{R} + \left(\frac{d}{R}\right)^2 \right] \quad (6)$$

Dans le cas général, on peut obtenir un développement limité au premier ordre en $d/(R_1 + R_2)$:

$$s_{12}(0, d) = 2 \Pi \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2} d \quad (7)$$

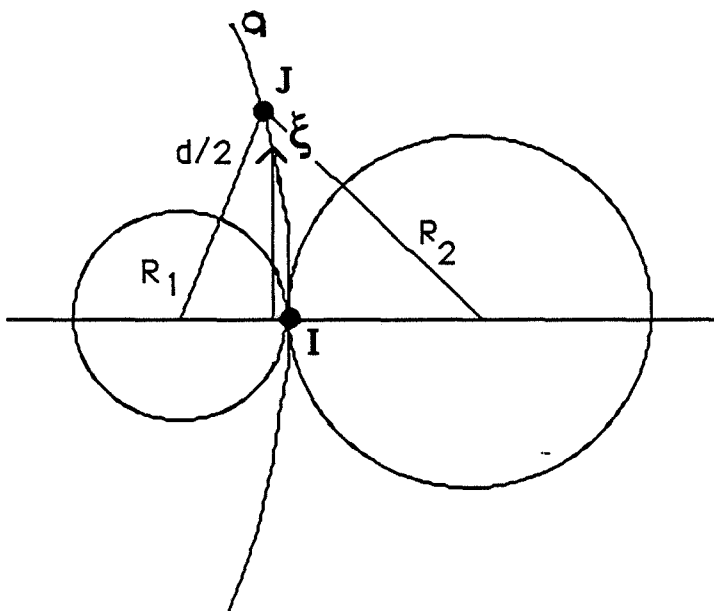


Figure 1 :
Section de la surface de séparation par zones d'influence de 2 sphères en contact.

ANNEXE 3

LES ELEMENTS D'ECHANTILLONNAGE EN STEREOLOGIE

Quand la structure de l'ensemble X à analyser n'est pas isotrope, aléatoire et homogène, l'élément d'échantillonnage ne peut pas être choisi de manière arbitraire si on veut appliquer les relations fondamentales de la stéréologie. Il doit être choisi de manière aléatoire avec une distribution de probabilité isotrope et uniforme. Par abus de langage, on dit alors que l'élément d'échantillonnage lui-même est isotrope uniforme et aléatoire (I.U.A.) (Miles 1976 I.U.R. : isotropic uniform random).

1. Section I.U.A.

Fixons une origine O . On peut caractériser une droite quelconque passant par O par 2 angles θ et \varnothing (Figure 1). On définit alors un plan quelconque T dans l'espace par les 2 angles θ et \varnothing qui caractérisent la normale au plan passant par O et par la distance p entre le plan et l'origine O (Figure 1). La densité de probabilité en nombre conduisant à une section $T(p, \theta, \varnothing)$ I.U.A. est alors (Miles 1976) :

$$f(p, \theta, \varnothing) dp d\theta d\varnothing = \frac{\sin \theta}{2\pi} dp d\theta d\varnothing \quad (1)$$

On peut alors générer des sections de manière aléatoire à l'aide de cette loi de probabilité dans un domaine suffisamment grand et on retient la première section qui coupe l'ensemble X .

Miles utilise aussi des sections I.U.A. pondérées en aire. La densité de probabilité est alors :

$$f_A(p, \theta, \varnothing) dp d\theta d\varnothing = \frac{A(T(p, \theta, \varnothing)) \sin \theta}{2\pi} dp d\theta d\varnothing \quad (2)$$

Le choix d'une telle section n'est pas commode car on ne connaît pas a priori $A(T(p, \theta, \varnothing))$. Cependant, Miles montre qu'une section isotrope et aléatoire passant par un point uniforme et aléatoire (Voir § 3.) de X est de façon équivalente une section I.U.A. pondérée en aire (pour le choix d'une section isotrope et aléatoire, on utilise uniquement les paramètres θ et \varnothing : $f(\theta, \varnothing) d\theta d\varnothing = \sin \theta / 2\pi d\theta d\varnothing$).

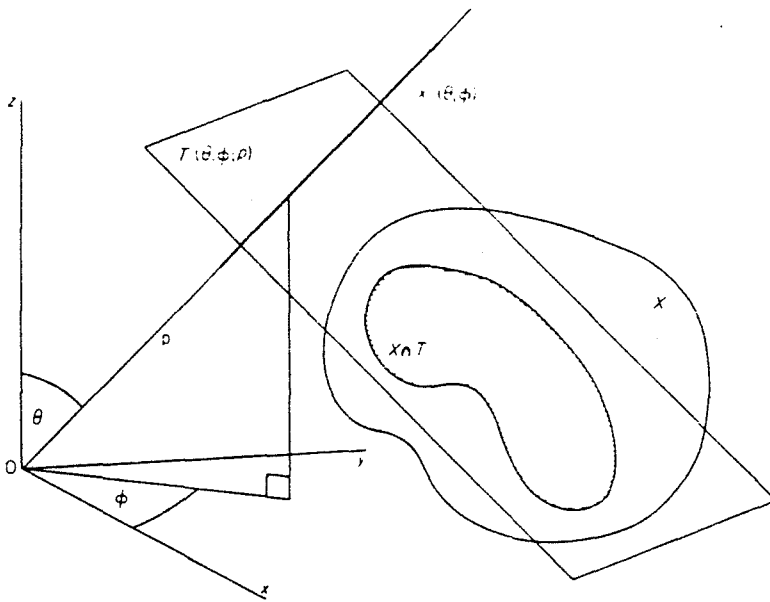


Figure 1 :
Représentation d'un plan paramétré
 $T(p, \theta, \phi)$.

2. Intercept linéaire I.U.A.

On peut caractériser une droite T quelconque de l'espace par les angles θ, ϕ précédemment définis qui fixeront son orientation Γ et par les coordonnées ξ et η dans le plan Π orthogonal à Γ passant par O . La loi de probabilité conduisant à un intercept I.U.A. est alors (Miles 1976) :

$$f(\theta, \phi, \xi, \eta) d\theta d\phi d\xi d\eta = \frac{\sin \theta}{2\pi} d\theta d\phi d\xi d\eta \quad (3)$$

On peut alors générer des intercepts de manière aléatoire à l'aide de cette loi de probabilité dans un domaine suffisamment grand et on retient le premier intercept qui coupe l'ensemble X . Miles utilise aussi des intercepts pondérés en longueur. La densité de probabilité est alors :

$$f_L(\theta, \phi, \xi, \eta) d\theta d\phi d\xi d\eta = \frac{L(\theta, \phi, \xi, \eta) \sin \theta}{2\pi} d\theta d\phi d\xi d\eta \quad (4)$$

Comme précédemment, la génération d'une telle droite n'est pas commode. Cependant, Miles montre qu'un intercept isotrope et aléatoire passant par un point uniforme et aléatoire de X (Voir § 3.) est de façon équivalente un intercept I.U.A. pondéré en longueur de X (pour le choix d'un intercept isotrope et aléatoire, on utilise uniquement les paramètres θ et ϕ : $f(\theta, \phi) d\theta d\phi = \sin \theta / 2\pi d\theta d\phi$).

3. Point uniforme et aléatoire

Pratiquement, on génère un point uniforme et aléatoire dans un ensemble X en choisissant d'abord un cube contenant X . On choisit alors de manière aléatoire un triplet de coordonnées (x, y, z) dans le cube, et on retient le point s'il est inclus dans X . La densité de probabilité peut s'exprimer par :

$$f(x, y, z) dx dy dz = dx dy dz$$

ANNEXE 4

LA MORPHOLOGIE MATHÉMATIQUE

La morphologie mathématique est née en 1964 sous l'impulsion de G. Matheron et J. Serra. Cette discipline vise à révéler la structure des objets et à la quantifier en utilisant des opérations ensemblistes spécifiques. Elle s'est développée depuis 1964 au Centre de Morphologie Mathématique de l'Ecole des Mines de Fontainebleau et elle a permis la fabrication d'un nouveau type d'analyseurs d'images baptisés "analyseurs de texture", qui utilisent ses concepts. Nous présentons maintenant, de façon très sommaire, quelques uns de ces concepts. Pour de plus amples informations, on pourra se référer à l'ouvrage de J. Serra sur la morphologie mathématique (1982).

Les notations que nous utilisons concernant les opérations ensemblistes sont rassemblées au début de l'Annexe 6.

A. TRANSFORMATIONS MORPHOLOGIQUES D'UNE IMAGE BINAIRE

Considérons une image X contenant un seul ensemble à analyser Y . En représentation digitale, X est un réseau hexagonal de pixels. Aux pixels appartenant à l'ensemble Y on associe une fonction d'état égale à 1, aux pixels appartenant au complémentaire Y^C de Y dans X , on associe la fonction d'état 0. L'image est alors une image binaire.

1. QUELQUES DEFINITIONS

- Élément structurant :

On appelle élément structurant B la donnée de deux ensembles disjoints B^0 et B^1 et d'un point qu'on appelle centre de l'élément structurant. En représentation digitale, on utilisera généralement des éléments structurant inclus dans l'hexagone de taille 1. On attribuera aux pixels de B^0 la valeur 0 et aux pixels de B^1 la valeur 1, le centre de l'hexagone étant le centre de l'élément structurant :

$$\begin{array}{ccc} & 0 & 1 \\ x & 1 & 0 \\ & x & x \end{array}$$

est un exemple d'élément structurant (le signe x représente indifféremment un "0" ou un "1").

- Transformation en tout ou rien (Hit or Miss Transform) ou transformation de voisinage :

On peut placer un élément structurant B en un point quelconque x de l'image en faisant coïncider son centre avec le point x . On note B_x l'élément structurant centré au point x . On définit de même B_x^0 et B_x^1 . On appelle **transformée en tout ou rien** de l'image X par l'élément structurant B , noté $X \otimes B$, l'ensemble défini par :

$$X \otimes B = \{x \in X \mid B_x^1 \subset Y, B_x^0 \subset Y^C\}$$

En analyse digitale, cela revient à ne retenir de X que les points qui ont la configuration de voisinage définie par l'élément structurant B . Pour cette raison, on l'appelle également **transformation de voisinage**. Si le centre de l'élément structurant est dans B^1 , la transformation ne porte que sur les points de Y . On dira alors qu'on fait une transformation en tout ou rien de Y et on la notera $Y \otimes B$. De même si le centre de l'élément structurant est dans B^0 , on dira qu'on fait une transformation en tout ou rien de Y^C et on la notera $Y^C \otimes B$. Pour qu'une transformation en tout ou rien de Y^C soit équivalente à une transformation en tout ou rien de Y par un élément structurant B , il faut inverser les rôles de B^0 et B^1 dans B (en analyse digitale, il faut remplacer les "0" par des "1"). On note B^* l'élément structurant ainsi obtenu. La transformation en tout ou rien est à la base de toutes les transformations morphologiques.

2. L'EROSION, LA DILATATION ET QUELQUES AUTRES...

Considérons le cas particulier où $B^0 = \emptyset$. Dans ce cas, B est un ensemble unique. En analyse digitale on utilisera par exemple :

$$B = \begin{array}{ccc} & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \\ & 1 & 1 \end{array}$$

que nous noterons H par la suite, qui est une représentation approximative du disque dans un réseau hexagonal, ou :

$$B = \begin{array}{ccc} & x & x \\ x & 1 & 1 \\ & x & x \end{array}$$

que nous noterons I par la suite, qui est une représentation du segment de droite.

- L'érosion élémentaire :

Avec ces hypothèses, l'érodé de Y par B est le transformé en tout ou rien de Y par B :

$$E^B(Y) = \{x \in X \mid B_x \subset Y\}$$

On le note aussi $Y \ominus \check{B}$ où \check{B} est le transposé de B , c'est-à-dire le symétrique de B par rapport à son centre ; cette notation est celle de la soustraction de Minkowski (Voir Serra 1982).

La figure 1 représente l'érosion par un disque (érosion bidimensionnelle) et par un segment (érosion linéaire) d'un ensemble dans l'espace euclidien R^2 .

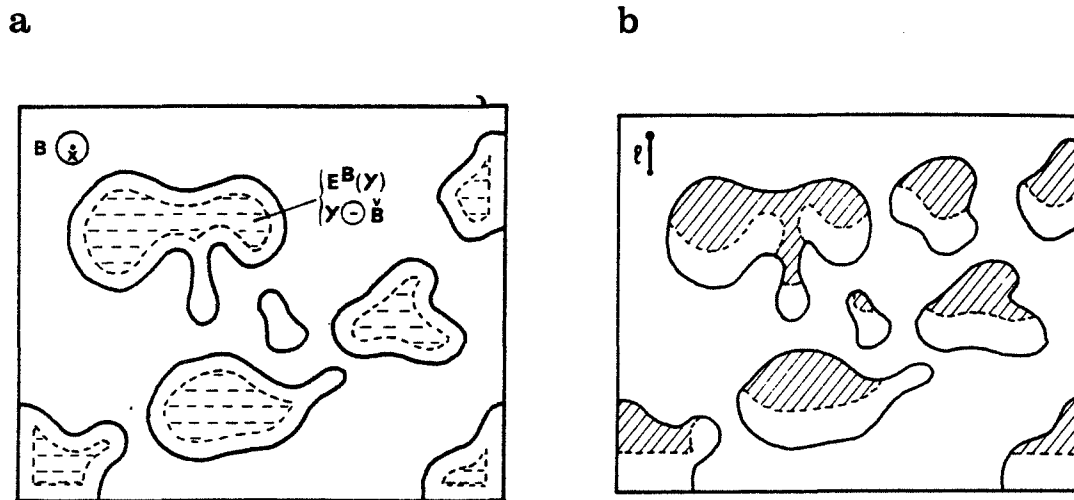


Figure 1 :

Erosion d'un ensemble d'objets par un disque (a) et un segment (b) dans l'espace R^2 (D'après Coster et Chermant 1985).

- La dilatation élémentaire :

Toujours avec les mêmes hypothèses, le dilaté de Y par B est l'ensemble :

$$D^B(Y) = \{ x \in X \mid B_x \cap Y \neq \emptyset \}$$

(on le note aussi $Y \oplus \overset{\vee}{B}$).

La dilatation et l'érosion sont des opérations duales. On peut montrer que :

$$D^B(Y) = (E^{B^*}(Y^C))^C$$

Si bien que la dilatation peut être définie à partir d'une transformation en tout ou rien sur le complémentaire de Y .

La figure 2 représente la dilatation d'un ensemble d'objets par un disque dans l'espace R^2 .

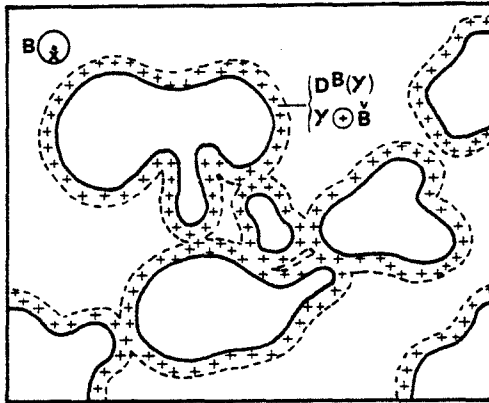


Figure 2 :
Dilatation d'un ensemble d'objets par
un disque dans l'espace R^2
(D'après Coster et Chermant 1985).

Itération :

L'érosion et la dilatation peuvent être définies avec des éléments structurants plus grands que l'hexagone élémentaire. Pratiquement, les analyseurs automatiques utilisent des hexagones élémentaires car on peut montrer que l'érosion (resp. la dilatation) par un hexagone de taille n est équivalente à la composition de n érosions (resp. dilatations) par un hexagone de taille 1 (Coster et Chermant 1985) :

$$E^{nH}(Y) = (E^H)^n(Y)$$

(nH représente l'ensemble résultant de la dilatation de H n fois par lui-même).

