



**Etude de la fragmentation de milieux granulaires :
modélisation numérique à l'échelle du grain et analyse
expérimentale du broyage de matières minérales et
végétale**

Nicolas Blanc

► **To cite this version:**

Nicolas Blanc. Etude de la fragmentation de milieux granulaires : modélisation numérique à l'échelle du grain et analyse expérimentale du broyage de matières minérales et végétale. Génie civil. Université Montpellier, 2018. Français. NNT : 2018MONT039 . tel-02096278

HAL Id: tel-02096278

<https://theses.hal.science/tel-02096278>

Submitted on 11 Apr 2019

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

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

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

En Mécanique et Génie Civil

École doctorale Information Structures Systèmes (I2S)

Unité de recherche IATE

Étude de la fragmentation de milieux granulaires : Modélisation numérique à l'échelle du grain et analyse expérimentale du broyage de matières minérales et végétale

Présentée par Nicolas BLANC

Le 18 octobre 2018

Sous la direction de Jean-Yves DELENNE
et l'encadrement de Claire MAYER et Xavier Frank

Devant le jury composé de

Jean-Noël ROUX, Ingénieur Général des Ponts, des Eaux et Forêts, Laboratoire Navier, Paris

Pierre BREUL, Professeur, Université de Clermont-Ferrand

Vincent RICHEFEU, Maître de Conférences, Laboratoire 3SR, Grenoble

Fahrang RADJAÏ, Directeur de Recherche CNRS, Laboratoire LMGC, Montpellier

Christine FRANCES, Directeur de Recherche CNRS, Laboratoire LGC, Toulouse

Jean-Yves DELENNE, Directeur de Recherche INRA, Laboratoire IATE, Montpellier

Claire MAYER, Ingénieur de Recherche INRA, Laboratoire IATE, Montpellier

Xavier FRANK, Chargé de Recherche INRA, Laboratoire IATE, Montpellier

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Présidente du jury

Directeur de thèse

Co-encadrant de thèse

Co-encadrant de thèse



UNIVERSITÉ
DE MONTPELLIER

Etude de la fragmentation de milieux granulaires : Modélisation numérique à l'échelle du grain et analyse expérimentale du broyage de matières minérales et végétale

Nicolas Blanc

Remerciements

Merci à BPI France qui en finançant ce projet l'a rendu possible. Merci également au partenaire industriel pour l'aide que j'ai reçu et pour les échanges très enrichissants que j'ai pu avoir tout au long du projet.

Je tiens à remercier **Jean-Noël Roux** et **Pierre Breul** pour avoir accepté d'être rapporteur ainsi que pour leur remarques et corrections sur ce manuscrit ainsi que pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. Je remercie également les rapporteurs **Christine Frances**, **Vincent Richefeu** et **Fahrang Radjaï** pour leurs intéressantes questions et discussions durant la soutenance.

Je remercie également mes trois encadrants **Jean-Yves Delenne**, **Claire Mayer** et **Xavier Frank** pour les nombreuses idées qu'ils ont pu me donner et l'investissement dont ils ont témoigné tout au long de ce projet. La bonne humeur et la positivité qu'ils ont apportés ont également été d'une grande aide.

Je tiens à remercier **Pierre-Alann Cablé** pour la grande quantité de travail qu'il a fourni durant son stage. Sans lui, ce manuscrit n'aurait pas pu être aussi dense et sans lui l'ambiance n'aurait pas été la même !

Je remercie **Cécile Sotto** pour l'aide qu'elle m'a apporté sur ce projet. Je remercie également **Cécile Barron**, **Frédéric Mabile**, **Denis Cassan** et **Georges Maraval** pour toutes les explications qu'ils ont pu me donner.

Je tiens à remercier **Brigitte Folche** ainsi que tout les membres de IATE qui ont croisés mon chemin durant ces 3 années.

Je remercie également toutes les personnes qui ont partagés avec moi ce grand bureau, du thé, du café et beaucoup de rires : **Bettina**, **Coline**, **Andy**, **Guilherme**, **Lydie**, **Amélie & Amélie**, **Karine**, **Florian**, **Adriaan**.

Toutes les personnes qui ont fait passés ces années dans la bonne humeur : **Daniel**, **Grégoire**, **Valentin**, **Marianne**, **Justine**, **Anaïs**, **Chutima**, **Véro**, **Yannick**, **Sébastien**, **Laure**.

Je remercie tout spécialement ma voisine de bureau **Karsta** avec qui j'ai pu avoir de longues discussions passionnantes (plus ou moins sérieuses) sur tout les sujets. Je la remercie également pour son oreille attentive et sa voix positive qui ont été d'une grande aide (au bureau ou sur un mur d'escalade).

Merci pour tout le soutien qu'a pu m'apporter ma famille dans ces moments qui ont pu être parfois difficile.

Et enfin, merci à **Alexia** pour avoir toujours été présente et m'avoir toujours soutenu durant toute la durée de cette thèse.

Table des matières

Introduction générale	9
1. État de l'art	13
Introduction	14
1.1. Hétérogénéité de la matière première	14
1.1.1. Matière minérale et lignocellulosique	14
1.1.2. Hétérogénéité des matériaux granulaires	18
1.2. Fragmentation de la matière	23
1.2.1. Modes de rupture à l'échelle du défaut	23
1.2.2. Probabilité de Weibull	25
1.2.3. Initiation de la rupture quasi-statique dans un grain	26
1.2.4. Essais d'impact	28
1.2.5. Modélisation numérique du comportement et de la rupture	31
1.3. Comportement à l'échelle de plusieurs grains	35
1.3.1. Interactions à l'échelle du grain	35
1.3.2. Comportement à l'échelle du lit de poudre	38
1.3.3. Lois de broyages	41
1.4. Technologies de broyages	43
1.4.1. Les broyeurs à compression	43
1.4.2. Les broyeurs à impacts	44
1.4.3. Broyeur à media broyant	45
1.4.4. Conclusion et choix de broyeur	49
Conclusion	50
2. Modélisation numérique de la fragmentation à l'échelle du grain	51
Introduction	52
2.1. Méthode Périodynamique	52
2.1.1. Principe de la méthode	53
2.1.2. Périodynamique bond-based	54
2.1.3. Discrétisation	55
2.2. Compression quasi-statique d'une particule	57
2.2.1. Description de l'essai	57
2.2.2. Cas d'une particule sans défaut	58
2.2.3. Rupture d'une particule en présence de défauts	63
2.2.4. Identification des fragments	68
2.2.5. Effet du seuillage sur le nombre de fragments	70
2.3. Effet de la taille des particules sur la fragmentation	72
2.3.1. Paramètres de l'étude paramétrique	72
2.3.2. Fracturation des plus petites particules	73
2.3.3. Distribution de tailles de fragments	75
2.3.4. Longueurs de fissures	76

2.3.5. Probabilité de survie d'une particule	76
2.3.6. Contrainte à la rupture	79
Conclusion	80
3. Fracturation par impact	81
Introduction	82
3.1. Fracturation par impact de disques	82
3.1.1. Description de l'essai	82
3.1.2. Variation de l'énergie de l'impacteur	83
3.1.3. Variation de la vitesse de l'impacteur à énergie constante	90
3.2. Effet de la forme des particules	95
3.2.1. Géométrie des particules	96
3.2.2. Description de l'essai	96
3.2.3. Résultats	97
Conclusion	102
4. Cinétiques de broyage du quartz dans un broyeur à impact	103
Introduction	104
4.1. Matériel & Méthodes	104
4.1.1. Matière première	104
4.1.2. Protocole de broyage	104
4.1.3. Caractérisation de la granulométrie	106
4.1.4. Mesure de la surface spécifique par BET	108
4.1.5. Bilan Energétique	108
4.2. Cinétiques de broyage	109
4.2.1. Evolution de la granulométrie	110
4.2.2. Evolution de la surface spécifique	111
4.2.3. Concordance avec les modèles de Kick, Bond et Rittinger	114
4.2.4. Modification du modèle Rittinger	115
4.3. Effet de l'agglomération sur le broyage	118
4.3.1. Mise en évidence de l'agglomération	118
4.3.2. Effet de colmatage du broyeur	119
Conclusion	121
5. Comparaison de broyeurs à l'échelle du procédé	123
Introduction	124
5.1. Matériel & Méthodes	124
5.1.1. Matières premières	124
5.1.2. Caractérisation des matières premières	125
5.1.3. Technologies de broyage utilisées	129
5.1.4. Caractérisation des poudres broyées par granulométrie laser	132
5.2. Broyages des matériaux purs	135
5.2.1. Comparaison des différents matériaux	136
5.2.2. Comparaison entre les différents broyeurs	140
5.3. Cobroyages	143
5.3.1. Cobroyage dans la littérature	143
5.3.2. Cobroyage Minéral/Paille	145
5.3.3. Production d'une poudre cobroyée	152

5.3.4. Adjuvant de broyage	155
Conclusion	157
Conclusion et Perspectives	159
A. Annexe 1 : Déconvolution de distributions granulométrique	163
A.1. Introduction	163
A.2. Comminution of wheat straw	164
A.3. Deconvolution of grading curves	164
A.4. Analysis	166
A.5. Concluding remarks and perspectives	168
B. Annexe 2 : Bilans de populations	169
C. Annexe 3 : Figures complémentaires du chapitre 5	171
D. Annexe 4 : Vue d'ensemble du broyeur Femag	173
Table des figures	181
Liste des tableaux	184
Bibliographie	185

Introduction générale

La comminution consiste en la réduction granulométrique des particules constitutives d'un matériau granulaire ou d'une poudre. Elle peut être soit la conséquence de différents processus environnementaux, comme l'érosion dans le lit des rivières ou la gélifraction¹, soit recherchée par l'homme pour l'extraction minière par exemple ou pour produire des poudres variées dans des secteurs tels que la pharmacie, l'industrie cosmétique, la métallurgie des poudres, la fabrication de ciments et de liants hydrauliques. . . Des procédés de broyage, en voie liquide ou en voie sèche, sont alors mis œuvre sur des matériaux très différents et aux propriétés mécaniques parfois très éloignées comme c'est le cas pour les matières végétales et minérales.

La diversité des broyeurs proposée par les fournisseurs est grande et met en œuvre des solutions techniques et technologiques variées. L'objectif des différentes technologies est de générer un chemin de fracture qui se propagera à travers le matériau pour conduire à sa rupture. Selon la technologie, cette fragmentation peut être provoquée par le mouvement rapide d'un outil (broyeur à couteaux, broyeurs à impact), par la projection de la matière grâce à des flux d'airs (broyeur à jet d'air), ou par l'action d'un média broyant mis en mouvement par un arbre agitateur, la vibration d'une cuve, ou la rotation d'un tambour.