Ceci est vrai aussi pour l'érosion et la dilatation linéaire. On appellera **érosion** (resp. **dilatation**) de taille n la **composition de n érosions** (resp. **dilatations**) élémentaires. On la notera $E^{nB}(Y)$ (resp. $D^{nB}(Y)$).

- L'ouverture :

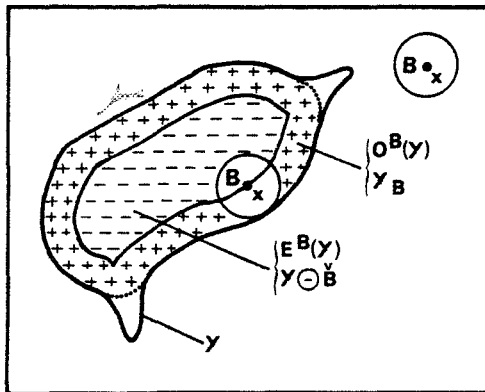
On réalise une ouverture de Y par l'élément structurant B en effectuant une érosion par B suivie d'une dilatation par le transposé de B :

$$O^B(Y) = D^{\overset{\vee}{B}}(E^B(Y))$$

(On la note aussi Y_B , Serra 1982).

La figure 3 représente l'ouverture d'un objet par un disque et par un segment dans l'espace euclidien R^2 . L'utilisation du transposé de B pour la dilatation permet de vérifier la relation d'inclusion $0^B(Y) \subset Y$ (Figure 3b). Cette contrainte n'apparaît pas quand l'élément structurant est symétrique. L'ouverture joue le rôle d'un filtrage sur l'image binaire : elle adoucit les contours, coupe les isthmes étroits, supprime les petites îles et les caps étroits (Coster et Chermant 1985).

(a)



(b)

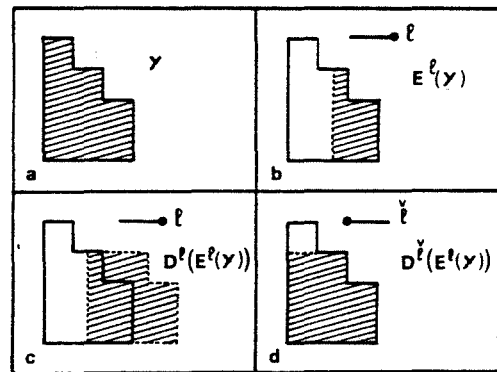


Figure 3 :

Ouverture d'un objet par un disque (a) et par un segment (b). La figure (b) illustre la différence entre $D^l(E^l(X))$ et $D^l(E^l(X))$.

- La fermeture :

On réalise une fermeture de Y par l'élément structurant B en effectuant une dilatation par B suivie d'une érosion par le transposé de B :

$$F^B(Y) = E^{\check{B}}(D^B(Y))$$

(On la note aussi Y^B , Serra 1982).

La fermeture et l'ouverture sont des opérations duales. On peut montrer que :

$$F^B(Y) = (0^{B^*}(Y^C))^C$$

La figure 4 représente la fermeture d'un ensemble d'objets par un disque. La fermeture a également un effet de lissage sur l'image binaire : elle bouche les canaux étroits, supprime les petits lacs et les golfes étroits (Coster et Chermant 1985).

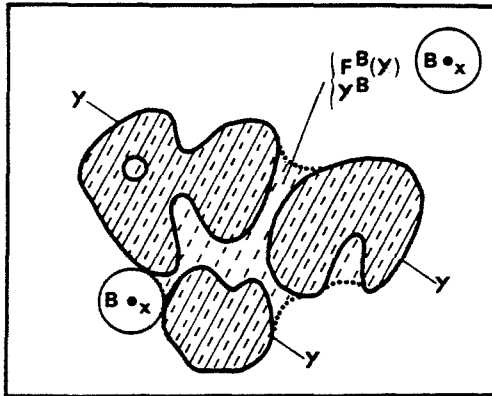


Figure 4 :
Fermeture d'un ensemble d'objets
par un disque.

Itération :

On appellera ouverture (resp. fermeture) de taille n la composition d'une érosion (resp. dilatation) de taille n et d'une dilatation (resp. érosion) de taille n , on la notera :

$$O^{nB}(Y) \text{ (resp. } F^{nB}(Y))$$

Elle n'est pas équivalente à la composition de n ouvertures élémentaires. L'ouverture et la fermeture sont d'ailleurs des transformations idempotentes ($O^B(O^B(Y)) = O^B(Y)$).

L'ouverture de taille n sera utilisée pour la détermination de fonctions de distribution granulométrique (Annexe 5).

3. L'AMINCISSEMENT ET L'ÉPAISSISSEMENT

L'amincissement et l'épaississement sont définis à partir de la transformation en tout ou rien par un élément structurant B quelconque, dont le centre est dans B^1 :

$$\text{Amincissement : } Y \ominus B = Y / (Y \otimes B)$$

$$\text{Épaississement : } Y \oplus B^* = Y \cup (Y^C \otimes B^*)$$

En analyse digitale, l'amincissement supprime les points de Y qui ont la configuration définie par B . L'épaississement ajoute à Y les points de Y^C qui ont la configuration définie par B^* .

La table 1 donne quelques exemples d'application de l'amincissement :

Opération réalisée	Élément structurant
Élimination de points isolés :	$ \begin{array}{ccc} & 0 & 0 \\ I=0 & 1 & 0 \\ & 0 & 0 \end{array} $
Contour des objets	$ \begin{array}{ccc} & 1 & 1 \\ H=1 & 1 & 1 \\ & 1 & 1 \end{array} $
Ebarbulage d'objets linéaux	$ \begin{array}{ccc} & x & x \\ E=0 & 1 & 0 \\ & 0 & 0 \end{array} $
Squelette	$ \begin{array}{ccc} 0 & 0 & & 1 & x \\ L=x & 1 & x & M=1 & 1 & 0 \\ & 1 & 1 & & 1 & x \end{array} $

Table 1 :

Quelques opérations classiques réalisées par amincissement.

- **Squelette :**

L'amincissement par l'élément structurant L ou M a la propriété d'être homotopique, c'est-à-dire qu'il conserve le nombre de connexité de l'image (Serra 1982). Si on amincit un grand nombre de fois un objet de connexité 1 par la famille d'éléments structurants L6 ou M6 (constituée par les 6 rotations de $k\pi/3$, k variant de 0 à 5, des éléments L ou M), on tend vers un ensemble limite constitué de lignes d'épaisseur 1 pixel (un amincissement supplémentaire conduirait à une augmentation du nombre de connexité). Cet ensemble a les propriétés d'un squelette (Serra 1982). La figure 5 montre quelques exemples de squelettes d'objets bidimensionnels.

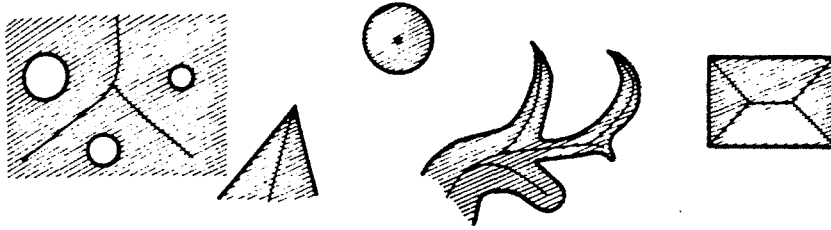


Figure 5 : Exemples de squelettes (D'après Serra 1982).

Un squelette particulier, aux propriétés intéressantes, peut ainsi être obtenu : le **squelette par zones d'influence (SKIZ)** de l'ensemble Y que nous avons défini en Annexe 1. C'est le squelette du complémentaire Y^C de Y par la famille $L6^*$, dont on a éliminé les "branches mortes" par ébarbulage (Voir Table 1). Il constitue un ensemble de lignes, sans points extrêmes, dont les noeuds sont tous les points de rencontre de 3 lignes (Figure 6).

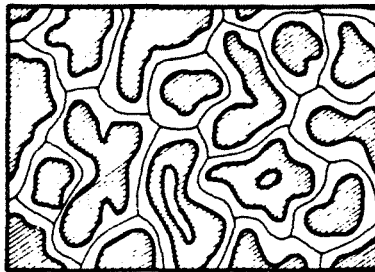


Figure 6 :
Exemple de SKIZ.

4. LA TRANSFORMATION CONDITIONNELLE

On définit la transformation d'un ensemble E par l'élément structurant B conditionnellement à l'ensemble de référence E_0 par :

$$T^B(E | E_0) = T^B(E) \cap E_0$$

Cette définition est valable pour toutes les transformations que nous avons définies précédemment. Cependant, elle est particulièrement utile dans le cas de la dilatation. En effet :

$$D^B(E | E_0) = D^B(E) \cap E_0 = \{x \in E_0 \mid B_x \cap E \neq \emptyset\}$$

Si l'on effectue une série de dilatations hexagonales élémentaires de E conditionnellement à E_0 , on va tendre vers une limite qui est l'ensemble des parties connexes de E_0 qui ont une intersection non vide avec E (Figure 7). Cette opération, que nous notons $D^\infty(E | E_0)$, s'appelle reconstruction de E_0 par le marqueur E . Elle a de nombreuses applications en analyse d'images (Table 2).

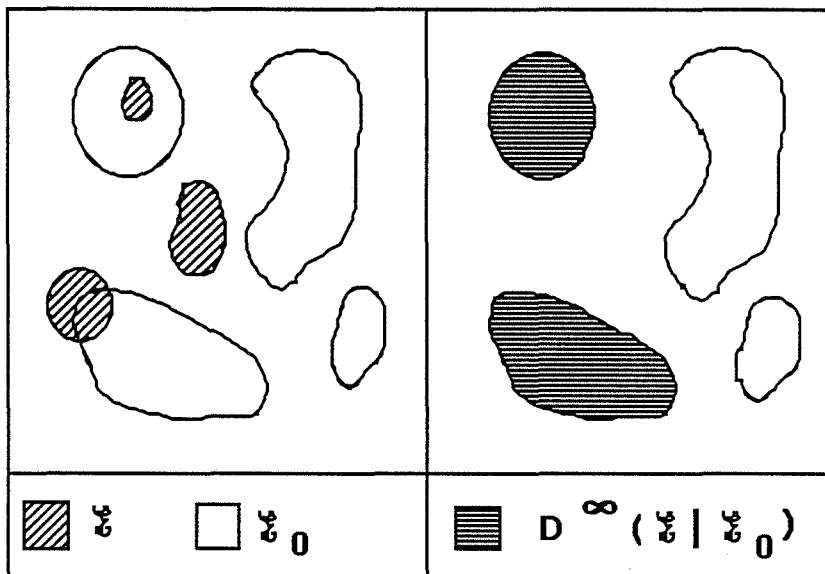


Figure 7 : Reconstruction d'un ensemble E_0 par un marqueur E .

Marqueur E	Ensemble à reconstruire E_0	Résultat de la reconstruction
Bord du champ	$Y = \text{objets à analyser}$	Objets qui touchent le bord du champ
Premier point de l'image (dans le sens de balayage de l'analyseur i.e. de gauche à droite et de haut en bas)	$Y = \text{objets à analyser}$	Premier objet du champ
$E^n(Y)$	$Y = \text{objets à analyser}$	$Y / \{\text{objets de } Y \text{ de taille inférieure à } n\}$
Bord du champ	$Y^C = \text{milieu poreux intergranulaire}$	$\{\text{Objets dont on a bouché les trous}\}^C$

Table 2 :

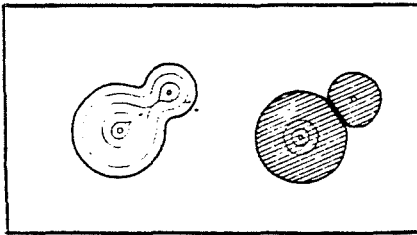
Quelques exemples classiques d'utilisation de la reconstruction.

5. ET LA TRANSFORMATION GEODESIQUE

Une transformation est dite géodésique selon un ensemble X_0 si elle est réalisée exclusivement dans l'espace que constitue l'ensemble X_0 . Les transformations que nous avons considérées jusqu'à présent étaient géodésiques selon l'ensemble X tout entier.

On se référera à Coster et Chermant (1985 p. 194) pour de plus amples informations concernant ces transformations. Une application intéressante est celle de la segmentation d'un agrégat d'objets par la méthode des bassins versants (Figure 8). Une autre application est la détermination du centre géodésique d'un objet Y (Figure 8) que nous noterons $CG(Y)$, et qui permet de marquer chaque objet par un point.

(a)



(b)

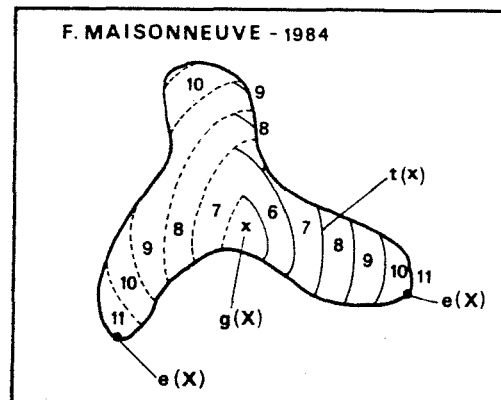
**Figure 8 :**

Illustration de 2 applications des transformations géodésiques : la segmentation par la méthode des bassins versants (a) et la détermination du centre géodésique d'une particule (b)

(D'après Coster et Chermant 1985).

B. TRANSFORMATIONS MORPHOLOGIQUES D'UNE IMAGE EN NIVEAUX DE GRIS

Dans ce paragraphe, l'image est toujours constituée d'un réseau hexagonal de pixels, mais la fonction d'état $f(x)$ de chaque pixel x , que l'on appellera son niveau de gris, peut prendre m valeurs entre 0 et $m - 1$. On l'appelle alors **image en niveau de gris**, ou **image numérique**.

Serra (1982) définit une série de transformations morphologiques appliquées non plus à un ensemble mais à une fonction : la **fonction de niveaux de gris** $f(x)$. Ces transformations ont les mêmes propriétés que les transformations binaires analogues et leur résultat peut être interprété géométriquement de manière similaire, comme nous le verrons.

Elles conduisent d'ailleurs, dans le cas particulier où $m = 2$, aux transformations définies dans le cas binaire.

1. L'EROSION, LA DILATATION NUMERIQUE ET QUELQUES AUTRES...

La notion d'élément structurant est la même pour l'image en niveaux de gris que pour l'image binaire. Pour l'érosion et la dilatation, $B = B^1$ constitue un ensemble unique, et on définit l'érosion et la dilatation de la fonction de niveaux de gris f par B :

$$E^B f(x) = \inf \{ f(u) \mid u \in B_x \}$$

$$D^B f(x) = \sup \{ f(u) \mid u \in B_x \}$$

On définit également l'érosion ou la dilatation numérique d'ordre n par composition. L'érosion numérique va réduire les parties claires de l'image au profit des parties sombres. Par composition de l'érosion et de la dilatation on définit l'ouverture et la fermeture numérique, qui ont des propriétés intéressantes dans le filtrage de l'image numérique (§ IV. A. 2. a. β).

2. L'AMINCISSEMENT, L'ÉPAISSISSEMENT

On définit l'amincissement et l'épaississement de la fonction f par un élément structurant quelconque $B = B^0 \cup B^1$ par :

- amincissement :

$$f(x) \ominus B = \sup \{f(u) \mid u \in B_x^0\} \text{ si } \sup \{f(u) \mid u \in B_x^0\} < f(x) \leq \inf \{f(x) \mid u \in B_x^1\}$$

$$f(x) \ominus B = f(x) \text{ sinon.}$$

- épaississement :

$$f(x) \oplus B = \inf \{f(u) \mid u \in B_x^1\} \text{ si } \sup \{f(u) \mid u \in B_x^0\} \leq f(x) < \inf \{f(u) \mid u \in B_x^1\}$$

$$f(x) \oplus B = f(x) \text{ sinon.}$$

Ces définitions un peu compliquées conduisent cependant à des applications voisines de celles obtenues sur une image binaire. Par itération d'amincissements homotopiques, on obtient la "ligne de partage des eaux" qui est en fait la ligne des crêtes de la fonction de niveaux de gris, séparant les zones sombres de l'image (Figure 9). Cette ligne est l'analogue du SKIZ pour les transformations binaires.