Certaines technologies, telles que les broyeurs à boulets, sont répandues et peuvent être utilisées sur des matériaux aux propriétés très différentes. Dans la plupart des cas, elles sont néanmoins adaptées à une production spécifique, comme par exemple la farine en meunerie, et leur évolution est majoritairement héritée d'un savoir-faire empirique. Une large gamme de tailles de broyeurs sont disponibles dans le commerce avec des contenances pouvant aller de quelques millilitres, pour les broyeurs de laboratoire, à plusieurs dizaines de mètres cubes dans un contexte d'industrie primaire (extraction minière, cimentiers. . .). Ici, on s'intéresse plus particulièrement au broyage par voie sèche, l'eau n'intervenant éventuellement que par la présence d'interactions capillaires. Les technologies ciblées dans le cadre de cette thèse sont des broyeurs à media broyant, pouvant être utilisés aussi bien pour la comminution de matières minérale que végétale.

L'efficacité du broyage peut être définie comme l'énergie dépensée pour augmenter la surface spécifique d'une poudre. Elle dépend de nombreux facteurs tels que : les propriétés mécaniques du matériau et celles du média broyant, la technologie employée et les paramètres procédés, mais également de conditions environnementales telles que la température ou l'humidité. Une part importante de l'énergie est dissipée dans les parties mécaniques du broyeur pour mettre en mouvement le mélange poudre/média broyant. De ce fait, l'énergie dépensée est bien supérieure à l'énergie mécanique réellement nécessaire pour ouvrir des surfaces et le broyage dans l'industrie reste une opération au coût énergétique important.

Un procédé de broyage est généralement suivi par l'évolution de la taille des particules. Celle-ci est difficilement caractérisable par la seule donnée d'une grandeur scalaire et il est nécessaire de considérer les cinétiques d'évolution des distributions. Ces distributions peuvent être multimodales

1. Rupture des grains sous l'effet du gel

traduisant : la complexité de la microstructure des particules, l'hétérogénéité des sollicitations appliquées et la présence de phénomènes d'agglomération. Une meilleure compréhension de la comminution doit intégrer des ingrédients à différentes échelles, souvent difficiles à articuler entre eux :

- A l'échelle sub-particulaire, le comportement rhéologique du matériau et sa rupture doivent être considérés. La présence de défauts, initiant la fracturation des grains, joue un rôle important qui est généralement dépendant de la taille des particules.
- A l'échelle des particules, la géométrie des grains et leurs interactions de surface peuvent donner lieu à un enchevêtrement, de l'adhésion, voire des phénomènes d'agglomération. C'est à cette échelle que sont transmises les contraintes à travers les contacts entre les particules, avec le média broyeur ou les parois du broyeur. Ces interactions conditionnent la manière dont les sollicitations mécaniques du broyeur (impact, cisaillement, attrition. . .) sont transmises à la matière et peuvent conduire à des modes de ruptures différents souvent difficiles à mettre en évidence d'un point de vue expérimental.
- A l'échelle du lit de poudre, la granulométrie doit être caractérisée. Elle affecte en grande partie le comportement rhéologique de la poudre au sein du broyeur et les effets de tassement responsables d'une dissipation importante de l'énergie de broyage. Il n'est pas rare que la distribution des tailles recouvre 2 ou 3 décades. En outre, les méthodes de détermination de la granulométrie s'appuient sur certaines approximations qu'il est nécessaire de prendre en considération.
- A l'échelle du broyeur, la géométrie et les vitesses de sollicitations doivent être prises en compte dans les modèles. Dans de nombreux cas, cette caractérisation est complexe mais importante pour comprendre l'effet de l'inhomogénéité de la sollicitation et l'apparition de zones mortes ou de dépôts de surface sur les parois du broyeur.

Il est difficilement envisageable d'appréhender dans leur globalité les phénomènes impliqués lors des opérations de broyage. Mais il est clair qu'au vu des enjeux énergétiques et technologiques, toute piste d'amélioration peut avoir des répercussions intéressantes aussi bien d'un point de vue fondamental que pour les applications industrielles. On notera aussi, que malgré l'importance d'une étude systématique des procédés de broyage, ceux-ci restent relativement peu étudiés par des méthodologies génériques pouvant servir de base à la conception de procédés innovants en lien avec les caractéristiques des matières à broyer.

Une piste récente, encore peu exploitée, concerne le cobroyage de différentes matières. En effet, le cobroyage de deux poudres peut permettre d'éviter une étape de mélange supplémentaire et semble autoriser des mélanges de poudres plus intimes. L'efficacité du broyage de poudres végétales avec un média broyeur de dureté plus élevée tel que le quartz montre un rendement supérieur au broyage individuel des deux composants. Dans le cas où les poudres doivent être séparées, ce gain peut être non négligeable si on l'associe avec des nouveaux procédés peu énergivore tels que le tri-électrostatique. Enfin, même si l'on ne peut plus vraiment parler de cobroyage, on montrera également que, dans la limite des faibles teneurs en matière végétale, il est possible d'améliorer l'efficacité du broyage. La matière végétale apparaît alors comme un adjuvant de broyage original, alternatif aux molécules chimiques couramment utilisées.

Dans cette thèse on s'intéresse aux procédés de broyage et à la comminution de matières minérales et végétales et en condition de cobroyage. Les travaux de la thèse sont réalisés à deux échelles :

1. L'échelle des particules pour laquelle une méthode de simulation numérique est développée en vue de mieux comprendre l'effet des hétérogénéités de la matière et du mode de sollicitation sur le comportement à la rupture.
2. L'échelle des procédés pour laquelle des études paramétriques expérimentales ont été menées sur différentes technologies de broyage pour préciser notamment l'efficacité énergétique en s'appuyant sur l'évolution de la granulométrie en lien avec le type de matière première broyée.

La thèse est structurée en 5 chapitres principaux :

Le premier chapitre expose des éléments bibliographiques situant le contexte et clarifie quelques concepts de mécanique de la rupture, importants pour la compréhension de la thèse. Un point est également fait concernant la transmission des contraintes dans un lit granulaire. Différentes technologies de broyage sont présentées, accompagnées de modèles expérimentaux proposés dans la littérature pour quantifier l'efficacité des broyeurs. Ces différents éléments serviront de bases pour l'analyse des résultats obtenus.

Dans un deuxième chapitre, nous nous sommes attachés, au travers de simulations numériques basées sur la péricydynamique, à l'étude du fractionnement quasi-statique d'une particule. Le rôle d'un défaut placé à différents niveaux dans un grain est étudié. Il montre l'importance de la position du défaut par rapport à la sollicitation appliquée. Nous avons en particulier étudié l'influence de la taille et du nombre de défauts au sein d'un grain et au lien avec la production de fragments.

Le troisième chapitre présente des extensions de la méthode péricydynamique en considérant des sollicitations dynamiques et des particules non circulaires. L'influence de l'énergie et de la vitesse de l'impacteur est étudiée en détail. L'évolution de la distribution des fragments est étudiée. Dans le cas de particules de formes polygonales, deux régimes de ruptures sont identifiés.

Dans le quatrième chapitre, nous présentons une étude expérimentale portant sur le broyage du quartz dans un broyeur de laboratoire générant une sollicitation mécanique d'impact quasi-isolée. L'objectif de cette étude est de mettre en évidence le lien entre l'énergie apportée à la matière et la surface générée lors du broyage. Les résultats sont comparés aux modèles énergétiques de Bond, Kick et Rittinger et un nouveau modèle est proposé pour tenir compte des phénomènes d'agglomération qui interviennent lorsque des particules très fines sont générées.

Le cinquième chapitre est consacré à une étude comparative du broyage d'une matière végétale et de deux matières minérales au sein de 3 broyeurs à média broyant, en s'appuyant sur le modèle proposé au chapitre 4. L'objectif est de mettre en lumière les principaux phénomènes intervenant au sein des broyeurs et d'établir des relations entre la structure de la matière première, les sollicitations mécaniques apportées par le broyeur et les énergies mises en jeux. Le cobroyage dans les différents broyeurs est également étudié. Son intérêt pour diminuer les consommations énergétiques et augmenter la surface créée y est discuté, en lien notamment avec la diminution des phénomènes d'agglomération.

1. État de l'art

Sommaire

Introduction	14
1.1. Hétérogénéité de la matière première	14
1.1.1. Matière minérale et lignocellulosique	14
1.1.2. Hétérogénéité des matériaux granulaires	18
1.2. Fragmentation de la matière	23
1.2.1. Modes de rupture à l'échelle du défaut	23
1.2.2. Probabilité de Weibull	25
1.2.3. Initiation de la rupture quasi-statique dans un grain	26
1.2.4. Essais d'impact	28
1.2.5. Modélisation numérique du comportement et de la rupture	31
1.3. Comportement à l'échelle de plusieurs grains	35
1.3.1. Interactions à l'échelle du grain	35
1.3.2. Comportement à l'échelle du lit de poudre	38
1.3.3. Lois de broyages	41
1.4. Technologies de broyages	43
1.4.1. Les broyeurs à compression	43
1.4.2. Les broyeurs à impacts	44
1.4.3. Broyeur à media broyant	45
1.4.4. Conclusion et choix de broyeur	49
Conclusion	50

Introduction

L'objectif de ce chapitre est de mettre en avant quelques éléments bibliographiques qui permettent de mieux situer le contexte du broyage par voie sèche. Comme cela a été évoqué en introduction, à la complexité du comportement à la rupture des particules et à celle liée aux propriétés rhéologiques du lit de poudre s'ajoute la grande complexité et variété des sollicitations mécaniques dans les procédés de broyage. Il n'est ici pas envisageable de donner un panorama exhaustif du domaine et nous nous attacherons à ne présenter que quelques éléments qui permettront de mieux comprendre la suite de la thèse et d'expliquer les résultats obtenus.

Dans un premier temps, nous présenterons succinctement les matières premières utilisées dans cette thèse ainsi que des éléments permettant d'apprécier leur hétérogénéité et variabilité. Nous rappellerons également quelques résultats issus de la mécanique de la rupture appliquée à l'échelle du matériau et à celle d'une particule. Les principaux phénomènes d'interactions cohésives entre particules, souvent limitant pour le broyage, seront présentés. La transmission de forces dans les milieux granulaire sera rapidement illustré ainsi que la définition de grandeurs macroscopiques (cohésion et de l'angle de frottement interne) définies à l'échelle d'un lit de poudre. Nous nous intéresserons ensuite à l'échelle des broyeurs en explorant quelques lois de broyages usuelles, développées pour modéliser l'évolution de la taille des particules en fonction de l'énergie de broyage. Enfin, le chapitre se termine par la présentation de différentes solutions technologiques utilisées pour le broyage.