Nous n'en dirons pas davantage sur la morphologie mathématique. Les quelques notions que nous avons introduites dans cette annexe et dans l'Annexe 5 qui suit devraient suffire pour comprendre le contenu de ce travail. Nous terminons en énonçant un théorème fondamental quand on applique une transformation morphologique en analyse locale.

Le théorème du masque de mesure :

"Pour toute transformation en tout ou rien faisant intervenir un élément structurant $B = (B^1, B^2)$ réalisée de manière locale et uniforme sur l'ensemble Y connu dans un champ d'exploration X , le résultat de la transformation n'est connu sans biais que dans le champ X' obtenu après érosion de X par $B = B^1 \cup B^2$ " (Serra 1982).

Ce théorème s'applique pour toute transformation morphologique puisqu'on a vu que toute transformation morphologique découle d'une transformation en tout ou rien. Après toute transformation morphologique T , découlant d'une transformation en tout ou rien par un élément structurant $B = (B^1, B^2)$, on ne retiendra que :

$$T^B (Y \cap X) \cap E^{B'} (X)$$

où $B' = B_1 \cup B_2$.

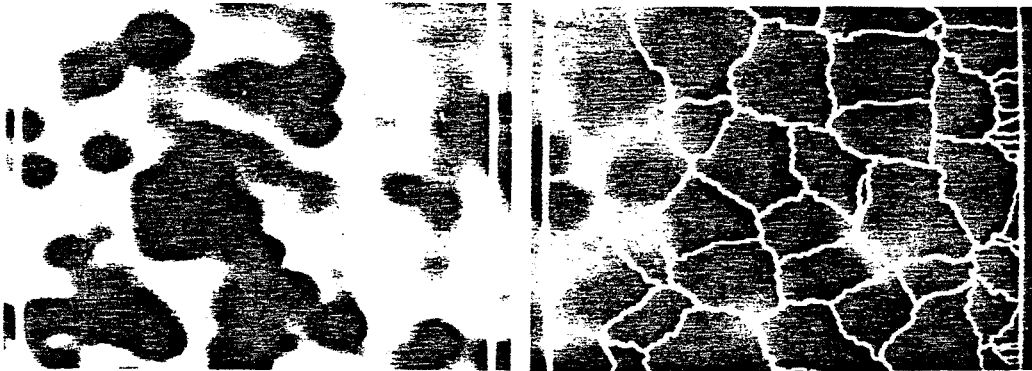


Figure 9 :

Exemple d'une ligne de partage des eaux sur une électrophorèse de gels protéiniques, (D'après Beucher (1983) cité dans Coster et Chermant (1985)).



ANNEXE 5

GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE
A. PRINCIPE GENERAL DE L'ANALYSE GRANULOMETRIQUE

Pour analyser la granulométrie d'un ensemble d'objets Y , on définit une transformation $T_\lambda(Y)$ ($\lambda > 0$) qui vérifie les 3 axiomes suivants (Matheron 1975 cité dans Coster et Chermant 1985) :

- (1) $T_\lambda(Y) \subset Y$ $\forall \lambda > 0$
- (2) $Y_1 \subset Y_2 \Rightarrow T_\lambda(Y_1) \subset T_\lambda(Y_2)$ $\forall \lambda > 0$
- (3) $T_{\lambda_1}(T_{\lambda_2}(Y)) = T_{\lambda_2}(T_{\lambda_1}(Y)) = T_{\sup(\lambda_1, \lambda_2)}(Y)$ $\forall \lambda_1, \lambda_2 > 0$.

T_λ est une transformation qui ne retient qu'une partie de Y , d'autant plus réduite que λ est grand. λ peut alors être considéré comme un paramètre de taille relativement à la transformation choisie. T_λ peut représenter par exemple le refus du tamis de taille λ . En analyse d'images, l'ouverture de taille λ peut être utilisée dans certaines conditions que nous préciserons pour l'analyse granulométrique de Y .

La fonction de distribution granulométrique sera obtenue à partir de T_λ . On distingue 2 types de distribution (Coster et Chermant 1985) :

1. LA DISTRIBUTION EN NOMBRE

La fonction de distribution en nombre est définie par :

$$F(\lambda) = \frac{N(Y) - N(T_\lambda(Y))}{N(Y)}$$

où N désigne le nombre d'objets de l'ensemble.

On définit également la fonction densité de la distribution en nombre :

$$f(\lambda) = F'(\lambda) \quad \text{ou} \quad F(\lambda) = \int_0^\lambda f(\lambda) d\lambda$$

C'est la fraction de particules en nombre dont la taille est comprise entre λ et $\lambda + d\lambda$ relativement à la transformation utilisée. La fonction densité est normalisée :

$$\int_0^{\infty} f(\lambda) d\lambda = \lim_{\lambda \rightarrow \infty} F(\lambda) = 1$$

2. LA DISTRIBUTION EN MESURE

La fonction de distribution en mesure est définie par :

$$G(\lambda) = \frac{\text{Mes}(Y) - \text{Mes}(T_{\lambda}(Y))}{\text{Mes}(Y)}$$

où Mes représente la mesure de Lebesgue, c'est-à-dire le volume dans R^3 , l'aire dans R^2 et la longueur dans R^1 .

Comme précédemment, on peut définir la fonction densité de distribution par :

$$g(\lambda) = G'(\lambda) \quad \text{ou} \quad G(\lambda) = \int_0^{\lambda} g(\lambda) d\lambda$$

C'est la fraction de particules en mesure dont la taille est comprise entre λ et $\lambda + d\lambda$ relativement à la transformation utilisée. La fonction densité est normalisée :

$$\int_0^{\infty} g(\lambda) d\lambda = \lim_{\lambda \rightarrow \infty} G(\lambda) = 1$$

B. GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE

Note :

La lecture de cette partie suppose la connaissance des notions de morphologie présentées dans l'annexe 4 et des notions de stéréologie présentées au § IV. A. 1. a.

D'une manière générale, l'ouverture par un élément structurant convexe vérifie les 3 axiomes de Matheron (Serra 1982). Dans R^1 , le seul élément structurant convexe est le segment. Dans R^2 , on utilisera généralement le disque (l'hexagone en analyse digitale). On parlera alors de granulométrie par ouverture linéaire (dans R^1) et de granulométrie par ouverture bidimensionnelle (par le disque ou l'hexagone dans R^2). Ces deux analyses granulométriques sont accessibles en analyse d'images. Elles s'appliquent d'ailleurs aussi bien pour un ensemble d'objets disjoints que pour un milieu continu (milieu poreux par exemple). Nous utiliserons dans la suite les notations du § A.

1. GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE LINEAIRE

L'ouverture linéaire de taille n supprime les parties des objets qui ont une longueur inférieure à $\lambda = ndL_1$ (dL_1 est la longueur du segment unité l) dans la direction de l'élément structurant l (Annexe 4, Figure 3). L'ensemble des intercepts linéaires de l'ensemble Y par les droites du réseau dans la direction de l constitue un ensemble d'objets disjoints, même si Y est un objet continu. La fonction de distribution par ouverture linéaire $F(\lambda)$ (resp. $G(\lambda)$) exprimera la fraction de ces intercepts en nombre (resp. en longueur) de longueur supérieure à λ .

En analyse locale, ces fonctions s'exprimeront :

$$F(\lambda) = \frac{N_L(Y) - N_L(0^{nl}(Y))}{N_L(Y)} \quad (1)$$

$$G(\lambda) = \frac{L_L(Y) - L_L(0^{nl}(Y))}{L_L(Y)} \quad (2)$$

N_L et L_L sont des paramètres que l'on peut mesurer en analyse automatique d'images (§ IV. A. 2. d.). Le théorème du masque de mesure (fin de l'Annexe 4) nécessite de restreindre le champ de la mesure à $E^{nl}(X)$, X étant le champ tout entier (la transformation 0^{nl} étant faite dans le champ tout entier).

On peut également estimer $f(\lambda)$ à partir d'une mesure et non plus à partir d'un comptage. En effet, Serra (1982) montre que :

$$f(\lambda) = - \frac{P''(\lambda)}{P'(0)}$$

où la fonction $P(\lambda)$ est définie en analyse globale par :

$$P(\lambda) = A_A(E^{nl}(Y))$$

soit encore, en analyse locale, en tenant compte du théorème du masque de mesure :

$$P(\lambda) = \frac{A(E^{nl}(Y) \cap E^{nl}(X))}{A(E^{nl}(X))}$$

C'est cette fonction que nous avons utilisée (§ IV. A. 4. α .).

2. GRANULOMETRIE PAR OUVERTURE BIDIMENSIONNELLE

L'ouverture par un hexagone de taille n supprime les parties des objets dans lesquelles on peut inclure un hexagone de taille $\lambda = ndL_1$. La différence avec l'analyse monodimensionnelle est que $Y \cap R^2$ ne constitue pas nécessairement un ensemble d'objets disjoints. Le calcul de la distribution en nombre suppose donc que Y soit constitué d'un ensemble d'objets disjoints. Il faudra de plus que les objets soient convexes sinon l'ouverture pourra segmenter des objets et le calcul d'une fonction de distribution en nombre suppose que le

nombre total d'objets ne soit pas modifié par la mesure. La fonction de distribution en mesure peut s'appliquer dans tous les cas, même si Y représente un milieu continu. La granulométrie par ouverture exprimera la fraction en nombre (resp. en surface) des parties de Y dans lesquelles on peut inclure un hexagone de taille inférieure à λ :

$$F(\lambda) = \frac{N_A(Y) - N_A(0^{nH}(Y))}{N_A(Y)}$$

$$G(Y) = \frac{A_A(Y) - A_A(0^{nH}(Y))}{A_A(Y)}$$

N_A et A_A sont des paramètres que l'on sait mesurer en analyse automatique (§ IV. A. 2. d.). Le théorème du masque de mesure (fin de l'Annexe 4) nécessite de restreindre le champ de la mesure à $E^{nH}(X)$, X étant le champ tout entier.

ANNEXE 6

ALGORITHMES DES PROGRAMMES EN ANALYSE D'IMAGES
Notations :

Dans ce paragraphe, nous donnons seulement la liste des notations utilisées dans la suite de cette annexe et dans les autres parties, concernant les opérations en analyse ensembliste ou en analyse d'images. Pour la définition des paramètres listés, un renvoi ad hoc est donné dans la colonne des remarques.

Remarques**- Opérations arithmétiques**

+	: addition pixel à pixel	plafonnement à $\max \{f(x)\}$
-	: soustraction pixel à pixel	plancher à 0
*	: inversion	en binaire $x \rightarrow 1 - f(x)$ en numérique $x \rightarrow \max \{f(x)\} - f(x)$
ABS,ORD	: calcul des coordonnées du premier point de l'image binaire	
FILL	: mise à l'état 1 de tous les pixels de l'image	

- Opérations ensemblistes (images binaires)

\cap	: intersection	
\cup	: union	
/	: différence symétrique	$Y/Z = (Y \cup Z) - (Y \cap Z)$

- Opérations morphologiques

(Voir Annexe 4)

E^B	: érosion élémentaire par l'élément structurant B	
E^{nB}	: érosion de taille n	
D^B	: dilatation élémentaire	
D^{nB}	: dilatation de taille n	
O^B	: ouverture élémentaire	(Si n est omis, $n = 1$)
O^{nB}	: ouverture de taille n	
F^B	: fermeture élémentaire	
F^{nB}	: fermeture de taille n	
$D^\infty (X X_0)$: reconstruction de X_0 par le marqueur X	
$HMT0^B$: transformée en tout ou rien sur les points à 0 par l'élément structurant B	(HMT = Hit or Miss Transform)
$HMT1^B$: transformée en tout ou rien sur les points à 1 par l'élément structurant B	

- O : amincissement
- ⊙ : épaissement

- Mesures sur l'image binaire (Voir § IV.A.1.)

- N_0 : nombre de pixels à 1 de l'image
- N^0_1 : nombre de connexité 1D de X dans la direction horizontale
- N^1_1 : nombre de connexité 1D de X dans la 1ère direction oblique
- N^2_1 : nombre de connexité 1D de X dans la 2ème direction oblique
- N_2 : nombre de connexité 2D de X
- L_2 : périmètre global de X
- D_H : diamètre de Ferret horizontal de X
- D_V : diamètre de Ferret vertical de X

- Opérations spécifiques d'un filtrage numérique (Voir § IV.A.2.a.)

- GRADIENT : gradient
- WTOPHATⁿ : chapeau haut de forme de taille n (sur les parties claires)
- BTOPHATⁿ : chapeau haut de forme de taille n (sur les parties sombres)

- Macroinstructions

- CLOHOLE : bouchage des trous
- EDGEOFF : élimination des objets qui touchent le bord (Voir Annexe 4, table 2)
- PARTICLE : extraction de la première particule de l'image et transfert vers une autre mémoire
- SKEL : squelette L
- SKIZ : squelette L par zones d'influence
- CG : centre géodésique.

- Autres opérations

- DRAW-MOUSE : tracé avec la souris dans le plan graphique (en réseau carré)
- DRAW (x, y, a, b) : tracé d'un segment de droite dans le plan graphique (en réseau carré) entre les points de coordonnées (x,y) et (x+a, y+b)
- WINDOW ($\Delta x, \Delta y, x_0, y_0$) : sélection d'une fenêtre de traitement de longueur Δx , de largeur Δy , dont le point supérieur gauche a pour coordonnées (x_0, y_0)
- INT : partie entière d'un réel
- ROUND : entier le plus proche d'un réel.

- Eléments structurants utilisés

Désignation	Représentation	Utilisation		
		Erosion	HMT (0 ou 1)	Amincissement
H	<pre> 1 1 1 x 1 1 1 </pre>	érosion hexagonale		
I = I1 à I6 (6 rotations)	<pre> x x x x x x 1 </pre>	érosion linéaire		
L = L1 à L6 (6 rotations)	<pre> 1 1 x x x 0 0 </pre>			squelette L SKIZ L
E = E1 à E6 (6 rotations)	<pre> 0 0 0 x 0 x x </pre>		1 : points extrémités de lignes	ébarbulage de lignes
I	<pre> 0 0 0 x 0 0 0 </pre>		0 : points isolés	élimination de points isolés

Tous les programmes ont été écrits en Turbo Pascal version 4.0. Les opérations et fonctions que nous venons de définir sont cablées dans le processeur d'images. L'emploi d'une passerelle, fournie par le constructeur, permet de les utiliser à l'intérieur d'un programme Pascal.

Le processeur d'images MORPHOPERICOLOR dispose de 3 mémoires images numériques de traitement 512 x 512 (notées 0, 1 et 2) et de 9 mémoires images binaires de traitement (notées 0, 1... 8). Le réseau utilisé pour ces images est hexagonal. Nous noterons → (i) tout transfert vers la mémoire image (i) (binaire ou numérique).