1.1. Hétérogénéité de la matière première

Les différentes matières premières utilisées dans cette thèse sont d'origines végétales et minérales. Elles ont une microstructure spécifique marquée par une variabilité plus ou moins forte. Pour les plantes, outre la composition chimique, le comportement mécanique et les structures histologiques dépendent de conditions culturales et variétales. Pour les matières minérales, selon les gisements, les produits extraits peuvent présenter de fortes variabilités en terme de granulométrie et de pureté. Dans tous les cas, le conditionnement de la matière première avant broyage joue un rôle particulièrement important.

Dans cette partie, nous présentons dans un premier temps l'hétérogénéité de la matière minérale et végétale, puis dans un second temps l'hétérogénéité inhérente aux matériaux granulaires liée à la distribution morpho-granulométrique.

1.1.1. Matière minérale et lignocellulosique

Matière minérale

La matière minérale est très diverse et présente des compositions chimiques souvent complexes même pour des composés purs. Dans l'industrie, il est en général nécessaire de réduire la taille des roches et minerais extraits pour pouvoir séparer les éléments chimiques d'intérêts. Pour éviter une usure prématurée et garantir une efficacité correcte du procédé, les technologies de broyage doivent être adaptées au matériau. On ne réduira pas en poudre avec le même matériel une roche très tendre et une très dure.

Pour cette raison, les matières minérales sont souvent comparées en utilisant une échelle de dureté. L'échelle qualitative de Mohs classe de 1 à 10 les différents minéraux du moins dur, le talc, au plus dur, le diamant. Dans cette échelle, un minéral de dureté Mohs fixée H_M raye tous ceux dont la dureté est inférieure. Une autre méthode, plus quantitative, pour mesurer la dureté d'un matériau consiste à effectuer une indentation. A titre d'exemple, la figure 1.1b montre un indenteur

pyramidal de type Knoop. Celui-ci est utilisé en appliquant une force F et en mesurant l'aire S de l'empreinte de la zone déformée plastiquement. Le calcul de la dureté Vickers (homogène à une contrainte) est donné par la formule approchée $0,191 \frac{F}{d}$ où d est la moyenne des longueurs (en mm) des diagonales de l'empreinte. La figure 1.1a montre une comparaison entre l'échelle de Mohs (en abscisse) et des mesures d'indentation. La dureté est souvent employée pour comparer

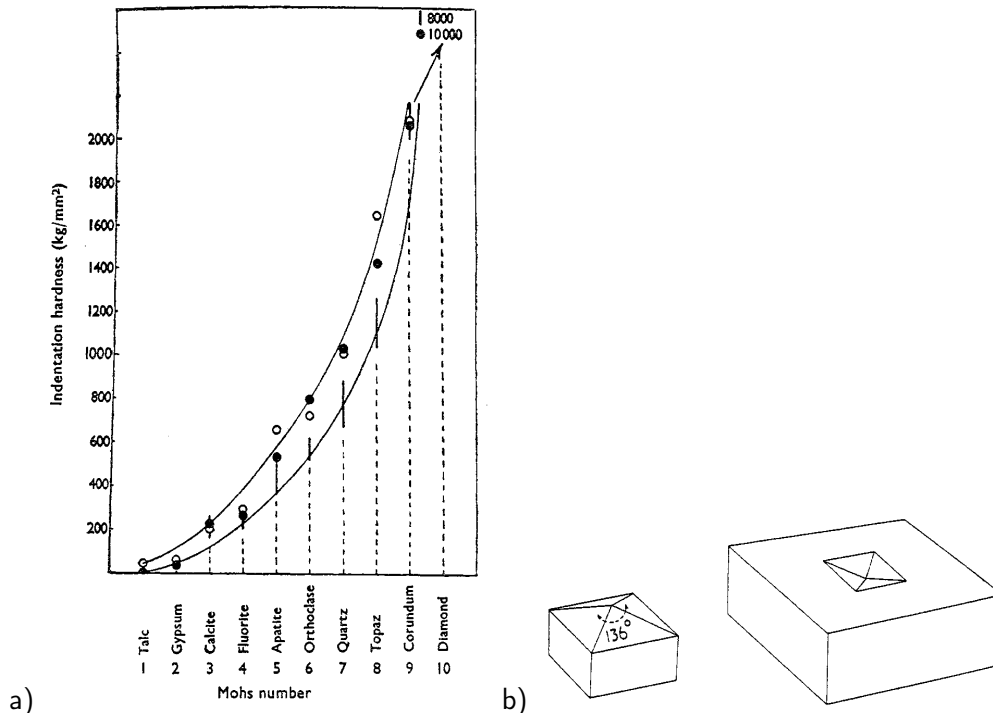


FIGURE 1.1. – a) Comparaison entre l'échelle de dureté de Mohs et les mesures de duretés Vickers (rond blanc) et Knoop (rond noir) ; b) Schéma d'un indenteur (de type Knoop) et de son empreinte faite sur le matériau [1].

les propriétés de résistance mécanique à l'usure des matières minérales. Mais, on notera que des corrélations ont été également établies avec les paramètres de résistance à la rupture du matériau.

Ce que l'on appelle communément la matière minérale regroupe en réalité les roches constituées de différents minéraux ; les minéraux eux-mêmes pouvant alors se présenter sous leur forme cristalline ou amorphe comme le verre usuel.

Dans un solide cristallin, chaque atome occupe une position bien définie par rapport à ses voisins et le cristal peut être découpé en cubes identiques (ou maille élémentaire) constitués des différents atomes. La structure cristalline des solides est dépendante des atomes la constituant. A titre d'illustration, la figure 1.3a montre la structure atomique périodique d'un cristal de quartz composé de dioxyde de silicium SiO_2 . A cette échelle, la rupture se fait par clivage entre plans atomiques [2] et peut être déterminée de façon théorique à partir de la connaissance de l'intensité des liaisons et de la topologie du réseau.

Or en réalité, les cristaux comportent toujours des défauts qui fragilisent la structure et sont à l'origine de propagation de fissures qui mènent à la rupture du matériau. Les défauts rencontrés peuvent être classés en différents types [3] :

— Les défauts ponctuels : ils correspondent au cas où un atome est manquant ou en trop dans

le réseau cristallin.

- Les dislocations : elles peuvent être de type dislocation-coin dans le cas où un demi-plan atomique supplémentaire se trouve à l'intérieur d'un cristal (dislocation-coin) ou peut être de type dislocation-vis correspondant à une torsion d'un plan du réseau cristallin (figure 1.2).
- Inclusions : les inclusions sont des impuretés présentes dans la matière qui pourront être sources de fragilités.
- Les joints de grain : dans les solides polycristallins, aux interfaces entre différents cristaux, apparaissent des discontinuités appelées joint de grains. La figure 1.3b montre un exemple de polycristal de quartzite.
- Assemblages de cristaux de nature différente : Le granite par exemple, qui forme la majeure partie des roches de la croûte continentale de la planète, est composé de quartz et d'autres éléments tels que le feldspath, mica... La différence de comportement mécanique entre ces phases constitue des discontinuités au niveau desquelles peuvent s'amorcer des fissures.

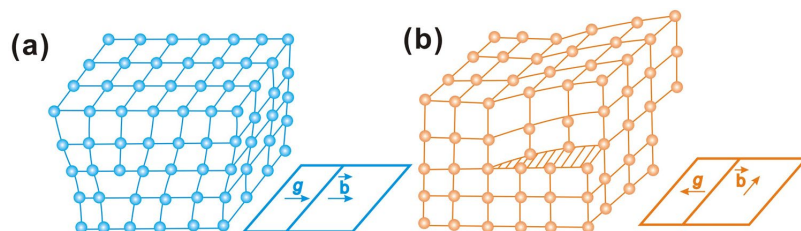


FIGURE 1.2. – Exemples de dislocations dans un solide cristallin [4] ; a) dislocation “coin” ; b) dislocation de type “vis”.

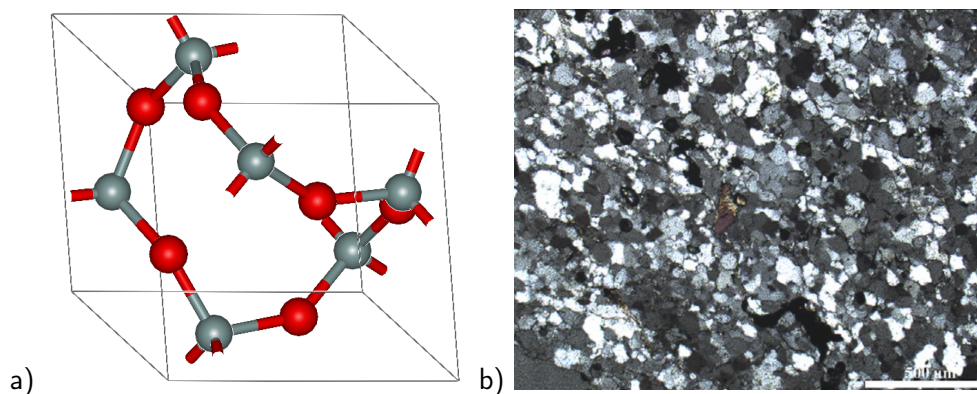


FIGURE 1.3. – a) Exemple de structure cristalline périodique formant un cristal de quartz (α -quartz) ; les atomes d'oxygène sont en rouges et ceux de silice en gris. b) Micro-structure de quartzite composé essentiellement de grains de quartz [5].

Matière lignocellulosique

La matière lignocellulosique regroupe un ensemble de matériaux d'origine végétale composés de lignine, d'hémicellulose et de cellulose en proportions variables. Elle se retrouve principalement

dans le bois et les tiges des plantes herbacées (chaumes de céréales, de lin, de roseaux, de blé) et hérite des fortes hétérogénéités structurales des plantes. Différents organes tels que par exemple pour les arbres, le tronc, les branches, les racines, présentent des tailles caractéristiques pouvant aller de plusieurs mètres à quelques millimètres. Ces organes sont constitués de tissus (échelle de la centaine de micromètres) résultant de l'assemblage de cellules de mêmes natures et dont la taille peut varier de 10 à 100µm. Chaque cellule est entourée d'une paroi et possède un coeur souvent vide pour les matériaux lignocellulosiques.

Les parois des cellules sont composées de cellulose (20 à 60%), hémicellulose (10 à 40%) et de lignine (10 à 40%) [6]. D'autres éléments, en plus faibles quantités, sont présents comme de l'eau, des extractibles organiques ou des minéraux telle la silice. A titre indicatif, le tableau 1.1 donne des exemples de composition de différentes biomasses. La proportion relative de chacun

Biomasse	Cellulose	Hémicellulose	Lignine	Eau-Solubles	Cendres	References
Bois (Pin)	45-50	20-30	25-30	2-10	<1	[7]
Fibres de lin	78-80	6-13	2-5	2-4	1-2	[8, 9]
Anas de lin	32-53	13-21	23-25	1-2	2-3	[9, 10]
Miscanthus	43-50	24-34	9-12	1-2	2-4	[11]
Paille de blé	33-40	21-26	11-23	4-10	7-10	[12]

TABLE 1.1. – Composition en (%) de différentes biomasses lignocellulosiques.

des constituants peut varier de manière très significative selon l'espèce, la zone géographique, ou les tissus considérés dans la plante. Par exemple, les fibres de lin qui correspondent aux parties extérieures des tiges présentent des teneurs en cellulose quasiment deux fois supérieures à celles des anas (coeur de la tige).

Les différents constituants de la biomasse lignocellulosique possèdent leur propre structure et sont organisés de manière complexe (figure 1.5) :

- La cellulose est un polymère arrangé en microfibrille contenant des régions cristalline et amorphe. Ces microfibrilles s'associent dans les parois cellulaires pour former des fibrilles de plusieurs µm de long [13].
- Les hémicelluloses sont des polysaccharides formant une matrice amorphe autour des fibrilles de celluloses. Il s'agit d'un polymère branché avec différents sucres tels le glucose, le mannose, le galactose, le rhamnose ou l'arabinose. Selon l'espèce, la variété, la position dans la plante, les hémicelluloses peuvent prendre des formes variées [14].
- La lignine est un polymère phénolique qui se lie à l'hémicellulose via des liaisons covalentes. Cette association permet l'amélioration de certaines propriétés de la plante comme par exemple la résistance mécanique ou l'hydrophobicité.

Les différentes sources d'hétérogénéités de la biomasse lignocellulosique affectent son comportement mécanique. L'organisation de la matière lignocellulosique autour des fibres de cellulose entraîne un comportement anisotrope [16] avec des propriétés mécaniques pouvant être contrastées suivant l'échelle de description (module d'élasticité, résistance à la rupture, coefficient de Poisson...). Dans de nombreux cas, la croissance en cernes concentriques peut être associée à un comportement orthotrope. Dans le cas du bois, par exemple, plus d'un ordre de grandeur sépare la rigidité de ce matériau suivant que l'on considère les directions radiale, tangentielle ou longitudinale aux fibres [17].

Ces propriétés sont également influencées par les proportions relatives de cellulose, d'hémicellulose et de lignine. Par exemple, une plus forte quantité de lignine augmente le module d'élasticité et diminue la résistance à la traction de fibres de bois [18]. La géométrie de la structure a aussi

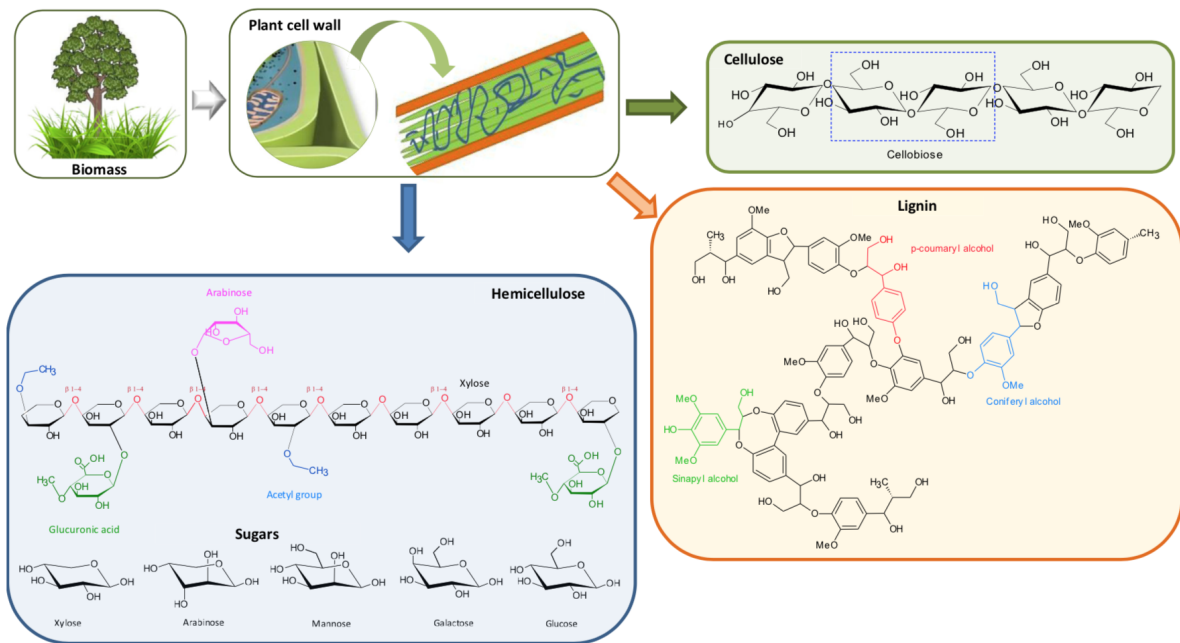


FIGURE 1.4. – Schéma des principaux constituants des matériaux lignocellulosiques [15]

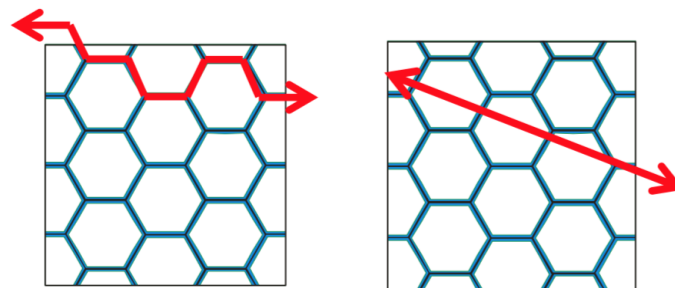


FIGURE 1.5. – Schéma de la propagation de fissure entre (à gauche) ou à travers (à droite) les cellules d'un matériau lignocellulosique d'après [20]

son importance. Lorsque les microfibrilles de cellulose sont alignées avec les fibres macroscopiques les propriétés mécaniques en sont renforcées [19].

Au sein de la matière végétale, les fractures peuvent se propager à l'interface entre les différents tissus, à l'interface entre les cellules ou à travers celles-ci. La figure 1.5 illustre notamment deux modes de propagation possible observés lors du broyage du liège [20].

1.1.2. Hétérogénéité des matériaux granulaires

Généralement avant d'être utilisées dans une opération de broyage, les matières premières ont déjà subi des traitements tels qu'un séchage, un conditionnement à humidité régulée et un pré-broyage grossier ou un tamisage de calibration.

La matière première en entrée de broyeur se trouve donc être déjà sous la forme d'un matériau granulaire qui regroupe des particules possédant des tailles et des formes différentes. Cette

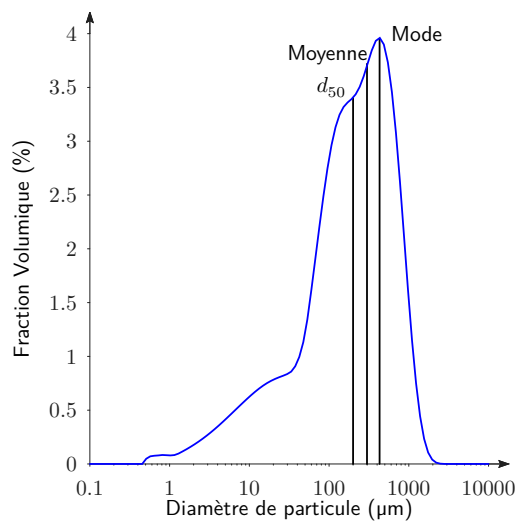


FIGURE 1.6. – Exemple de distribution granulométrique avec son d_{50} , mode, et taille moyenne.

hétérogénéité influence la fracturation et le comportement rhéologique du milieu granulaire [21]. Elle peut avoir des conséquences sur l'opération de broyage et affecter la réactivité des matériaux produits en modifiant leur surface spécifique. Ce point est important en pharmacie [22] par exemple ou dans certaines applications de l'industrie cimentière [23]. La détermination de l'évolution de la granulométrie au cours du broyage – à partir de laquelle il est possible d'évaluer la surface spécifique – est nécessaire pour maîtriser la qualité des produits obtenus, mais aussi pour préciser l'efficacité des opérations de broyage.

Distribution granulométrique

La distribution de tailles d'un ensemble de particules peut être tracée en nombre, surface ou volume¹. Cette distribution peut également être exprimée en fréquence ou être cumulée. En technologie des poudres et en mécanique des sols, elle est le plus souvent donnée en fraction volumique. Pour des raisons pratiques, ces distributions sont souvent résumées à quelques paramètres descriptifs :

- La moyenne des tailles de la population de grains.
- Le mode de la distribution, c'est à dire la taille la plus fréquente de la population qui correspond au maximum de la distribution en fréquence.
- La médiane notée d_{50} qui est la valeur pour laquelle 50% de la population est plus petite que ce diamètre. Pour une distribution normale, le mode, la moyenne et le d_{50} sont confondus mais ce n'est pas forcément le cas pour une distribution quelconque (cf. Figure 1.6).
- Les percentiles (d_{10} , d_{30} , d_{70} , d_{90} ...) notés d_x avec x variant de 1 à 99 et pour lequel $x\%$ de la population est de taille inférieure à d_x .

1. La distribution granulométrique en volume est équivalente la distribution massique si la densité ne varie pas avec la taille. Ceci n'est pas forcément le cas pour les matières végétales qui contiennent des pores à différentes échelles.

Détermination de la granulométrie

La plupart des techniques utilisées pour déterminer les distributions granulométriques reposent sur différents principes physiques dépendant de la taille des particules analysées. Ainsi, il est parfois nécessaire d'adapter la technique de caractérisation au cours du procédé de broyage. Par ailleurs, la détermination de la taille des particules possédant des formes irrégulières est complexe. En effet, si un nombre réduit de dimension permet de décrire la taille d'une particule ayant une forme géométrique simple (une pour le cube, deux pour une ellipse...), la taille d'une particule à la forme complexe ne pourra être estimée qu'à partir de certaines approximations dépendantes le plus souvent de la technique utilisée. Nous présenterons dans la suite quelques techniques courantes² pour la caractérisation de la taille des particules et qui ont été utilisées dans cette thèse.