A. ACQUISITION DES IMAGES

Le programme d'acquisition que nous avons réalisé se présente sous la forme d'un menu :

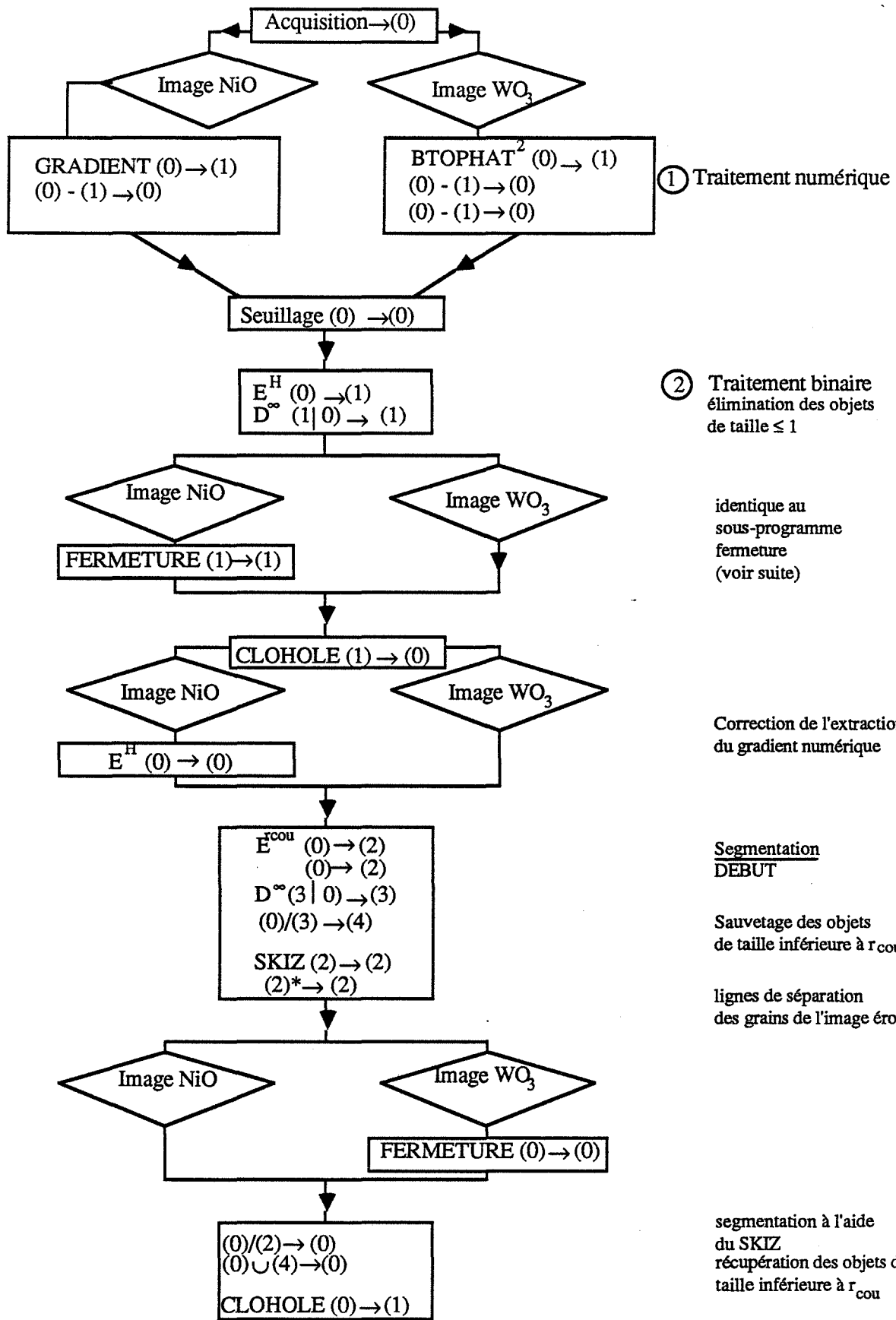
MENU

0	Acquisition de l'image NiO	(Procédure ACQUISITION)
1	Acquisition de l'image WO ₃	(Procédure ACQUISITION)
2	Correction de l'image avec la souris	(Procédure CORRIMAGE)
3	Correction de l'image inverse avec la souris	(Procédure CORRMINVERSE)
4	Segmentation avec la souris	(Procédure SEGMENT)
5	Elimination d'objets avec la souris	(Procédure ELIMIN)
6	Elimination automatique de petits objets	(Procédure ERASE)
7	Ouverture	(Procédure OUVERTURE)
8	Fermeture	(Procédure FERMETURE)
9	Ebarbulage	(Procédure EBARBULAGE)
10	Stockage de l'image	(Procédure STOCKAGE)
11	Choix d'options	(OPTIONS)
12	Fin du traitement	

On procède en général de la manière suivante. On réalise l'acquisition et le filtrage de l'image à l'aide de l'option 0 ou 1, puis on opère éventuellement une correction de l'image binaire obtenue par comparaison avec l'image vidéo de la caméra, en utilisant les options 2 à 9. On stocke l'image corrigée sur disque à l'aide de l'option 10. L'option 11 permet de choisir au départ certains paramètres utilisés lors de l'acquisition (le rayon de fermeture r_f et le rayon des cous pour la segmentation r_{cou}). Nous donnons dans la suite un organigramme de chacune des procédures appelées lors des choix d'options 0-6 et 8. Les options 7 et 9 utilisent des instructions toutes faites.

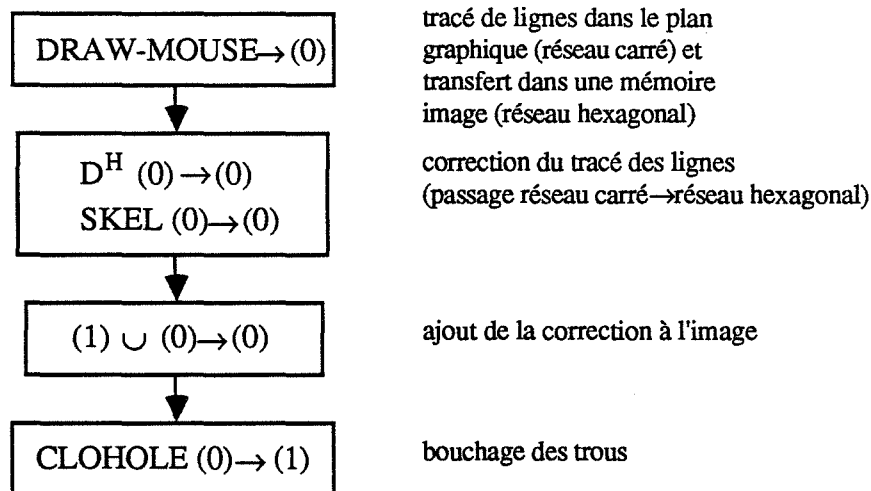
1. ACQUISITION

Du fait de l'aspect différent des 2 types de grains, l'acquisition n'est pas tout à fait identique pour NiO et pour WO₃. Les grains de WO₃ sont clairs (par rapport à la résine et par rapport aux grains de NiO). On rehausse les zones de séparation entre ces grains par un chapeau haut de forme d'épaisseur 2. Les grains NiO sont noirs et présentent des points brillants qu'on élimine par une soustraction du gradient. Le lissage numérique imparfait conduit à faire une fermeture sur ces grains en début du traitement binaire (alors qu'on ne la fait qu'à la fin sur les grains de WO₃ pour éviter de fermer des contacts).



2. CORRECTION DE L'IMAGE AVEC LA SOURIS

Ce sous-programme permet d'ajouter des points à l'image.

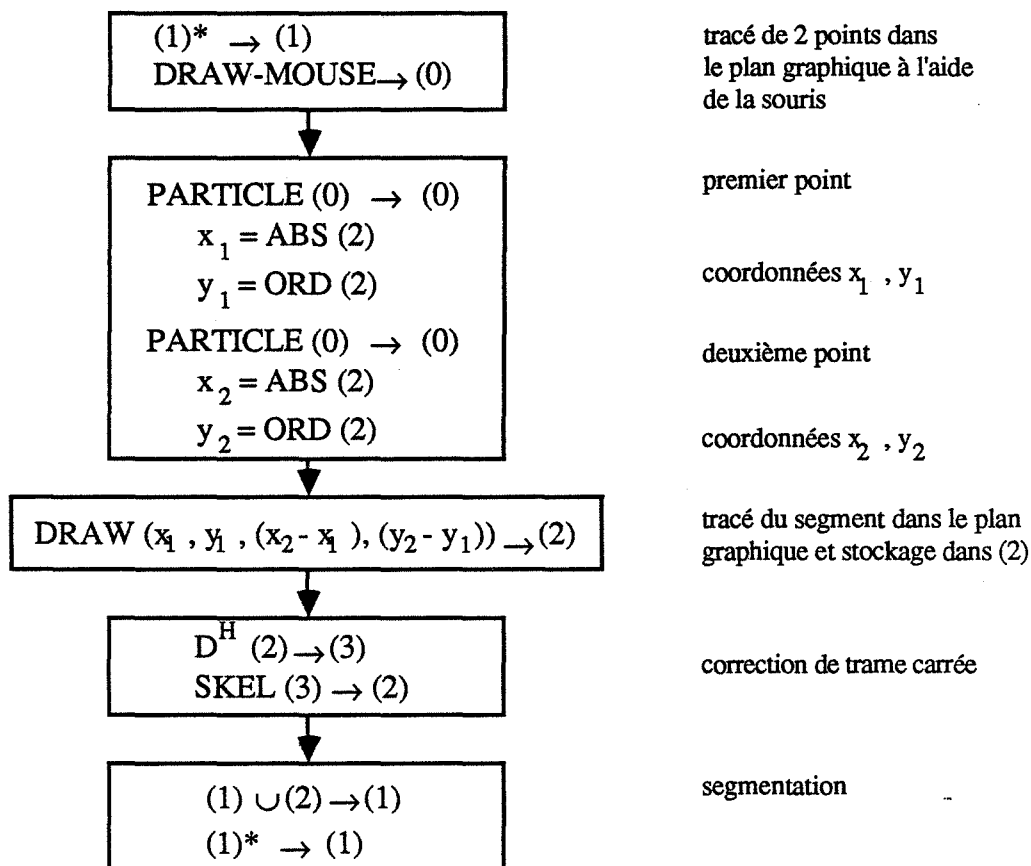


3. CORRECTION DE L'IMAGE INVERSE AVEC LA SOURIS

Ce sous-programme corrige le complémentaire Y^C de Y (ceci permet d'effacer des points de l'image). L'algorithme est le même qu'au § 2 en utilisant $(1)^*$ au lieu de (1).

4. SEGMENTATION AVEC LA SOURIS

Cette segmentation des objets est réalisée en pointant avec la souris les 2 extrémités du segment :



5. ELIMINATION D'OBJETS AVEC LA SOURIS

Les objets à éliminer sont pointés avec la souris :

DRAW-MOUSE	→	(0)	pointage
$D^\infty(0 1)$	→	(0)	reconstruction des objets pointés
(1)/(0)	→	(1)	élimination

6. ELIMINATION AUTOMATIQUE DE PETITS OBJETS

On entre le rayon maximal p des objets à supprimer :

$E^p(1)$	→	(2)	
$D^\infty(2 1)$	→	(2)	reconstruction (moins les objets de rayon $\leq p$)
(2)	→	(1)	

7. FERMETURE

La fermeture nécessite une correction de bords sinon les parties qui touchent le bord sont érodées. On entre le rayon r_f de la fermeture :

FILL	(5)		
E^{r_f}	(5)	→	(5)
(5)*	→	(5)	bords de l'image
$(1) \cap (5)$	→	(5)	bords des objets
F^{r_f}	(1)	→	(1)
$(1) \cup (5)$	→	(1)	correction de bords

B. ANALYSE DE LA DISTRIBUTION DES INTERCEPTS LINEAIRES

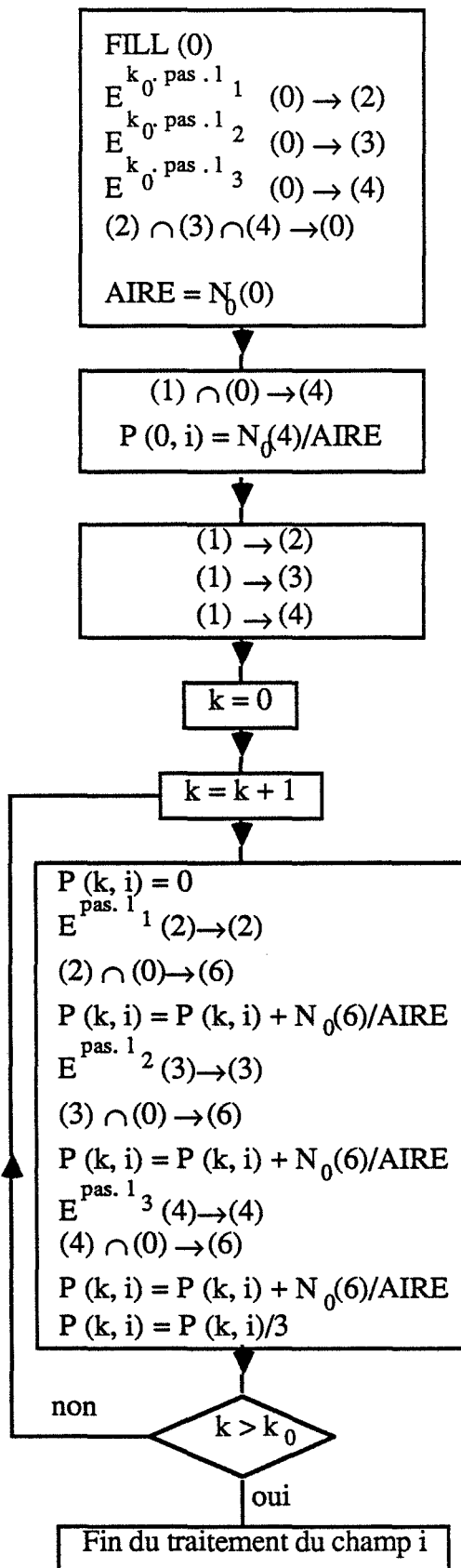
L'analyse est faite séparément pour chacune des 2 espèces WO_3 et NiO . On charge successivement les m images d'une espèce, correspondant aux m champs de l'analyse en section. Pour chaque champ i , on réalise le même traitement. Les données du programme, entrées par l'opérateur, sont les suivantes :

Longueur du champ :	L_C
Taille maximale des particules :	d_{max}
Largeur d'une tranche granulométrique :	Δ .

Le programme calcule alors les données suivantes :

$dL_1 = L_C/512$	= longueur associée à un pixel
$k_0 = INT(d_{max}/\Delta) + 1$	= nombre de tranches granulométriques
$pas = ROUND(\Delta/dD)$	= pas de l'érosion élémentaire (pixels).