Tamissage : Le tamissage est une méthode classiquement utilisée pour la séparation de fractions constitutives d'un milieu granulaire et pour la détermination de leurs tailles. Il est souvent d'usage d'utiliser un empilement de plusieurs tamis de maille croissante. L'emploi d'une tamiseuse mécanique permet d'agiter la colonne de tamis pendant une durée déterminée. La mesure de la masse de produit retenue au niveau de chaque tamis permet de construire une distribution granulométrique.

Bien que simple à mettre en oeuvre, notamment pour des fractions de tailles supérieures à la dizaine de millimètres, la mesure peut être entachée d'erreurs. Pour des particules allongées, les grains peuvent passer dans le sens de la longueur dans les compartiments inférieurs. Une difficulté supplémentaire est que ce biais n'est généralement pas systématique et dépend fortement de la durée, du taux de remplissage des tamis et de l'intensité de la vibration de la tamiseuse. Le tamissage en voie sèche est généralement limité à des tailles supérieures à 35 μm [24], taille à partir de laquelle les mailles de tamis se colmatent fortement. Dans ce cas, un tamissage avec aspiration peut permettre d'améliorer le procédé jusqu'à 20 μm en voie sèche, voir jusqu'à 5 μm en voie humide [24].

Microscopie : La microscopie optique est parfois utilisée pour déterminer les tailles de particules. Elle a l'avantage de donner aussi une indication sur la forme des grains et leur état de surface. Ces mesures peuvent être assistées par des logiciels d'imagerie qui permettent de déterminer automatiquement différents paramètres descriptifs de la forme des grains (voir section 1.1.2). Dans le cas de la microscopie optique, la taille minimale est d'au maximum égal à 0.2 μm [25]. Les microscopes électroniques pallient en partie ce problème en permettant d'atteindre des tailles plus faibles grâce à leur résolution pouvant aller jusqu'au nanomètre.

Un des biais de la microscopie est que l'observation se fait dans un plan et les particules sont analysées selon leurs deux plus grandes dimensions. Des essais récents ont été réalisés en tomographie afin d'avoir une idée plus précise de la géométrie de particules en 3D [26]. Dans tous les cas, ces méthodes optiques nécessitent un grand nombre de répétitions afin d'avoir un échantillon représentatif de poudre. Par ailleurs, pour des distributions granulométrique étalées, les mesures doivent être réalisées pour différentes profondeurs de champs. Il est donc nécessaire d'automatiser les mesures ce qui implique des développements méthodologiques qui peuvent s'avérer long.

Granulométrie laser : La granulométrie laser repose sur le principe de diffraction de la lumière. Les particules sont dispersées devant un rayon laser à l'aide d'un media porteur liquide ou gazeux. L'image de diffraction créée par les particules est mesurée par des détecteurs optiques. Cette image

2. On notera qu'il existe d'autres méthodes pour évaluer la taille des particules, comme par exemple l'utilisation de la sédimentation pour les particules fines. Par souci de concision, comme ces méthodes ne seront pas utilisées dans la suite de la thèse, elles ne seront pas présentées ici.

de diffraction est ensuite interprétée grâce à un modèle permettant d'en déduire les tailles de particules. La méthode de Fraunhofer s'appuie uniquement sur la diffraction de la lumière et considère les particules comme opaques. Cette méthode est recommandée lorsque l'indice de réfraction des particules est proche de celui du media porteur [27]. La méthode de Mie tient également compte des phénomènes de réfractions. Elle est réputée pour être plus précise que celle de Fraunhofer mais nécessite la connaissance des indices de réfractions et d'absorptions des particules.

Avec cette technique, la détermination de la taille des particules repose sur l'hypothèse que les particules sont sphériques et de composition homogène [28]. Les poudres doivent être suffisamment dispersées pour éviter l'agglomération et limiter le phénomène de diffusion multiple qui génèrent un biais dans l'analyse et se traduit par un étalement plus grand des distributions. Avec les différents dispositifs commercialisés, il est possible de déterminer des granulométries pour des tailles de particules mesurées allant de la centaine de nanomètres au millimètre.

Surface spécifique

La surface spécifique correspond à la surface développée par la totalité de la poudre ramenée à la masse de produit ou à son volume. Elle ne donne pas d'indication sur la forme de la distribution granulométrique, cependant elle est directement liée à la finesse de la poudre. Une poudre composée de nombreuses particules fines développera une surface spécifique importante. Cette surface spécifique permet d'estimer, de manière globale, le degré de comminution d'une poudre. Elle est également souvent utilisée comme indicateur pour la réactivité d'un produit pulvérulent. En effet, les réactions chimiques sont le plus souvent initiées à la surface des particules [29]. Si la mesure de la surface spécifique peut être évaluée à partir de la granulométrie en supposant que les particules sont sphériques ; il existe des méthodes plus fiables pour la déterminer. La méthode BET³ (Brunauer, Emmett et Teller), par exemple, utilise l'absorption d'un gaz à la surface de la poudre pour remonter à cette surface [30]. Cette méthode, qui sera utilisée dans la suite de la thèse, a l'inconvénient de ne pas permettre des mesures pour des poudres ayant une surface spécifique supérieure à $1 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$.

Forme des particules

En plus de posséder différentes tailles, les particules composant le milieu granulaire peuvent présenter différentes formes. La forme de ces particules affecte les propriétés rhéologiques du milieu et leur fracturation. La figure 1.7 présente quelques exemples de particules aux formes complexes. Les formes peuvent être polyédriques comme avec du verre broyé (figure 1.7a), ou aplaties comme avec des particules d'alliage de titane (figure 1.7b) ou encore très allongées (figure 1.7c). On notera tout de même que, dans une opération de broyage, la forme des particules a le plus souvent tendance à s'homogénéiser. Il faut tout de même relativiser ce point pour des matériaux fortement anisotropes formés de fibres ou de plan capables de se cliver.

Le plus souvent, les mesures morphologiques sont faites en 2D à l'aide d'observations microscopiques. Un logiciel de traitement d'images est alors nécessaire pour pouvoir déterminer des indices de formes calculés à partir de longueurs caractéristique des particules. Plusieurs indices existent et leur définition est parfois variable selon les auteurs. A titre indicatif, nous présentons ici 4 indices de forme utilisés dans cette thèse :

3. Pour mémoire, il existe des méthodes plus indirectes permettant d'évaluer la surface spécifique à partir de la perméabilité au gaz de la poudre. La méthode Blaine est basée sur ce principe et est souvent utilisée pour sa facilité de mise en oeuvre, dans un contexte industriel.

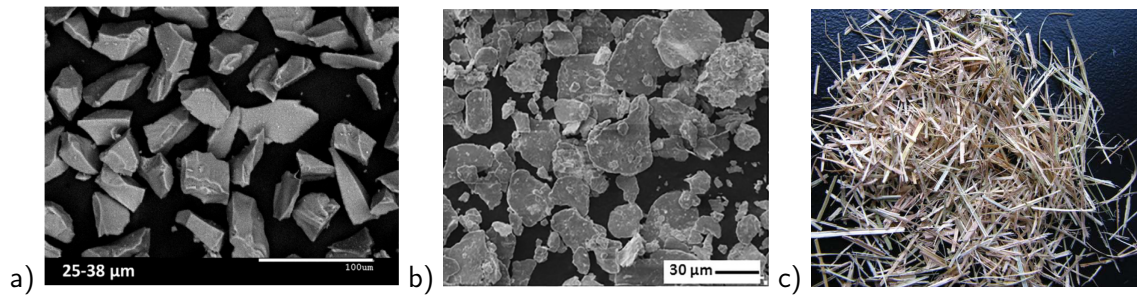


FIGURE 1.7. – a) Observation MEB de particules de verres broyées [31]. b) Observation MEB de particules d'alliage de titane broyées [32]. c) Photo de fragments de paille de riz [33].

- Rapport d'aspect : $\frac{\text{Grand Diametre}}{\text{Petit Diametre}}$ rapport entre le grand axe et le petit axe de l'ellipse équivalente de la particule (ellipse de même aire, orientation, et centre de gravité de la particule). Plus cet indice sera proche de 1 et plus la particule sera proche d'un disque. Cet indice traduit l'allongement de la particule.
- Rondeur : $\frac{4}{\pi} \frac{\text{Aire}}{\text{Grand Diametre}^2}$ rapport de l'aire de la particule avec l'aire du disque de diamètre égal au grand axe de l'ellipse équivalente. Sa valeur est proche de 0 si la particule est très allongée et égale à 1 si c'est un disque.
- Circularité : $4\pi \frac{\text{Aire}}{\text{Perimetre}^2}$ rapport entre l'aire de la particule et son périmètre. Cet indice est égale à 1 si la particule est un disque et approche 0 si elle est très allongée ou possède une surface extrêmement rugueuse.
- Solidité : $\frac{\text{Aire}}{\text{Aire convexe}}$ rapport entre l'aire de la particule et son aire convexe (voir figure 1.8). Cet indice traduit la convexité de la particule avec une valeur égale à 1 si la particule est parfaitement convexe ou proche de 0 sinon.

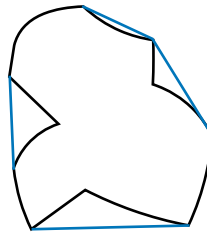


FIGURE 1.8. – Exemple d'une forme de particule quelconque avec les contours de son aire convexe en bleu.

Bien que certains de ces indices puissent paraître similaires, ils décrivent en réalité des aspects différents de la géométrie de la particule. Un même indice ne suffit généralement pas à décrire une particule. Par exemple, un carré et un cercle auront tout deux un aspect ratio égal à 1 alors qu'ils possèdent des formes très différentes. La rondeur et la circularité en revanche permettront de différencier le carré du cercle.

En conclusion, au travers de ces éléments bibliographiques, nous avons mis en évidence que les

matières premières quelles soient d'origine minérale ou lignocellulosique possèdent une hétérogénéité reliée à l'histoire de la matière première mais également une hétérogénéité au sein même du matériau dû à une structure propre et parfois complexe (cas de la biomasse lignocellulosique) et à la présence de défauts (inclusion minérale, par exemple). Ces hétérogénéités engendrent une anisotropie des propriétés mécaniques et des fragilités à l'interface structures/constituants.

A l'échelle d'un ensemble de grains, la forme et la taille des particules apportent une hétérogénéité aux propriétés du milieu. La caractérisation de cette hétérogénéité est importante afin de comprendre les mécanismes de fracturations mais nécessite le développement de protocoles de mesure adaptés. Cependant, ces protocoles nécessitent toujours des approximations et ne donnent qu'une image moyenne des réalités du milieu granulaire.

Dans la section suivante, on va s'intéresser à la fragmentation de la matière ; en se limitant dans un premier temps à des matériaux homogènes.

1.2. Fragmentation de la matière

Cette section est consacrée à la présentation de quelques notions et exemples relevant de la mécanique de la rupture, que l'on cherche à appliquer au cas d'un grain. L'échelle du défaut est d'abord considérée et les modèles théoriques de base d'initiation de fissures sont rappelés. Puis, pour une population de grains, nous nous intéresserons à la prise en compte de la variabilité expérimentale des contraintes seuil, en s'appuyant notamment sur le modèle de Weibull. Le cas de la compression quasi-statique et de l'impact dynamique d'une particule seront ensuite présentés. Enfin, nous aborderons les différentes sollicitations et modes de fracturations à l'échelle du grain et nous donnerons quelques exemples de méthodes numériques pouvant être utilisées pour modéliser la rupture d'une particule.

1.2.1. Modes de rupture à l'échelle du défaut

Trois modes de rupture peuvent apparaître au niveau d'une amorce de fissure (cf. figure 1.9) [34] :

- mode I (clivage) : les surfaces de la fissure se déplacent parallèlement l'une par rapport à l'autre. Ce mode intervient en général lorsque la microfissure à l'origine de la propagation est perpendiculaire au sens de sollicitation.
- mode II (cisaillement plan) : les surfaces de la fissure se déplacent dans le même plan et dans une direction perpendiculaire au front de fissure.
- mode III (cisaillement anti-plan) : les surfaces de la fissure se déplacent dans le même plan et parallèlement au front de fissure.

Dans le cas de sollicitations simples (traction, compression), la grande majorité des travaux portant sur la résistance des matériaux est consacrée au mode I, car il correspond au cas où la rupture de l'échantillon est la plus aisée [3]. En effet, les surfaces n'étant pas parfaitement planes à l'échelle atomique, en modes II et III, un frottement s'exerce entre les surfaces de la fissure. Un surplus d'énergie, souvent difficile à évaluer, est alors nécessaire pour propager la fissure.

Quelque soit le mode de rupture présenté ci-dessus, en pointe de fissure les contraintes sont maximales et cette zone concentre l'endommagement. Pour que la fissure se propage, la contrainte appliquée nécessite d'atteindre un seuil critique. Les critères de Griffith et Irwin présentés ci-dessous permettent d'estimer la valeur de ce seuil.

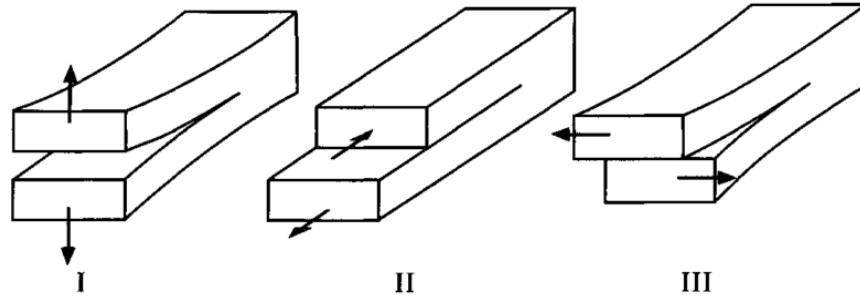


FIGURE 1.9. – Schema des trois modes de ruptures (figure extraite de [35]).

Théorie de Griffith

Lors de la propagation d'une fissure, une partie de l'énergie potentielle élastique est libérée (énergie restituée U). Pour Griffith [36], cette énergie contribue à l'extension de la fissure. Dans le cas de déformations planes d'un échantillon entaillé sur une longueur a il propose la relation suivante :

$$U = -\frac{\sigma^2 \pi a^2}{2E} \quad (1.1)$$

avec E le module d'Young du matériau et σ la contrainte appliquée à l'extrémité de l'échantillon. Lors de l'agrandissement de la fissure, il y a création de surface, et donc augmentation de l'énergie de surface $E_s = 2\gamma a$. La variation d'énergie totale $E_t = U + E_s$ peut alors s'écrire :

$$\frac{\delta E_t}{\delta a} = 2\gamma - \frac{\sigma^2 \pi a}{E} \quad (1.2)$$

D'après cette équation, pour une fissure de faible longueur, une augmentation de a implique une variation positive de E_t ce qui signifie que la propagation de la fissure ne peut se faire que par un apport d'énergie. A partir d'une certaine longueur critique l'équation différentielle s'annule et il n'est plus nécessaire d'apporter de l'énergie pour permettre la propagation de la fissure. Il y a alors rupture de l'échantillon et la contrainte critique peut être déterminée par l'équation :

$$\sigma_c = \sqrt{\frac{2\gamma E}{\pi a}} \quad (1.3)$$

Avec, le taux de restitution critique d'énergie défini par :

$$G_{Ic} = 2\gamma = \frac{\pi \sigma_c^2 a}{E} \quad (1.4)$$

Théorie d'Irwin

Les énergies de surface déterminées à partir de la théorie de Griffith sont souvent trop grandes pour les matériaux ductiles, notamment car l'énergie élastique restituée n'est pas totalement consommée pour la création de surface mais en grande partie utilisée pour la déformation plastique de la pointe de fissure. Irwin [37] a proposé une méthode pour déterminer l'énergie nécessaire pour initier la rupture à partir de l'expression des contraintes autour du front de fissuration. Dans le cas d'un corps élastique en 2D :

$$\sigma_{ij} \simeq \frac{K_\alpha}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta) \quad (1.5)$$

avec σ_{ij} le tenseur des contraintes de Cauchy, r la distance depuis la tête de fissure, θ l'angle avec le plan de fissure et f_{ij} des fonctions décrivant la géométrie de la fissure et les conditions de sollicitations. K_α est le facteur d'intensité de contraintes en pointe de fissure α correspond au mode de sollicitations et peut-être égal à I, II ou III.

La fissure se propage si K_α est égal au facteur critique $K_{\alpha C}$ appelé ténacité. Cette ténacité, indépendante de la géométrie de l'échantillon, est une propriété intrinsèque du matériau. A titre d'exemple, dans le cas de déformations planes et d'une fissure de longueur $2a$, en mode I :

$$K_{Ic} = \sigma_c \sqrt{\pi a} \quad (1.6)$$

Les théories de Griffith et d'Irwin sont donc liées par :

$$G_{Ic} = \frac{K_{Ic}^2}{E} \quad (1.7)$$

1.2.2. Probabilité de Weibull

Dans les essais expérimentaux, la variabilité de la matière première influence la contrainte à la rupture des particules. Les défauts, variant d'une particule à l'autre, conduisent à une initiation de la rupture qui ne se fait pas toujours sous la même charge et au même endroit dans la particule.

La fracture d'une particule est initiée au niveau du défaut le plus sollicité, à l'origine de la plus grande concentration de contrainte. La fracture de la particule peut alors être comparée au maillon d'une chaîne, qui en se rompant entraîne la rupture de cette chaîne. Cette image est à l'origine d'une théorie statistique appelée *weakest link theory* développée par Weibull [38] et qui considère que la particule est divisée en N éléments de même volume V_0 contenant chacun un défaut. La probabilité de survie de la particule est le produit de la probabilité de survie de chacun de ces éléments. On peut alors écrire que :

$$P_S = \prod_{i=1}^N P_0(\sigma) \quad (1.8)$$

avec $P_0(\sigma)$ la probabilité de survie du i^{eme} élément sous la contrainte σ .

En prenant $\ln(P_S)$ et si V est le volume de la particule l'équation se transforme en :

$$\ln P_S = \frac{1}{V_0} \int_V \ln P_0(\sigma) dV \quad (1.9)$$

Si la contrainte est uniforme dans la particule alors :

$$P_S = \exp \left[\frac{V}{V_0} \ln P_0(\sigma) \right] \quad (1.10)$$

Cette équation est la base de plusieurs expressions de probabilité de survie de particule.

Weibull propose alors d'exprimer la probabilité qu'un élément survive à σ sous la forme suivante :

$$P_0(\sigma) = \exp \left[- \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (1.11)$$

avec σ_0 une contrainte de référence et m le module de Weibull qui traduit la dispersion de la distribution.

En liant l'équation 1.10 et 1.11 la distribution de Weibull s'exprime sous la forme suivante :

$$P_S(V) = \exp \left[- \frac{V}{V_0} \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (1.12)$$

Cette équation est usuellement utilisée pour la rupture d'un matériau fragile initiée en mode I [39].

1.2.3. Initiation de la rupture quasi-statique dans un grain

Une façon d'évaluer le seuil de rupture à partir duquel un grain casse consiste à s'intéresser à la distribution des contraintes dans le grain lorsqu'un chargement lui est appliqué. Connaissant les propriétés à la rupture du matériau pur, il est alors théoriquement possible d'en déduire la contrainte nécessaire pour qu'une rupture s'initie. On présente ci-dessous deux modèles théoriques de distribution de contraintes en 2D, qui seront utilisés dans la suite de la thèse. Et on précise, dans le cas expérimental, les effets qui limitent l'utilisation directe de ces modèles.

Modèles de transmission des contraintes

Il existe différents modèles théoriques basés sur la résolution des équations de la mécanique des milieux continus, appliqués au cas de la compression diamétrale⁴ d'un grain. A titre d'exemple, deux modèles sont présentés ici : le premier considère une charge ponctuelle et le second une distribution de pression répartie au niveau du contact.

Charge ponctuelle : Pour une charge ponctuelle, le champ de contrainte théorique d'un cylindre soumis à un essai compression diamétrale selon l'axe $\vec{y}$ est donné par [40] :

$$\sigma_{XX} = \frac{2F}{\pi l} \left(\frac{((D/2) - y)x^2}{(((D/2) - y)^2 + x^2)^2} + \frac{((D/2) + y)x^2}{(((D/2) + y)^2 + x^2)^2} - \frac{1}{D} \right) \quad (1.13)$$

$$\sigma_{YY} = \frac{2F}{\pi l} \left(\frac{((D/2) - y)^3}{(((D/2) - y)^2 + x^2)^2} + \frac{((D/2) + y)^3}{(((D/2) + y)^2 + x^2)^2} - \frac{1}{D} \right) \quad (1.14)$$

$$\tau_{XY} = \frac{2F}{\pi l} \left(\frac{((D/2) - y)^2 x}{(((D/2) - y)^2 + x^2)^2} + \frac{((D/2) + y)^2 x}{(((D/2) + y)^2 + x^2)^2} - \frac{1}{D} \right) \quad (1.15)$$

avec x et y les coordonnées du point par rapport au centre de la particule, D le diamètre de l'échantillon, l sa longueur et F la charge linéique à laquelle il est soumis.

Les champs théoriques sont représentés sur la figure 1.10. La contrainte maximale est celle en tension σ_{XX} (figure 1.10a) au centre de la particule où doit donc s'initier la rupture. Pour cette raison, ce type d'essai est classiquement utilisé pour évaluer la contrainte à la rupture en tension d'un matériau ; notamment pour les roches ou les bétons.