Pour chaque champ i , on réalise alors le traitement suivant (l'image est dans la mémoire (1)) :



Commentaires

champ total

l_1, l_2, l_3 : segments élémentaires
dans les 3 directions de la trame

masque de mesure
(d'après le théorème du
masque de mesure, Annexe 4)

La fonction $P(\lambda)$ est définie
en Annexe 5. B. 1.

initialisation

érosion linéaire élémentaire par l_1
masque de mesure

moyenne de $P(k)$ sur les
3 directions de la trame

A partir des mesures sur les m champs, on calcule une distribution moyenne $P(k)$. On a vu en Annexe 5 que la fonction densité de distribution des intercepts en nombre $f(\lambda)$ pouvait être reliée à la fonction $P(\lambda)$ par :

$$f(\lambda) = - \frac{P''(\lambda)}{P'(\lambda)}$$

Numériquement :

$$P'(0, i) = \frac{P(1, i) - P(0, i)}{\text{pas} \cdot dL_1}$$

$$P'(0) = \frac{P(1) - P(0)}{\text{pas} \cdot dL_1}$$

et pour k variant de 1 à $k_0 - 1$:

$$f(k, i) = - \frac{1}{P'(0, i)} \frac{P(k+1, i) + P(k-1, i) - 2P(k, i)}{(pas \cdot dL_1)^2}$$

$$f(k) = - \frac{1}{P'(0)} \frac{P(k+1) + P(k-1) - 2P(k)}{(pas \cdot dL_1)^2}$$

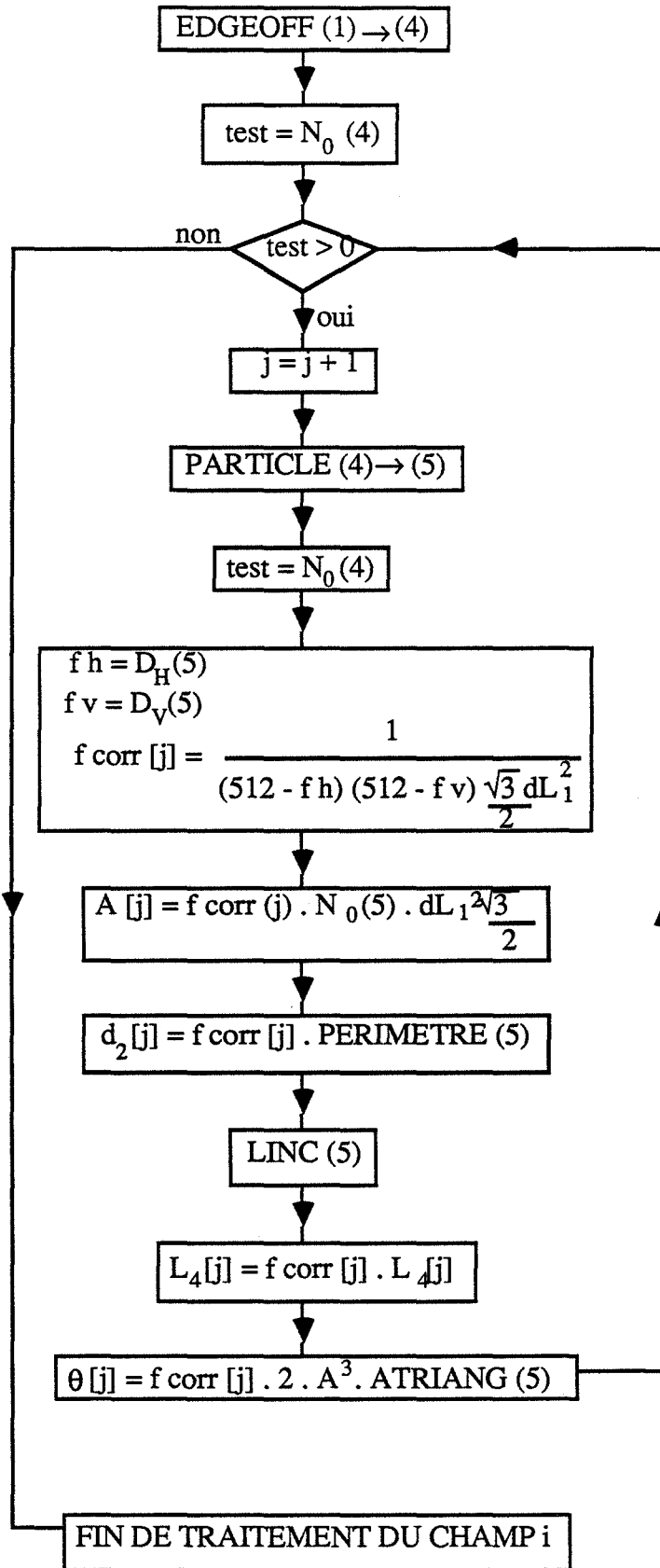
k représente un intercept de longueur $l = k \cdot \text{pas} \cdot dL_1$. Les relations (1) et (2) nous permettent donc d'évaluer la distribution moyenne $f(l)$ et les m distributions locales $f(l, i)$. On peut calculer l'intercept moyen l et l'écart-type $\sigma(l)$ de la distribution globale. Le calcul de ces paramètres sur les distributions locales nous permet d'estimer l'écart type des estimations (§ IV. A. 3. a.).

C. MESURE GRANULOMETRIQUE PAR LA METHODE DE MILES (§ IV. A. 4. b. γ .)

L'analyse est faite séparément pour chacune des 2 espèces WO_3 et NiO . L'opérateur entre la valeur de la longueur du champ L_C au début du programme. L'ordinateur calcule la valeur de la distance élémentaire $dL_1 = L_C/512$ associée à 1 pixel.

On charge successivement les m images d'une espèce, correspondant aux m champs de l'analyse en section. Pour chaque champ i , on réalise alors le traitement suivant (l'image est dans la mémoire (1)) :

Commentaire



élimination des objets touchant le bord

test = 0 quand toutes les particules dans le champ ont été traitées.

indice de la particule traitée

extraction d'une particule

diamètres de Ferret

facteur de correction de bord

aire de la particule j

PERIMETRE est une fonction qui calcule L_2

LINC est un sous-programme qui calcule $[L^4]$

A est l'aire de la particule (non corrigée)

ATRIANG est une fonction qui calcule l'aire du triangle moyen inclus dans la particule

Nous détaillons maintenant les fonctions PERIMETRE, LINC et ATRIANG.

1. PERIMETRE

Cette fonction utilise la relation stéréologique :

$$L_2 = E (\Pi N_1 dL_1) \quad (\text{Table 1})$$

N_1 est évalué en faisant la moyenne sur les 3 directions de la trame :

$$d_1 = N_1^0 (5)$$

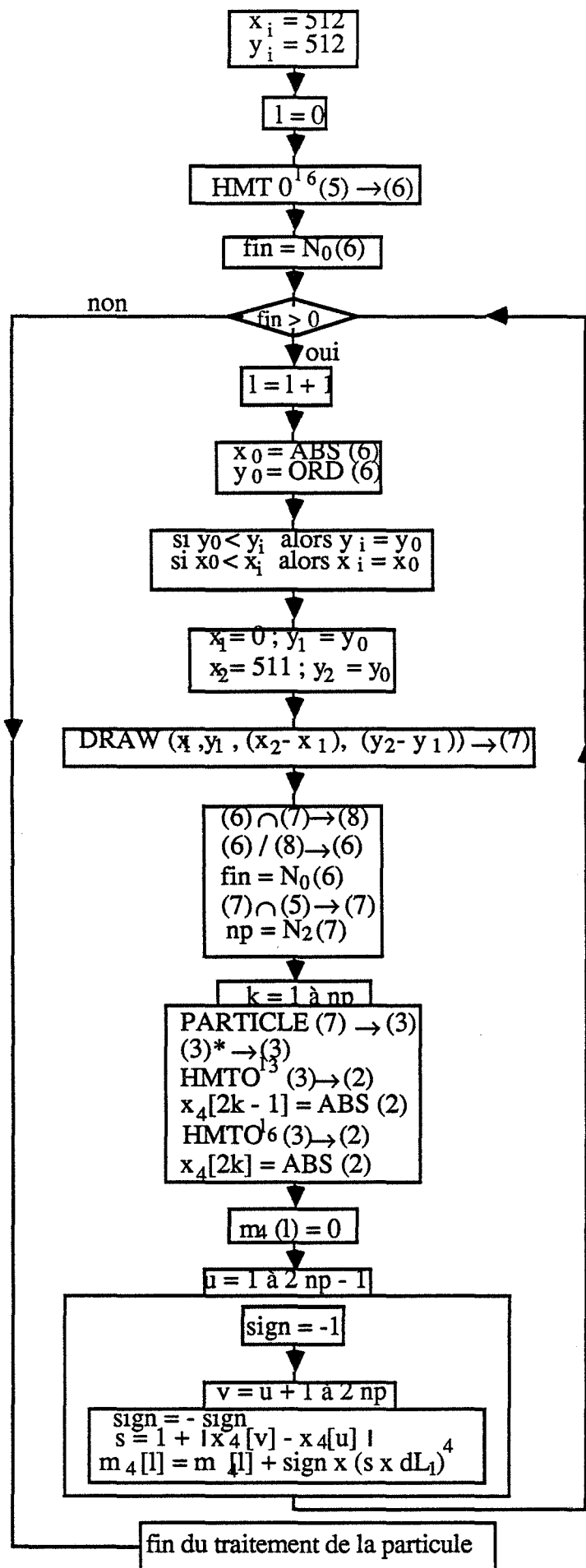
$$d_2 = N_1^1 (5)$$

$$d_3 = N_1^2 (5)$$

$$\text{PERIMETRE} : \Pi \times 1/3 (d_1 + d_2 + d_3) \times dL_1 \sqrt{3}/2.$$

2. LINC

Pour simplifier le traitement, et pour réduire le temps de calcul, la mesure est faite uniquement dans la direction horizontale. On traite successivement chaque intercept et on calcule $[L^4]$ par la relation (23) du § IV.



indice de l'intercept courant

points d'entrée suivant la direction horizontale

test pour la fin du traitement de la particule

x_i, y_i utilisés dans ATRIANG

coordonnées des points extrêmes du segment d'intercept

tracé dans le plan graphique de la droite d'intercept et transfert dans l'image (7)

point(s) d'entrée dans la particule

segments interceptés
nombre de segments

premier segment

point extrémité gauche
abscisse du point

point extrémité droit
abscisse du point

calcul de $[L^4]$ pour l'intercept courant par la formule (23) du § IV

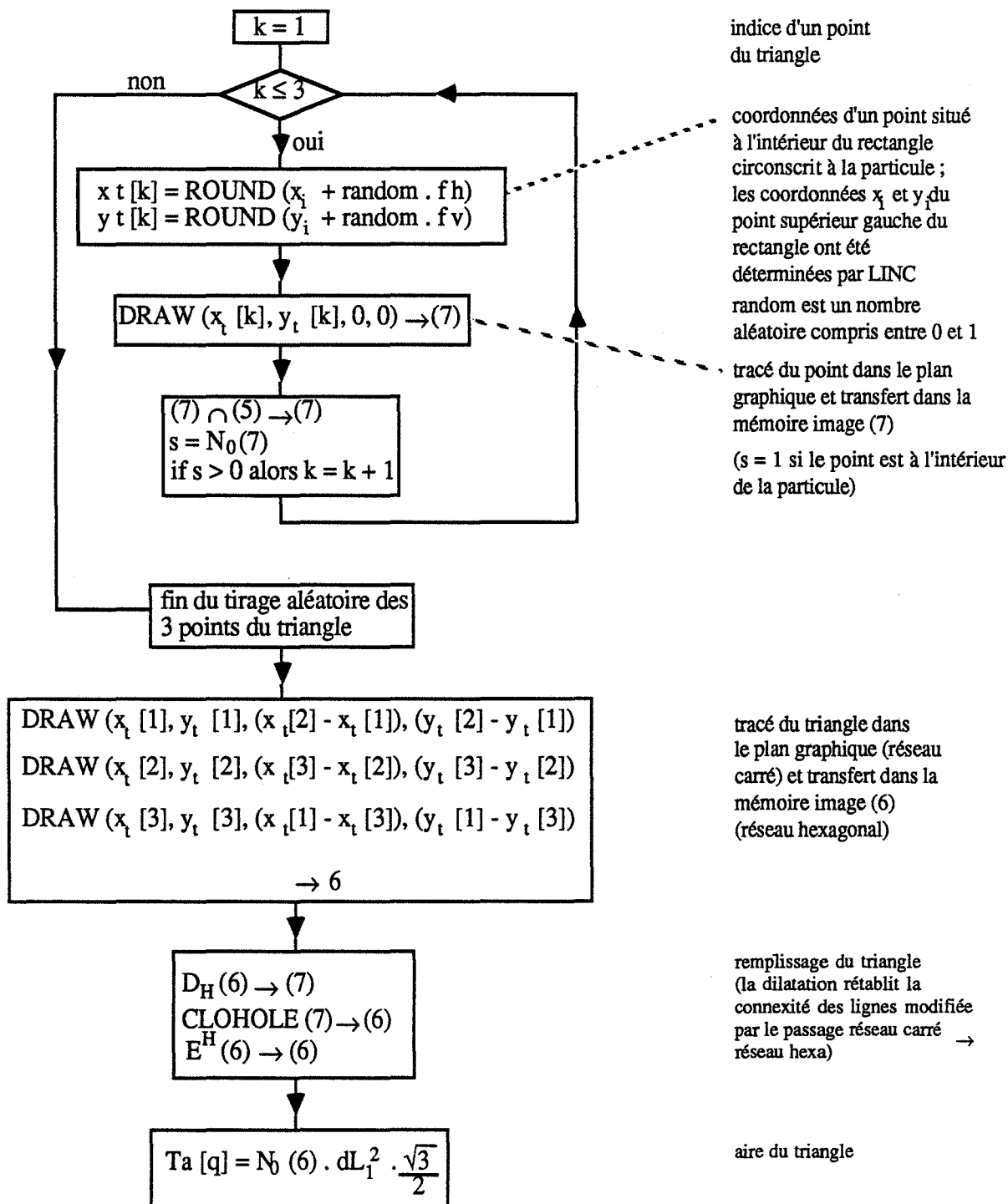
$L_4 [j]$ est calculé en faisant la moyenne des $m_4 [i]$.

$$L_4 [j] = \frac{1}{I} \sum_{k=1}^I L_4 [k]$$

3. ATRIANG

On tire au hasard des points à l'intérieur du rectangle circonscrit à la particule. On retient les 3 premiers points tirés qui sont à l'intérieur de la particule. On calcule l'aire du triangle obtenu. La moyenne est faite sur 10 triangles.

Nous détaillons ici le processus pour un triangle d'indice q :



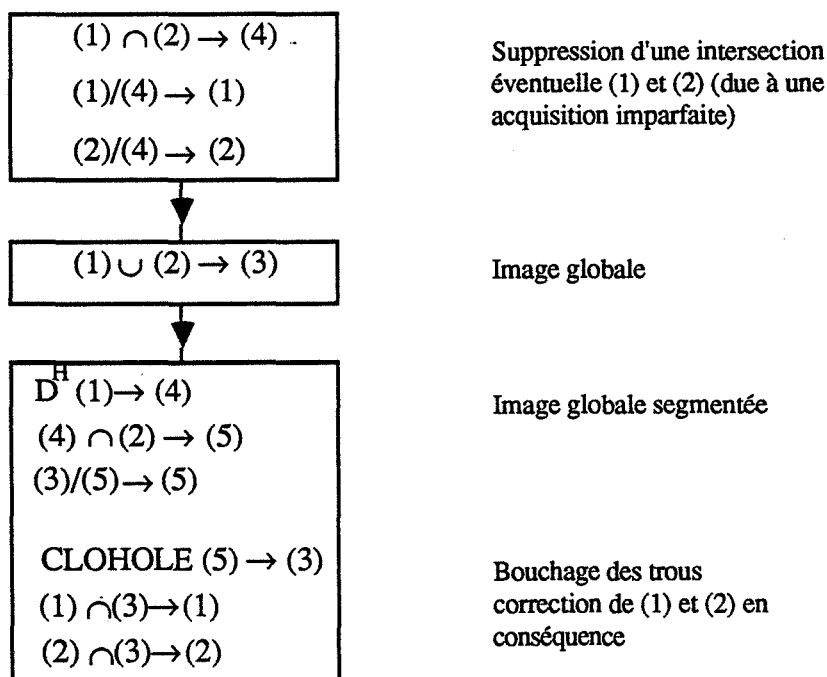
ATRIANG est calculé en faisant la moyenne des $Ta [q]$ sur 10 triangles.

Les valeurs moyennes \overline{A} , $\overline{L_2}$, $\overline{L_4}$, et $\overline{\theta}$ sont calculées sur toutes les particules. On estime $E_V (V)$ et $\sigma_V (V)$ ainsi que les erreurs statistiques à l'aide des relations données au § IV. A. 4. b. γ .