On notera que dans ce cas simple, il est possible d'exprimer analytiquement l'énergie de fracture de l'échantillon qui dépend de la contrainte à la rupture, du module d'Young, du coefficient de Poisson et du diamètre de la particule [41].

Charge distribuée : Dans le cas d'un chargement réparti sur une portion du disque (cf. figure 1.11), Hondros [42] exprime le champ de contrainte le long de l'axe de chargement de la manière suivante :

$$\sigma_r = -\frac{F}{\pi R \alpha} \left(\frac{(1 - (r/R)^2) \sin 2\alpha}{1 - 2(r/R)^2 \cos 2\alpha + (r/R)^4} + \tan^{-1} \left(\frac{1 + (r/R)^2}{1 - (r/R)^2} \tan \alpha \right) \right) \quad (1.16)$$

$$\sigma_\theta = \frac{F}{\pi R \alpha} \left(\frac{(1 - (r/R)^2) \sin 2\alpha}{1 - 2(r/R)^2 \cos 2\alpha + (r/R)^4} - \tan^{-1} \left(\frac{1 + (r/R)^2}{1 - (r/R)^2} \tan \alpha \right) \right) \quad (1.17)$$

4. On appelle aussi cette compression essai "brésilien".

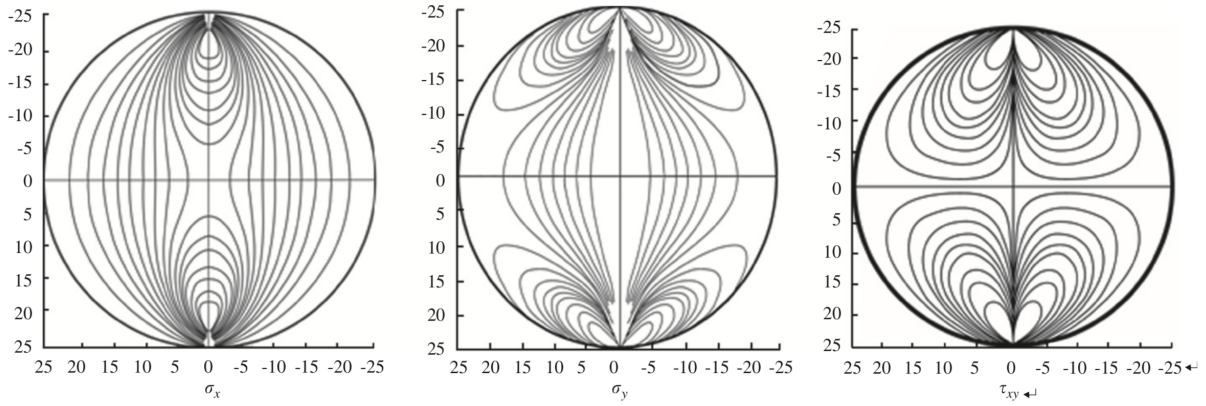


FIGURE 1.10. – Champ de contraintes théoriques lors d'un essai brésilien d'après [40]

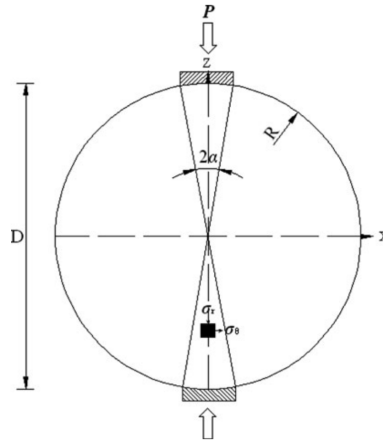


FIGURE 1.11. – Schéma d'un disque sous compression d'une charge uniformément répartie sur des arcs.

Effet de taille de la particule

L'augmentation de la contrainte à la rupture avec la diminution de la taille de la particule est un phénomène connu qui a déjà été observé pour différentes roches et céramiques [43, 44]. Il a été observé que la contrainte à la rupture moyenne évolue selon une loi de puissance avec le diamètre D des particules (figure 1.12) :

$$\bar{\sigma} = D^b \quad (1.18)$$

En effet, la taille de la particule diminuant au cours du broyage, il devient de moins en moins probable de trouver un défaut dans une zone de la particule sollicitée mécaniquement. De plus, dans un processus de comminution, ces petites particules résultent de la fracturation d'autres particules dont les fissures sont passées à travers des défauts diminuant ainsi leur densité en nombre.

Weibull [38] et Epstein [46] ont utilisé la loi de Weibull pour expliquer cette évolution en loi de puissance. En effet, en reprenant l'équation 1.12 on peut écrire :

$$P_S(V) = \exp \left[- \left(\frac{\sigma_t}{\sigma_w} \right)^m \right] \quad (1.19)$$

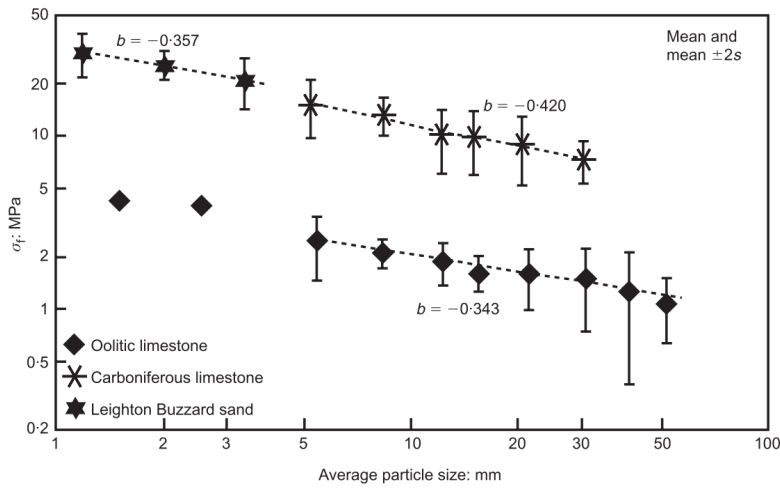


FIGURE 1.12. – Exemple de variation de contrainte à la rupture pour différents matériaux en fonction de leur diamètre (d'après Lee *et al.* cité dans [45])

avec $\sigma_w = (V_0/V)^{1/m}$.

Or la contrainte de probabilité moyenne $\bar{\sigma}$ est proportionnelle à la contrainte σ_w [45] :

$$\bar{\sigma} = \sigma_w \Gamma(1 + 1/m) \quad (1.20)$$

donc $\bar{\sigma} \propto D^{-3/m}$ avec D le diamètre de la particule.

Taille limite de rupture en compression : Cette augmentation de la contrainte à la rupture avec la diminution du diamètre peut avoir une limite. En effet, Kendal [47] et Hagan [48] ont montré que pour des particules en dessous du diamètre critique d_c , sous la compression, il n'était plus possible de briser des particules et que seules des déformations plastiques apparaissaient. Ils proposent, en se basant sur un critère de propagation de fissure, la relation suivante pour déterminer le diamètre critique :

$$d_c = \alpha \left(\frac{K_{Ic}}{\sigma_y} \right)^2 \quad (1.21)$$

avec K_{Ic} le facteur d'intensité de contrainte, σ_y la contrainte à la rupture et $\alpha = 10,7$ pour Kendall et 3.3 pour Hagan.

1.2.4. Essais d'impact

L'effet du chargement dynamique des grains a été étudié par plusieurs auteurs [49, 43, 50, 51]. Ces études ont été réalisées sur des particules sphériques et ont permis de mettre en évidence l'effet de l'énergie d'impact sur l'évolution du nombre de fragments et sur la contrainte à la rupture. Dans ce cas, contrairement à la compression diamétrale quasistatique évoquée précédemment, les particules sont généralement projetées sur un plan par un flux d'air ou impactées entre deux plan sous l'effet d'une onde de choc, souvent générée par la chute d'un corps massif.

Contrainte à la rupture

Globalement la contrainte à la rupture du matériau augmente avec la vitesse de déformation. C'est le cas notamment pour les matériaux visco-plastiques (Schönert 1991, cité dans [52]) tel les matériaux lignocellulosiques [53, 54]. Par exemple, la résistance à la compression de bois d'épicéa passe de 50 à 70 MPa lorsque la vitesse de déformation passe de 0.001 m s^{-1} à 3.0 m s^{-1} [55].

Néanmoins, ce phénomène est également observable dans des matériaux dits fragiles, car ils présentent souvent un faible comportement visco-plastique. La figure 1.13 présente un exemple de variation de contrainte à la rupture en fonction de la vitesse de déformation pour une variété de granite. On peut noter qu'en plus de la viscosité du matériau, la vitesse de déformation joue un rôle complexe en modifiant les phénomènes de fracturation à cause de la propagation des ondes élastiques et des possibles interférences entre elles.

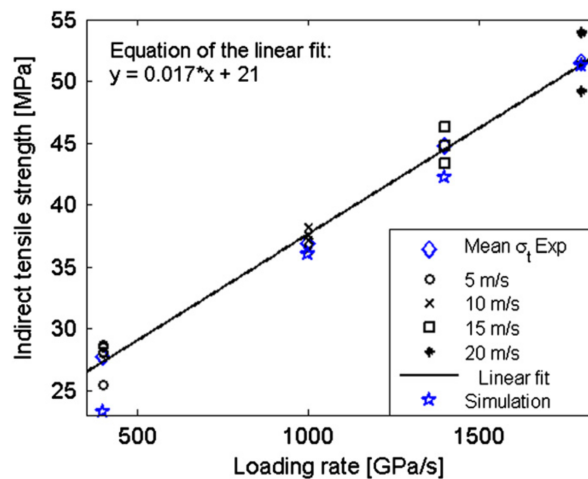


FIGURE 1.13. – Exemple de variation de la contrainte à la rupture en fonction de la vitesse de déformation pour une variété de granite d'après [56].

Il a été également observé que la contrainte à la rupture dépend de la nature du chargement. Par exemple, la fracturation dynamique d'une particule mesurée par un simple ou un double impact peut ne pas nécessiter la même quantité d'énergie [52].

Taille des fragments

L'impact crée de petits fragments qui ne sont pas présents dans une rupture quasi-statique. Plus l'énergie d'impact est élevée, plus la taille des fragments créée est faible. Un exemple de fracturation de particules sous un double impact est donné sur la figure 1.14 [57].