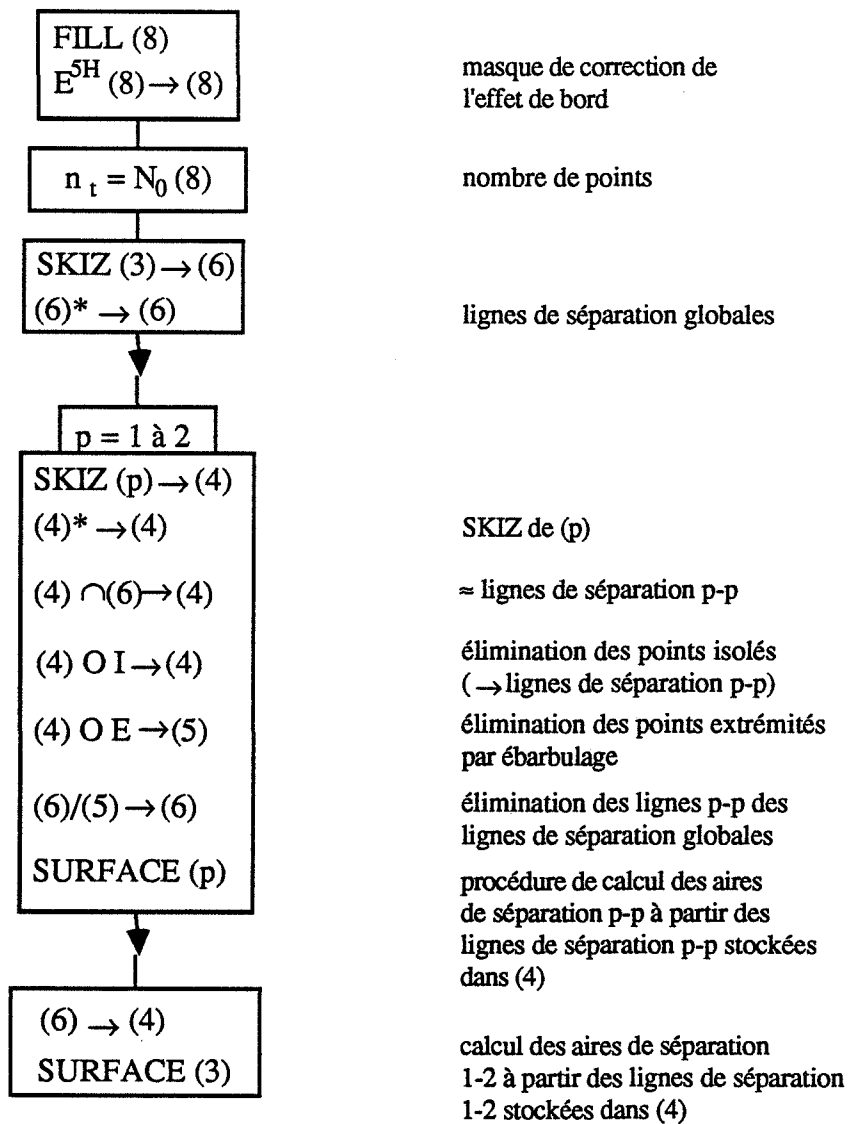
D. AIRE DE SEPARATION PAR ZONES D'INFLUENCE A LA DISTANCE d

L'analyse est faite sur les images WO_3 , NiO et leur réunion. L'opérateur entre la valeur de la longueur du champ L_C au début du programme. L'ordinateur calcule la valeur de la distance élémentaire $dL_1 = L_C/512$ associée à 1 pixel.

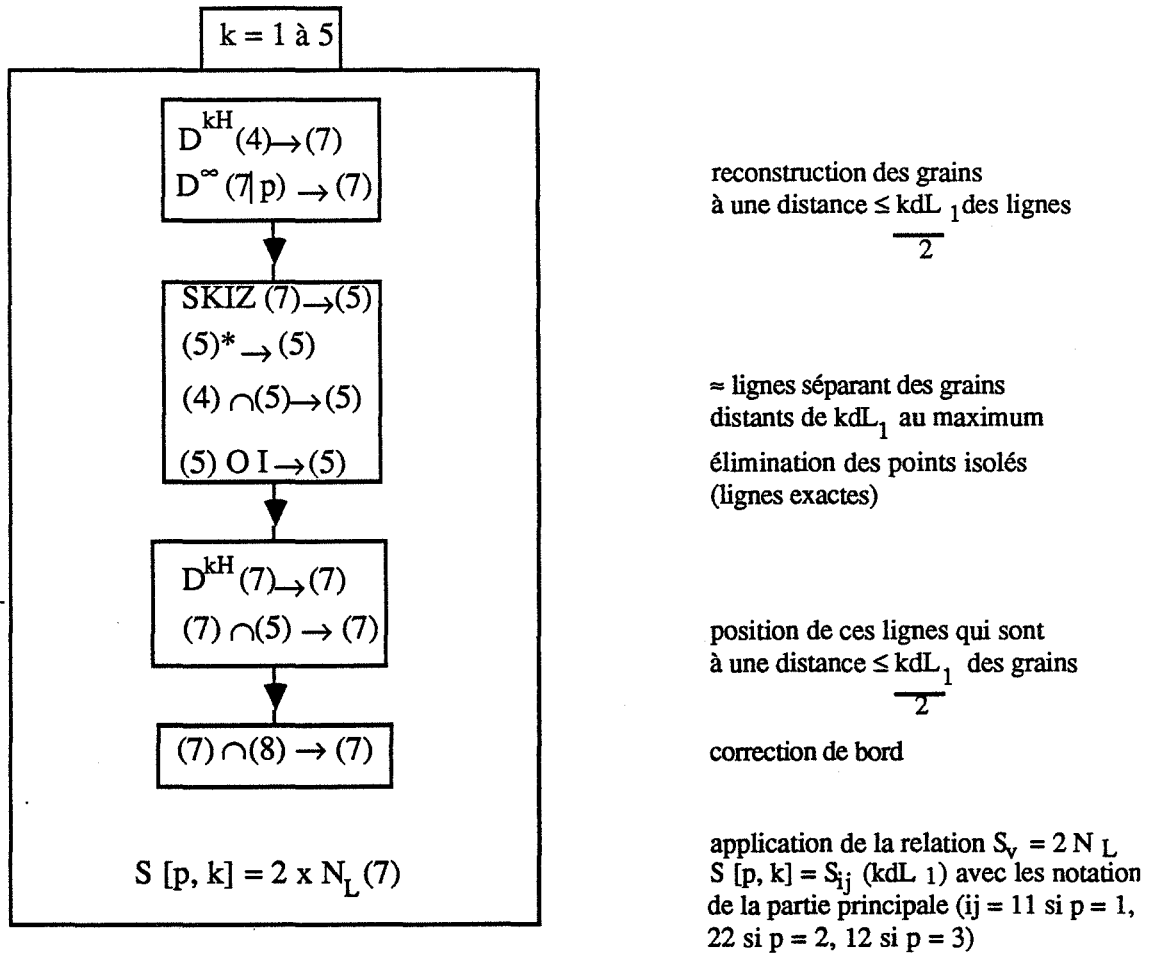
Pour chaque champ i , on charge l'image WO_3 (placée dans la mémoire (1)), puis l'image NiO (placée dans la mémoire (2)). On effectue d'abord un lissage et un calcul de l'image globale ($WO_3 + NiO$) :



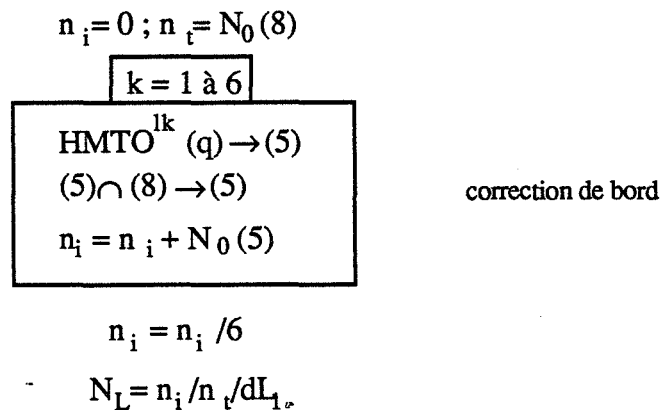
L'étude des surfaces de séparation est alors la suivante :



Nous détaillons maintenant la procédure SURFACE (p), où p est l'image des grains concernés par la séparation ((1) pour 1-1, (2) pour 2-2 et (3) pour 1-2), l'image des lignes de séparation étant stockées dans (4). Cette procédure calcule les surfaces de séparation à des distances correspondant à 2, 4, 6, 8 et 10 pixels :



Fonction $N_L (q)$:



E. ANALYSE DE LA DISTRIBUTION DE LA COMPOSITION NUMERIQUE

L'analyse est faite sur les images WO_3 (1), NiO (2) et leur réunion (3). L'opérateur entre les valeurs suivantes :

- L_C = longueur du champ
- d_{\max} = diamètre maximum des particules
- k_0 = nombre de réductions de champ

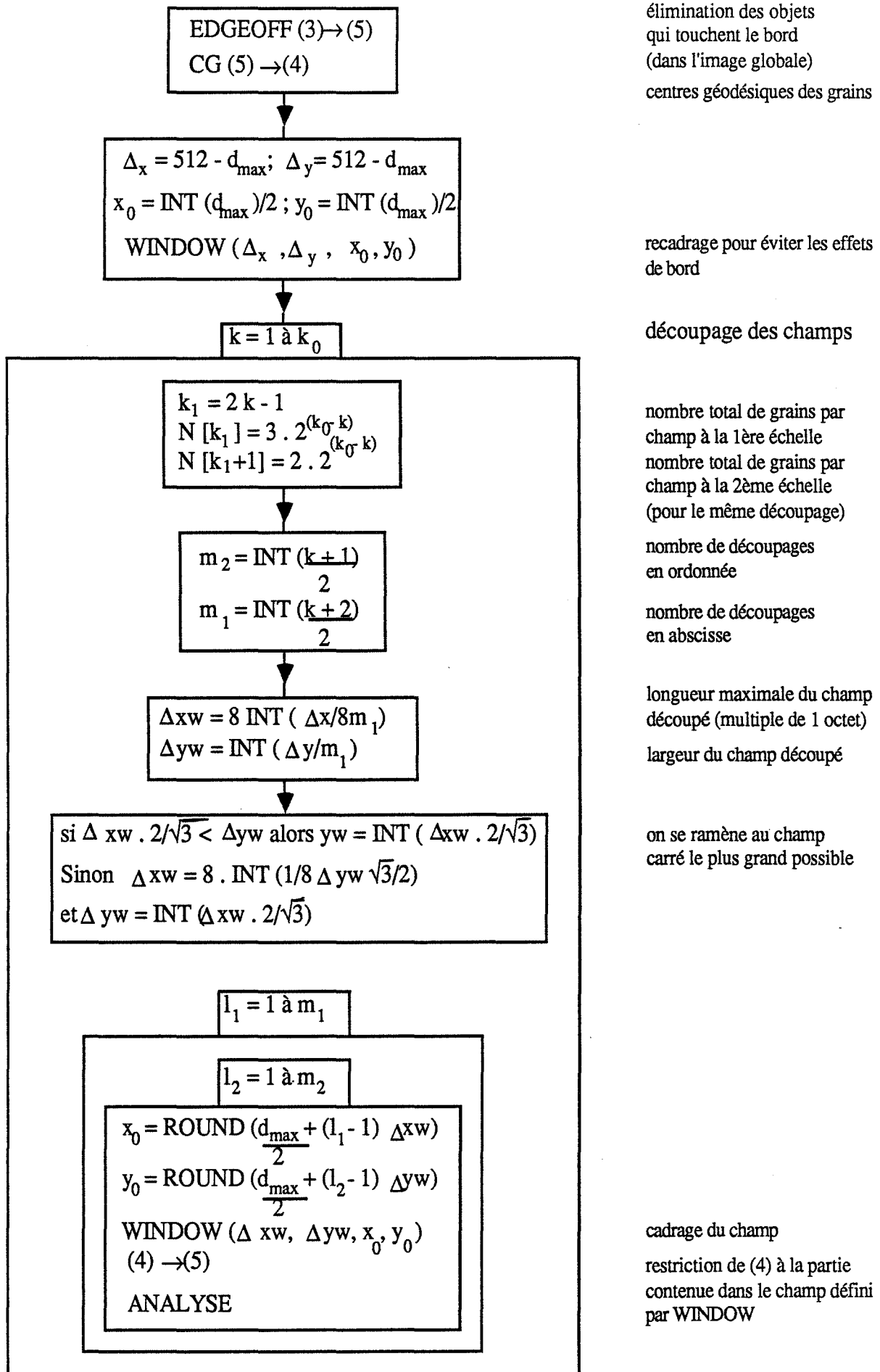
L'ordinateur calcule alors les valeurs suivantes :

$$dL_1 = \frac{L_C}{512} = \text{distance élémentaire associée à 1 pixel.}$$

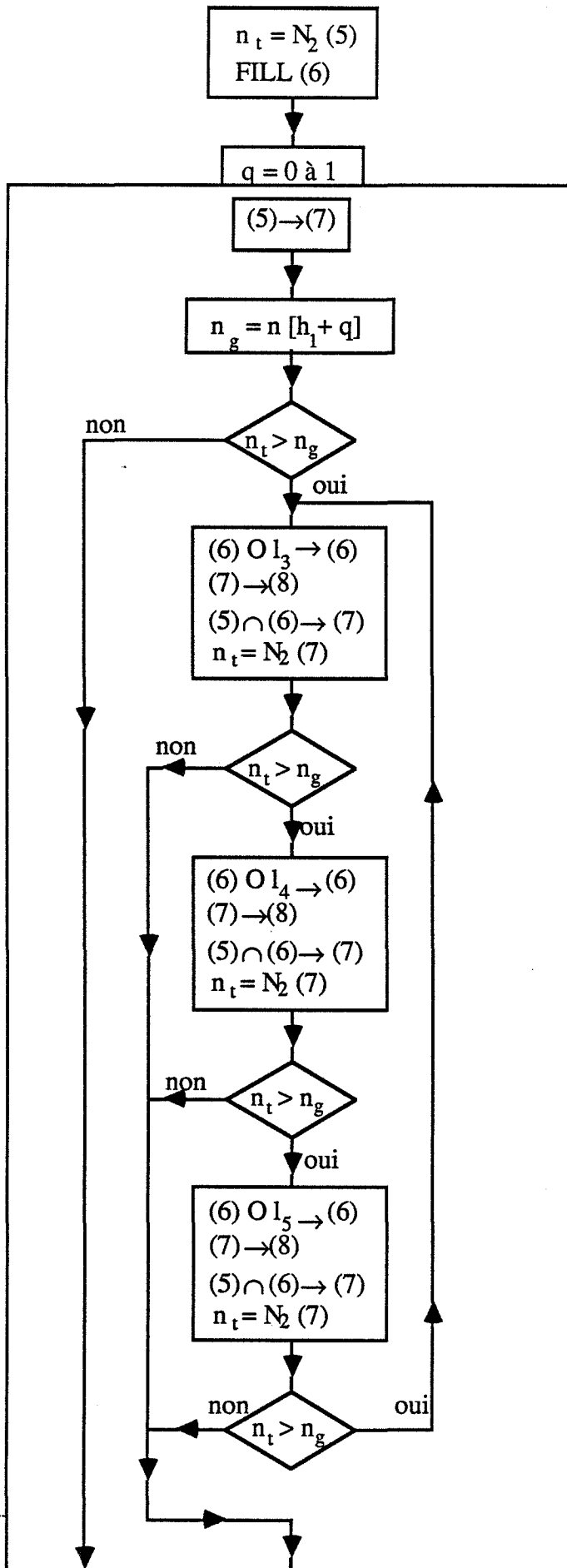
$$d_{\max} = 16 \times (1 + \text{INT} \left(\frac{d_{\max}}{16 \times dL_1} \right)) = \text{diamètre maximal en pixels (multiple de 2 octets)}$$

Pour chaque champ i , le traitement de départ (lissage des images et calcul de l'image globale) est identique à celui de l'étude des aires de séparation (§ D.).

On effectue ensuite le traitement suivant :



ANALYSE à l'intérieur d'un champ :



nombre de points dans
le champ

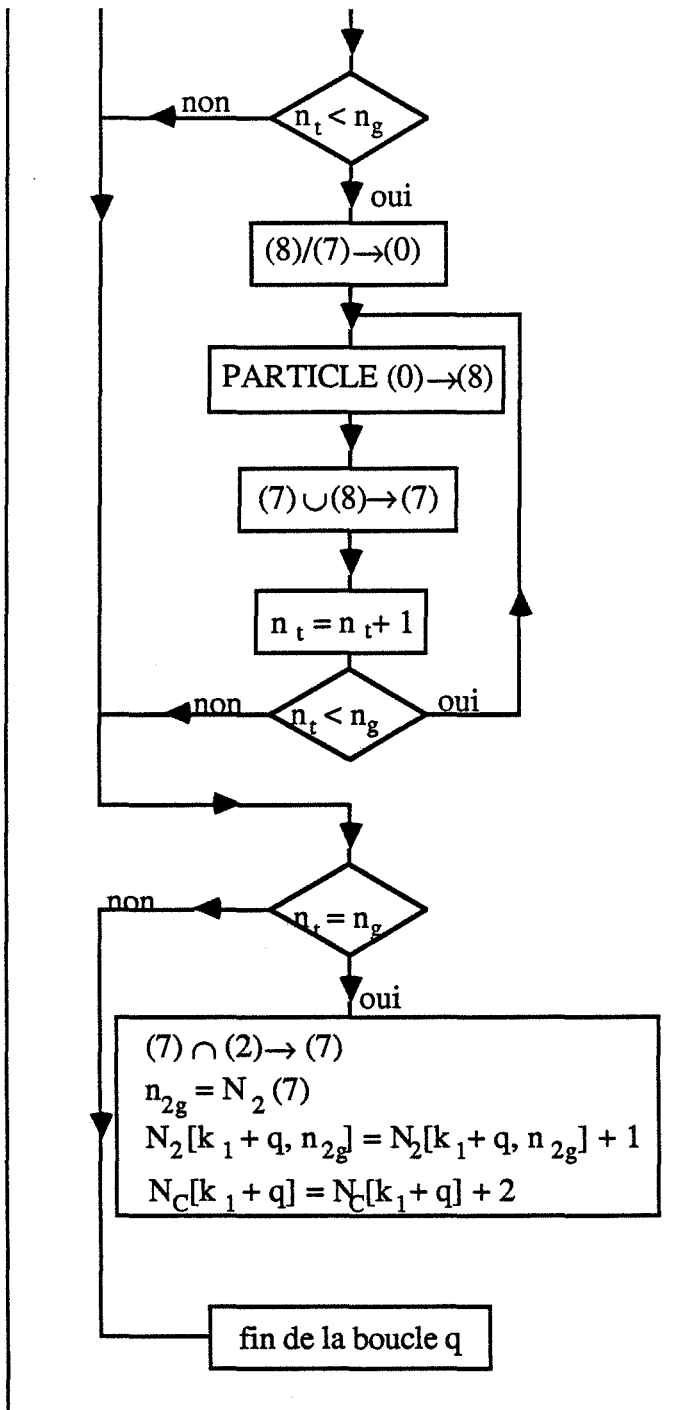
(2 échelles d'analyse
pour un découpage)

nombre de grains par champ

érosion du champ dans la
direction verticale
sauvetage de la dernière image
des centres
centres qui sont inclus dans
le champ érodé

érosion du champ dans la
1ère direction oblique

érosion du champ dans la
2ème direction oblique



traitement d'un cas où 2
points auraient été supprimés
simultanément lors d'un des
traitements précédents,
conduisant à $n_t < n_g$

points supprimés

premier point supprimé

on le rajoute

nombre de grains

$(N_C(N_2))$ dans la présentation
générale)

(N_C) dans la présentation
générale)

ANNEXE 7

**ANALYSE STATISTIQUE DE LA DISTRIBUTION DE LA
COMPOSITION NUMERIQUE DE PRELEVEMENTS A NOMBRE
DE PARTICULES CONSTANT N**

**A. CALCUL DES VARIANCES DES MESURES POUR UN
MELANGE HOMOGENE**

1. VARIANCE DE $N_p(N_2)$

Considérons la fonction $f_j(N_2)$ qui à chaque prélèvement j associe la valeur 1 si le prélèvement contient N_2 particules 2, 0 sinon. L'espérance mathématique $E(f_j(N_2))$ est égale à la probabilité $P(N_2)$ d'avoir N_2 particules 2 dans un prélèvement (§ II. éq. 16). Le nombre de prélèvements contenant N_2 particules 2 vaut :

$$N_p(N_2) = \sum_{j=1}^{N_p} f_j(N_2) \quad (1)$$

et la variance :

$$\sigma^2(N_p(N_2)) = \sum_{j=1}^{N_p} \sigma^2(f_j(N_2)) = N_p \sigma^2(f_j(N_2)) \quad (2)$$

Or $f_j(N_2)$ vaut 1 avec une probabilité $P(N_2)$ et 0 avec une probabilité $1 - P(N_2)$. Par conséquent :

$$\begin{aligned} \sigma^2(f_j(N_2)) &= P(N_2)(1 - P(N_2))^2 + (1 - P(N_2))(0 - P(N_2))^2 \\ &= P(N_2)(1 - P(N_2)) \end{aligned}$$

et donc :

$$\sigma^2(N_p(N_2)) = N_p P(N_2)(1 - P(N_2)) \quad (3)$$

2. VARIANCE DE $\sigma^2(n_2)$

Nous allons calculer la variance de l'estimateur de $\sigma^2(n_2)$ (§ II. éq. (18)).

a. CALCUL DES MOMENTS FACTORIELS

On utilise la génératrice de moments factoriels :

$$G(s^{N_2}) = E(s^{N_2}) \quad (4)$$

où s désigne une variable réelle.

Considérons la dérivée à l'ordre j de $G(s^{N_2})$:

$$G^{(j)}(s^{N_2}) = E(N_2(N_2-1)\dots(N_2-j+1)s^{N_2-j}) \quad (5)$$

Par ailleurs, si N_2 suit une loi de distribution binomiale :

$$E(s^{N_2}) = \sum_{N_2=0}^N s^{N_2} C_N^{N_2} p^{N_2} q^{N-N_2} \quad (6)$$

où p et q désignent respectivement les compositions numériques 2 et 1 dans le mélange (espérances mathématiques de n_2 et n_1). En utilisant la formule du binôme :

$$E(s^{N_2}) = (q + ps)^N \quad (7)$$

En dérivant la relation (7), on obtient une deuxième expression de $G^{(j)}(s^{N_2})$:

$$G^{(j)}(s^{N_2}) = N(N-1)\dots(N-j+1)p^j(q+ps)^{N-j} \quad (8)$$

Identifions (5) et (8) pour $s = 1$:

$$E\left(\frac{N_2!}{(N_2-j)!}\right) = \frac{N!}{(N-j)!} p^j \quad (9)$$

La relation (9) permet d'obtenir par récurrence tous les moments de la distribution de N_2 :

$$j = 1 : E(N_2) = Np$$

$$j = 2 : E(N_2(N_2-1)) = N(N-1)p^2$$

$$\text{donc : } E(N_2^2) = E(N_2) + N(N-1)p^2$$

$$E(N_2^2) = Np + N(N-1)p^2$$

$$j = 3 : E(N_2^3) = Np + 3N(N-1)p^2 + N(N-1)(N-2)p^3$$

$$j = 4 : E(N_2^4) = Np + 7N(N-1)p^2 + 6N(N-1)(N-2)p^3 + N(N-1)(N-3)p^4$$

b. CALCUL DES MOMENTS CENTRES

On appelle moment centré d'ordre k de la variable aléatoire N_2 :

$$\mu_k(N_2) = E(N_2 - E(N_2))^k$$

Les moments centrés peuvent être reliés aux moments (Mothes 1968 p. 90). En particulier, les moments centrés d'ordre 2 et 4 :

$$\mu_2(N_2) = E(N_2^2) - E^2(N_2) \quad (10)$$

$$\mu_4(N_2) = E(N_2^4) - 4E(N_2)E(N_2^3) + 6E^2(N_2)E(N_2^2) - 3E^4(N_2) \quad (11)$$

c. CALCUL DES VARIANCES

A partir des moments, on peut obtenir d'autres caractéristiques de la distribution. Par exemple :

$$\sigma^2(N_2) = \mu_2(N_2) = N p (1 - p) \quad (12)$$

La variance de n_2 est reliée à la variance de N_2 par :

$$\sigma^2(n_2) = \frac{1}{N^2} \sigma^2(N_2) \quad (13)$$

et par conséquent :

$$\sigma^2(n_2) = \frac{p(1-p)}{N}$$

Nous retrouvons ainsi la loi de Lacey (§ II. éq. 18).

On peut également exprimer la variance de $\sigma^2(N_2)$ à partir des moments centrés d'ordre 2 et 4 (Mothes 1968 p. 190) :

$$\sigma^2(\sigma^2(N_2)) = \frac{\mu_4(N_2) - \mu_2^2(N_2)}{N p} \quad (14)$$

Cette relation permet d'obtenir la variance de $\sigma^2(n_2)$ à partir de (11), (12), (13) :

$$\sigma^2(\sigma^2(n_2)) = \frac{N p (1 - p) [1 + 2 (N - 3) p (1 - p)]}{N^4 N_p} \quad (15)$$

B. ANALYSE STATISTIQUE

1. DE $\sigma^2(n_2)$

On peut faire l'analyse statistique des mesures de $\sigma^2(n_2)$ en faisant l'hypothèse que :

$$\frac{\sigma^2(n_2) - \sigma^{*2}(n_2)}{\sigma(\sigma^2(n_2))}$$

est distribué suivant une loi normale centrée réduite. On a alors, avec un facteur de confiance 95 % :

$$\sigma^{*2}(n_2) - 2\sigma(\sigma^2(n_2)) \leq \sigma^2(n_2) \leq \sigma^{*2}(n_2) + 2\sigma(\sigma^2(n_2)) \quad (16)$$

2. DE $N_p(N_2)$

La distribution des mesures de $N_p(N_2)$ n'est probablement pas symétrique autour de la valeur théorique $N_p^*(N_2)$ et l'analyse faite au § 1 ne peut plus être appliquée ici.

En revanche, la variable :

$$\sum_{N_2=0}^N \frac{[N_p(N_2) - N_p^*(N_2)]^2}{N_p^*(N_2)}$$

suit une loi du χ^2 à $N - 1$ degrés de liberté (Mothes 1968 p. 148). On peut alors faire un test de raccordement global des valeurs expérimentales $N_p(N_2)$ à la loi binomiale théorique.

NOTATIONS

N.B. les notations concernant les opérateurs et paramètres spécifiques à l'analyse d'images sont rassemblées au début de l'Annexe 6.

NOTATIONS GENERALES

$E(\alpha)$: espérance mathématique de la variable α .
$\sigma(\alpha)$: écart-type de la variable α .
$\overline{\alpha}$: valeur moyenne de α , calculée sur tous les objets de l'espace d'échantillonnage.
α^*	: valeur de α calculée à l'aide d'un modèle.
R^k	: espace d'échantillonnage de dimension k .

PARAMETRES STEREOLOGIQUES

N_k	: nombre de connexité dans R^k .
L_k	: longueur dans R^k .
A	: aire dans R^2 .
S	: aire dans R^3 .
V	: volume dans R^3 .
K	: intégrale de courbure moyenne d'une surface dans R^3 .
C	: intégrale de courbure moyenne d'une ligne dans R^3 .
N_P	: nombre de connexité par point dans R^0 .
N_L	: nombre de connexité par unité de longueur dans R^1 .
N_A	: nombre de connexité par unité de surface dans R^2 .
N_V	: nombre de connexité par unité de volume dans R^3 .
L_L	: longueur par unité de longueur dans R^1 .
L_A	: longueur par unité de surface dans R^2 .
L_V	: longueur par unité de volume dans R^3 .
A_A	: aire par unité de surface dans R^2 .
S_V	: aire par unité de volume dans R^3 .
V_V	: volume par unité de volume dans R^3 .
K_V	: intégrale de courbure moyenne par unité de volume dans R^3 (surface).
C_V	: intégrale de courbure moyenne par unité de volume dans R^3 (ligne).
L_1	: intercept moyen dans R^1 .
L_2	: périmètre moyen dans R^2 .
\overline{A}	: aire moyenne dans R^2 .
\overline{S}	: aire moyenne dans R^3 .
\overline{V}	: volume moyen dans R^3 .
$\overline{K}, \overline{C}$: intégrales de courbure moyenne dans R^3 .
M^t	: aire totale de projection sur R^2 .

D_3^t	: longueur totale de projection dans R^3 sur R^1 .
D_2^t	: longueur totale de projection dans R^2 sur R^1 .
M	: aire de projection sur R^2 .
D_3	: longueur de projection dans R^3 sur R^1 .
D_2	: longueur de projection dans R^2 sur R^1 .
\bar{M}	: aire moyenne en projection sur R^2 .
\bar{D}_3 (ou \bar{D})	: diamètre moyen dans R^3 .
\bar{D}_2	: diamètre moyen dans R^2 ou diamètre de Ferret.
dL_1	: distance entre points d'échantillonnage dans R^1 .
dL_2	: distance entre droites d'échantillonnage dans R^2 .
dL_3	: distance entre plans d'échantillonnage dans R^3 .
dA_2	: aire élémentaire dans R^2 .
dA_3	: aire élémentaire dans un plan perpendiculaire à R^1 .
dV	: volume élémentaire.

PARAMETRES DESCRIPTIFS DU SYSTEME GRANULAIRE

(NON EMPILE)

N	: nombre de grains.
V	: volume total des grains.
$\bar{V} = V/N$: volume granulaire moyen.
\bar{D}	: diamètre moyen des grains.
\bar{R} (ou R) = $\bar{D}/2$: rayon moyen des grains.
N_i	: nombre de grains de l'espèce i .
V_i	: volume total de l'espèce i .
$\bar{V}_i = V_i/N_i$: volume granulaire de l'espèce i .
\bar{D}_i	: diamètre moyen des grains de l'espèce i (le contexte permet de savoir si l'indice représente l'espèce granulaire ou la dimension de l'espace d'échantillonnage).
\bar{R}_i (ou R_i) : $\bar{D}_i/2$: rayon moyen des grains de l'espèce i .
$k_i = R_i/R_j$: rapport de taille (mélange binaire).
n_i	: fraction numérique de grains de l'espèce i .
v_i	: fraction volumique de grains de l'espèce i .
s_i	: fraction surfacique de grains de l'espèce i .

PARAMETRES CARACTERISTIQUES DE L'EMPILEMENT

V^a	: volume apparent de l'empilement.
$\bar{V}^a = V^a/N$: volume granulaire apparent.
e	: coefficient d'encombrement d'un grain.
$N_V = N/\bar{V}^a$: nombre de grains par unité de volume.
$C = V_V$: compacité.
$\emptyset = 1 - C$: porosité.

z (ou z)	: coordianance moyenne des grains i .
d	: distance de séparation entre grains (variable).
$N(d)$: nombre de paires de grains par u.d.v. séparés par une distance comprise entre d et $d + dd$.
$N_c = N(0)$: nombre de contacts par u.d.v.
$S(d)$: aire de séparation par u.d.v. à une distance inférieure à d .
$S_c = S(0)$: aire de contact par unité de volume.
$\overline{V_i^a}$: volume granulaire apparent de l'espèce i pure.
$\overline{V_i^a} = (\partial V^a / \partial N_i)_{N_j}$: volume granulaire (apparent) partiel de l'espèce i dans le mélange.
e_i	: coefficient d'encombrement d'un grain de l'espèce i .
$\overline{z_i}$ (ou z_i)	: coordianance moyenne de l'espèce i .
$\overline{z_{ij}}$ (ou z_{ij})	: coordianance partielle moyenne.
t_{ij}	: fraction de contacts i - j .
$N_{ij}(d)$: nombre de paires de grains i et j par u.d.v. séparés par une distance comprise entre d et $d + dd$.
$N_{ij} = N_{ij}(0)$: nombres de contacts i - j par u.d.v.
$S_{ij}(d)$: aire de séparation par u.d.v. entre grains i et grains j , à une distance inférieure à d .
$S_{ij} = S_{ij}(0)$: aires de contact i - j par u.d.v.
$h(x)$: composition (numérique, volumique...) mesurée en un point x .
$P = E(h(x))$: espérance mathématique de la composition (numérique, volumique) mesurée.
$p = E(n_2)$: espérance mathématique de la composition numérique mesurée.
σ^{*2}	: variance de la composition pour un mélange homogène.
σ_0^2	: variance de la composition pour un mélange à ségrégation totale.
$N_p(N_2)$: nombre de prélèvements contenant N_2 grains 2.
$N_p^*(N_2)$: nombre de prélèvements contenant N_2 grains 2 pour un mélange homogène.
$N_{p0}(N_2)$: nombre de prélèvements contenant N_2 grains 2 pour un mélange à ségrégation totale.
N_p	: nombre de prélèvements.
I	: intensité de ségrégation.
χ	: échelle de ségrégation.
$Cov(r)$: covariance de la composition à la distance r .
$C(r)$: covariance non centrée de la composition à la distance r .
$R(r)$: coefficient de corrélation de la composition à la distance r .

PARAMETRES D'ANALYSE

l	: intercept élémentaire dans R^1 .
N_c	: nombre de champs.
$N_c(N_2)$: nombre de champs contenant N_2 grains 2.
Σ	: section 2 D.
C	: champ dans la section.
m	: nombre de champs analysés.

GLOSSAIRE

- Biais :** écart entre l'espérance mathématique d'un estimateur et la valeur réelle de la grandeur estimée.
- Connexe :** se dit d'un ensemble Y tel que pour toute paire de points x_1 et x_2 de Y , il existe au moins un chemin continu reliant x_1 à x_2 et totalement inclus dans Y .
- Convexe :** se dit d'un ensemble Y tel que pour toute paire de points x_1 et x_2 de Y , le segment $[x_1, x_2]$ est totalement inclus dans Y .
- Deltaèdre :** polyèdre dont toutes les faces sont des triangles équilatéraux.
- Élément d'échantillonnage :** élément géométrique (point, droite, plan, cube...) à l'aide duquel on analyse un ensemble Y (par projection ou par intersection).
- Espace d'échantillonnage :** réseau d'éléments d'échantillonnage.
- Estimateur :** variable aléatoire utilisée pour estimer la valeur d'une grandeur donnée.
- Genre :** on appelle genre d'une surface le nombre maximal de coupures que l'on peut faire le long d'une courbe simple de telle façon que la surface obtenue soit encore connexe (voir Coster et Chermant 1985).
- Homéomorphe :** deux ensembles sont dits homéomorphes si en les déformant de manière continue et réversible on peut les faire coïncider.
- Homotopique :** se dit d'une transformation qui conserve le nombre de connexité.
- Idempotente :** se dit d'une transformation f qui vérifie, pour tout Y , $f(f(Y)) = f(Y)$.
- Partition :** découpage de l'espace en éléments disjoints dont la réunion forme l'espace tout entier.

BIBLIOGRAPHIE

- ADAMS D.J., MATHESON A.J. - J. Chem. Phys. 1972 ; 56 : 1989
- AMMI M., BIDEAU D., TROADEC J.P. - J. Phys. D (Appl. Phys.) 1987 ; 20 (4) : 424
- BEN AIM R. - Thèse, Université de Nancy 1970
- BENENATI R.F., BROSILOW C.B. - Am. Inst. Chem. Engrs. J. 1962 ; 8 : 359
- BENNETT C.H. - J. Appl. Phys. 1972 ; 43 : 2727
- BERNAL J. D. - Proc. Roy. Soc. 1964 ; A 280 : 299
- BERNAL J.D., MASON G. - Nature 1960 ; 188 : 910
- BERNAL J.D., CHERRY I.A., FINNEY J.L., KNIGHT K.R. - J. Phys. E 1970 ; 3 : 388
- BERRYMAN J.G. - Phys. Rev. 1983 ; A 27 : 1053
- BIDEAU D. - Thèse, Université de Rennes I 1983
- BIDEAU D., TROADEC J.P. - J. Phys. 1984 ; 17 : L731
- BIDEAU D., TROADEC J.P., LEMAITRE J., OGER L. - Physics of finely divided matters (Springer) 1985 ; 76
- BIDEAU D., GERVOIS A., OGER L., TROADEC J.P. - J. de Phys. 1986 ; 47 : 1967
- BROWN R.L., HAWKSLEY P.G.W. - Nature 1946 ; 157 : 585
- CHAN S.K., NG K.M. - Chem. Eng. Commun. 1986 ; 48 : 4
- CHERMANT J.L., COSTER M., JERNOT J.P. - Mem. Etudes Sci. Rev. Metall. 1984 ; 81 (1) : 5
- CLARKE A.S., WILEY J.D. - Phys. Rev. B (Condens. Matter.) 1987 ; 35 (14) : 7350
- COSTER M., CHERMANT J.L. - Précis d'analyse d'images (ed. du C.N.R.S.) 1985
- COXETER H.S.M. - Illinois J. Math. 1958 ; 2 : 746
- CRUZ-ORIVE L.M. - J. Micr. 1980 ; 120 : 15
- DANCKWERTS P.V. - Appl. Sci. Res. 1953 ; A 3 : 279
- DEBBAS S., RUMPF H. - Chem. Eng. Sci. 1966 ; 21 : 583
- DE HOFF R.T., RHINES F.N. - Quantitative microscopy (Mac Graw Hill, New York) 1968
- DELAUNAY B.N. - Sov. Math. 1961 ; 2 : 812

- DIXMIER M. - J. Physique 1978 ; 39 : 873
- DODDS J.A. - Nature 1975 ; 256 : 187
- DODDS J.A. - J. Coll. Int. Sci. 1980 ; 77 (2) : 317
- DODDS J.A., KUNO H. - Nature 1975 ; 266 : 614
- EPSTEIN N., YOUNG M.J. - Nature 1962 ; 196 : 885
- ERGUN S., ORNING A.A. - Ind. Chem. Eng. 1949 ; 41 : 1179
- FIES J.C. - Thèse, Université de Strasbourg 1978
- FINNEY J.L. - Proc. Roy. Soc. Lond. 1970 ; A319 : 479
- FINNEY J.L., GOTOH K. - Nature 1974 ; 252 : 202
- FINNEY J.L. - Nature 1977 ; 266 : 309
- FROST H.J., RAJ R. - J. Am. Cer. Soc. 1982 ; 65 (2) : C-19
- FURNAS C.C. - U.S. Bur. Mines Bull. 1929 ; 307
- GARDNER E. - J. Phys. 1985 ; 46 (10) : 1655
- GELLATLY B.J., FINNEY J.L. - J. non-Cryst. Sol. 1982 ; 50 : 313
- GOTOH K., FINNEY J.L. - Nature 1974 ; 252 : 202
- GOTOH K., NAKAGAWA M., FURUUCHI M., YOSHIGI A. - J. Chem. Phys. 1986 ; 85 (5) : 3078
- GUNDERSEN H.J.G., JENSEN E.B. - J. Micr. 1983 ; 131 : 291
- GUNDERSEN H.J.G., JENSEN E.B. - J. Micr. 1985 ; 138 : 127
- GUNDERSEN H.J.G., JENSEN E.B. - J. Micr. 1987 ; 147 : 229
- HADWIGER H. - Vorlesung über Inhalt, Oberfläche und Isoperimetrie (Springer Verlag, Berlin) 1957
- HAPPEL J. - Ind. Eng. Chem. 1949 ; 41 : 1161
- HAUGHEY D.P., BEVERIDGE G.S.G. - Chem. Eng. Sci. 1966 ; 21 : 905
- HAUGHEY D.P., BEVERIDGE G.S.G. - Can. J. Chem. Eng. 1969 ; 47 : 130
- HERBIG R., GOTTSCHALK I. - J. Powd. Bulk Sol. Technol. 1986 ; 10 (2) : 7
- HOGENDIJK M.J. - Philips Res. Rep. 1963 ; 18 : 109

- HOPPE 1874 Cité dans Sloane N. - Pour la science 1984 ; mars : 44
- JEULIN D. - Thèse, E.N.S. Mines de Paris 1979
- JODREY W.S., TORY E.M. - Powder Tech. 1981 ; 30 : 111
- KAUSCH H.H., FESKO D.G., TSCHOEGL N.W. - J. Coll. Int. Sci. 1971 ; 37 : 603
- KING F.H. - 19th Ann. Report, U.S. Geol. Surv. 1897-98 ; 67
- KUNO H. - Jap. Soc. Pow. Met. 1972 ; 19 : 85
- LACEY P.M.C. - Trans. Inst. Chem. Eng. 1943 ; 21 : 53
- LACEY P.M.C. - J. Appl. Chem. 1954 ; 4 : 257
- LANTUEJOUL C. - Micr. Acta 1980 ; 54 : 266
- LEMAITRE J. - Thèse, Université de Rennes I 1985
- LEVA M. - Fluidization (Mac Graw Hill) 1959
- MAC GEARY R.K. - J. Am. Cer. Soc. 1961 ; 44 : 513
- MACRAE J.C. - Brit. J. Appl. Phys. 1961 ; 12 : 164
- MASON G. - Discuss. Faraday Soc. 1967 ; 43 : 75
- MASON G. - Nature 1968 ; 217 : 733
- MATHERON G. - Random sets and integral geometry (J. Wiley) 1975
- MATHESON A.J. - J. Phys. C 1974 ; 7 : 2569
- MEDVEDEV N.N., NABERUKHIN Y.I. - Zh. Strukt. Khim. 1985 ; 26 (3) : 59
- MEIJERING J.L. - Philips Res. Rep. 1958 ; 8 : 609
- MELDAU R., STACH E. - J. Inst. Fuel 1934 ; 7 : 336
- MILES R.E. - J. Micr. 1976 ; 107 : 211
- MILES R.E. - Lecture Notes in Biomathematics (Springer) 1978a ; 23 : 115
- MILES R.E. - J. Micr. 1978b ; 113 : 257
- MILES R.E. - J. Micr. 1985 ; 138 : 115
- MOTHES J. - Prévisions et décisions statistiques dans l'entreprise (Dunod) 1968
- NIKOLENKO A.N., KOVAL'CHENKO M.S. - Poroshk. Metall. 1986 ; 1 : 30
- OGER L. - Thèse, Université de Rennes I 1987

- OGER L., TROADEC J.P., BIDEAU D., DODDS J.A., POWELL M.J. - *Powd. Tech.* 1986 ; 46 (2-3) : 121
- OMAN A.O., WATSON K.M. - *Natl. Petrol. News* 1944 ; 36 : R 795
- OUCHIYAMA N., TANAKA T. - *Ind. Eng. Chem. Fundam.* 1986 ; 25 (1) : 125
- PERRY J.H. - *Chem. Eng. Handbook* (4e ed.) 1963 ; 21-35
- POMEAU Y., SERRA J. - *J. Micr.* 1985 ; 138 : 179
- POOLE K.R., TAYLOR R.F., WALL G.P. - *Trans. Inst. Chem. Eng.* 1964 ; 42 : T 305
- POWELL M.J. - *Powd. Tech.* 1980 ; 25 : 45
- QUICKENDEN T.I., TAN G.K. - *J. Coll. Int. Sci.* 1974 ; 48 (3) : 382
- RAHMAN A. - *J. Chem. Phys.* 1966 ; 45 : 2585
- ROCHOWIECHI A. - *Powd. Tech.* 1981 ; 718
- ROPITAL F. - Thèse, E.N.S. Mines de Saint-Etienne 1984
- ROUILLE L. - Rapport de projet, E.N.S. Mines de Saint-Etienne, dept. Génie des Procédés mars 1988
- RUBINSTEIN M., NELSON D.R. - *Phys. Rev.* 1982 ; B 26 : 6254
- RUTGERS R. - *Nature* 1962 ; 193 : 465
- SCHLUESSLER K.H., WALTER L. - *Part. Char.* 1986 ; 3 (3) : 129
- SCHOFIELD C. - *Trans. Instn. Chem. Engrs.* 1970 ; 48 : T 28
- SCOTT G.D. - *Nature* 1960 ; 188 : 908
- SCOTT G.D. - *Nature* 1962 ; 194 : 956
- SCOTT G.D., CHARLESWORTH A.M., MAK M.K. - *J. Chem. Phys.* 1964 ; 40 : 611
- SCOTT G.D., KILGOUR D.M. - *Br. J. Appl. Phys. Ser. 2* 1969 ; 2 : 863
- SERRA J. - *Image analysis and mathematical morphology* (Ac. Press) 1982
- SMITH W.O., FOOTE P.D., BUSANG P.F. - *Phys. Rev.* 1929 ; 34 : 1271
- SOHN H.Y., MORELAND C. - *Can. J. Chem. Eng.* 1968 ; 46 : 162
- SOMMER K. - *Aufber - Tech.* 1976 ; 11 : 549
- STANGE K - *Chem. Ing. Tech.* 1954 ; 26 : 331
- STEINOUR H.H. - *Ind. Eng. Chem.* 1944 ; 36 : 618

STERIO D.C. - J. Micr. 1983 ; 134 : 127

SUZUKI M., OSHIMA T. - Powd. Tech. 1983 ; 35 : 159

TOO J.R., FAN L.T., RUBISON R.M. - Powder Tech. 1984 ; 712

TORY E.M., COCHRANE N.A., WADDELL S.R. - Nature 1968 ; 220 : 1023

TORY E.M., CHURCH B.H., TAM M.K., RATNER M. - Can J. Chem. Eng. 1973 ; 51 : 484

UHLER W., SCHILLING R. - J. Phys. C 1985 ; 18 : L 979

UNDERWOOD E.E. - Quantitative stereology (Addison-Wesley) 1970

VISSCHER W.M., BOLSTERLI M. - Nature 1972 ; 239 : 504

VOLOSHIN V.P., MEDVEDEV N.N., NABERUKHIN Y.I. - Zh. Strukt. Khim. 1985 ; 26 (3) : 77

VORONOI G.F. - J. Reine Angew Math. 1908 ; 134 : 198

WADELL H. - J. Geol. 1935 ; 43 : 250

WADSWORTH J. - N.R.C. Report (Canada) 1960 ; MT - 41

WAKEMAN R.J. - Powd. Tech. 1975 ; 11 : 297

WESTMAN A.E.R., HUGILL H.R. - J. Am. Cer. Soc. 1930 ; 13 (10) : 767

WISE M.E. - Philips Res. Rep. 1952 ; 7 (5) : 321

WYLLIE M.R.J., GREGORY A.R. - I.E.C. 1955 ; 47 (7) : 1379

YERAZUNIS S., CORNELL S.W., WINTNER B. - Nature 1965 ; 499 : 835

ZIMAN J.M. - Models of disorder (Cambridge Univ. Press) 1979

RESUME :

L'étude des empilements de grains est importante pour la compréhension des propriétés des milieux granulaires. En particulier, la connaissance des aires de contact entre grains est utile pour décrire la cinétique d'une réaction solide-solide.

Nous avons mis au point une méthode d'étude originale des caractéristiques d'un empilement de grains, fondée sur l'analyse d'images de sections de l'empilement enrobé dans une résine. A l'aide de cette méthode, nous avons développé deux protocoles d'analyse spécifiques. Le premier permet de définir complètement l'état d'homogénéité d'un mélange, en évaluant à la fois l'intensité et l'échelle de ségrégation. Le second permet d'estimer les nombres de contacts et les aires élémentaires de contact entre grains dans un mélange.

La méthode a été appliquée à l'étude de mélanges de grains de WO_3 et de NiO.

L'analyse de l'homogénéité a montré que l'agitation à l'aide d'un mélangeur "Turbula" conduisait à des mélanges peu homogènes. Nous avons pu atteindre un degré d'homogénéité plus avancé d'une part en appliquant un mouvement d'agitation moins régulier, d'autre part en utilisant un ajout de liquide. Cependant, le mélangeage par agitation présente toujours une tendance à la démixtion, caractérisée par l'observation d'une ségrégation à large échelle après quelques heures d'agitation. L'analyse des contacts nous a permis de comparer les valeurs expérimentales des nombres de contacts dans nos mélanges avec des valeurs théoriques données pour des empilements de sphères. Certains écarts au modèle ont pu être expliqués par les caractéristiques particulières du système granulaire utilisé. Enfin, l'analyse de l'influence du mode de construction sur les caractéristiques de l'empilement a été effectuée, et comparée aux résultats d'une simulation numérique. Nous avons ainsi pu montrer les effets d'un mode de construction collectif sur les caractéristiques de l'empilement.

MOTS CLES :

Analyse d'images, contact, empilement, homogénéité, milieux granulaires, réactivité, ségrégation, solide, surface de contact.