Modes de comminution

Dans les broyeurs, les particules ne sont pas sphériques et les ruptures se font rarement sous le mode de la compression diamétrale. Comme on le verra par la suite, celles-ci se gênent mutuellement partageant de nombreux contacts. En outre, la transmission des contraintes n'a pas de raison de se faire uniquement dans la direction normale au contact entre grains. Le frottement et la forme des

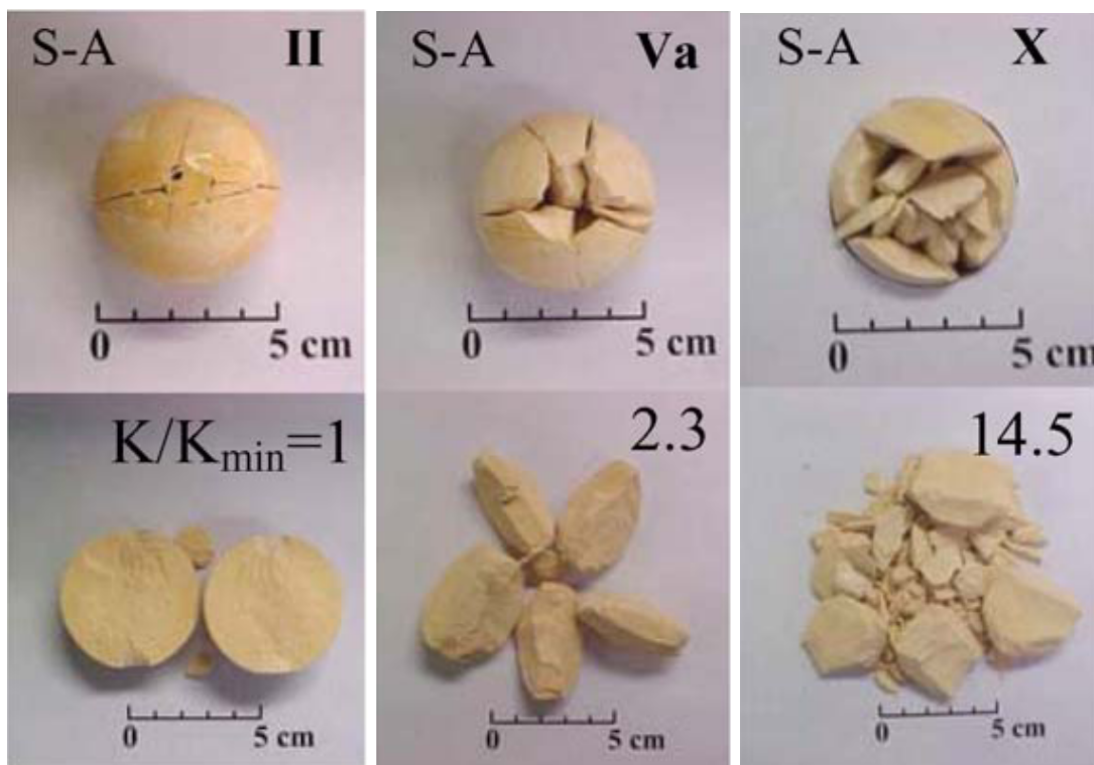


FIGURE 1.14. – Exemple de faciès de rupture de particules de plâtre sollicitées sous double impact (énergie croissante de gauche à droite) [57]

particules induisent nécessairement la présence de zones fortement cisailées qui peuvent se rompre par clivage ou s'abriter progressivement.

Pour ces raisons, les sollicitations mécaniques à l'échelle d'un grain dans un broyeur sont toujours une combinaison complexe et, pour une même particule, certaines zones peuvent être à la fois sollicitées en traction, compression et cisaillement (comme on a pu le voir dans le cas simple de la compression diamétrale). Il est par contre plus aisé de classer les sollicitations en fonction du niveau d'énergie qu'elles impliquent. Trois principaux régimes de comminution sont souvent distingués du plus quasistatique au plus dynamique (figure 1.15) :

- Régime d'abrasion provoqué par des contraintes localisées.
- Régime de clivage provoqué essentiellement par des forces de compression peu dynamiques.
- Régime de "pulvérisation" (Shatter) sous impact fortement dynamique.

Cette figure présente également des granulométries typiques correspondantes à chacun de ces régimes. Il faut tout de même noter qu'en pratique ces régimes sont souvent présents simultanément dans les broyeurs pour lesquels les vitesses de sollicitations sont très hétérogènes et des zones inertielles peuvent coexister avec des zones mortes d'écoulement.

Enfin, il faut noter que pour des particules structurées et anisotropes, certains modes de comminution peuvent être privilégiés ou d'autres modes peuvent même exister. En pratique, il est également possible d'avoir des ruptures dues à des sollicitations non purement mécaniques, par exemple des effets thermiques, thermoélectriques ou ultrasoniques... Cependant, l'utilisation intentionnelle ou non de tels effets dans les broyeurs reste très marginale ; et nous n'en parlerons pas ici.

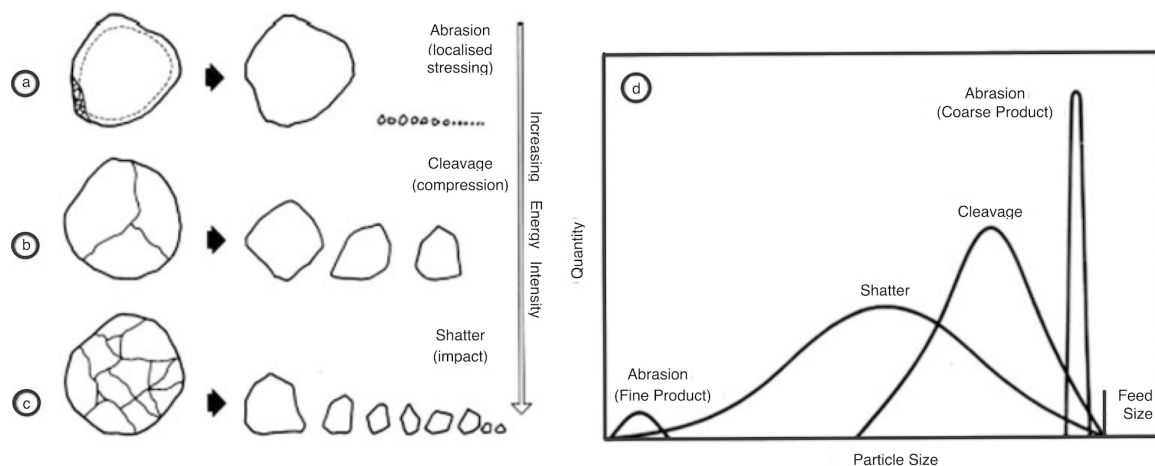


FIGURE 1.15. – Régimes de comminution dans un broyeur : a) abrasion, b) clivage, c) “pulvérisation” (Shatter). d) Distribution granulométrique associée aux régimes de comminution [58].

1.2.5. Modélisation numérique du comportement et de la rupture

La modélisation du comportement des solides a fait l'objet de très nombreuses études théoriques et expérimentales en mécanique. Elle a conduit au développement de plusieurs approches numériques.

Méthodes de types Éléments Finis

Une des plus connues et des plus utilisées est la Méthode par Éléments Finis (FEM). Cette méthode consiste à décrire le comportement par des grandeurs continues valables à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif (VER). La simulation s'appuie sur un maillage du domaine considéré qui peut être structuré ou non ; les grandeurs mécaniques sont calculées sur la base d'équations aux dérivées partielles résolues au niveau des noeuds et éléments de ce maillage.

La méthode FEM classique a été adaptée pour étudier la propagation de fissure. Il est alors nécessaire de remailler le solide en pointe de fissure au fur et à mesure que celle-ci avance pour éviter que celle-ci ne passe à travers un élément. Ce remaillage est coûteux en temps de calcul d'autant plus qu'il faut transférer les données de chaque noeud de l'ancien maillage aux noeuds du nouveau maillage ; étape s'avérant souvent complexe. De plus, il peut être nécessaire de vérifier manuellement le maillage à chaque nouvelle génération. La figure 1.16 présente un exemple du remaillage qui est fait au fur et à mesure que la fissure se propage.

Pour éviter ce remaillage, la méthode XFEM (*eXtended Finite Element Method*) a été mise au point. Dans cette méthode, la fissure est modélisée en introduisant des fonctions dérivées de la solution analytique de la propagation d'une fissure. Il n'y a donc plus besoin de remailler le solide. Parmi les approches dérivées des éléments finis pour modéliser la fissuration, on peut également citer la méthode des zones cohésives [60].

Méthodes Atomistiques

La complexité de ces méthodes découle du fait que les approches du type éléments finis relèvent de la mécanique des milieux continus ce qui rend difficile l'intégration des discontinuités apportées

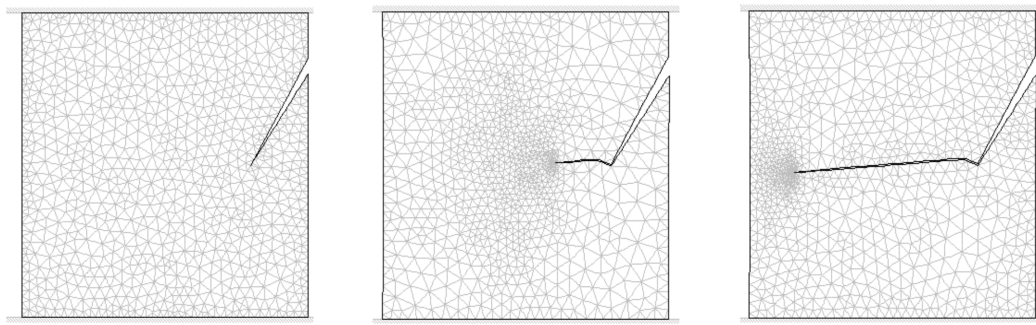


FIGURE 1.16. – Simulation d'un test en traction par éléments finis. De gauche à droite on peut voir la propagation de fissure et le remaillage qui est réalisé [59].

par la présence de fissures. Une alternative consiste à s'appuyer sur des méthodes sans maillage, en particulier les approches discrètes. Parmi elles, les approches atomistique permettent de modéliser le comportement depuis l'échelle des atomes. Ceux-ci sont considérés comme des particules ponctuelles et les forces d'interactions entre celles-ci sont calculées à partir de leurs positions relatives. En raison de la puissance de calcul considérable qu'il faut mettre en oeuvre, ces méthodes sont le plus souvent limitées à l'étude de phénomènes locaux. Les matériaux doivent être relativement simples, soit qu'ils soient composés de phases pures, soit que les hétérogénéités aient des tailles dans l'ordre de grandeur de celles des atomes. Sur la figure 1.17, un exemple est donné pour une propagation de fissure dans du silicium contenant un atome étranger. Les approches atomistiques ne peuvent alors pas être appliquées à la rupture de particules.

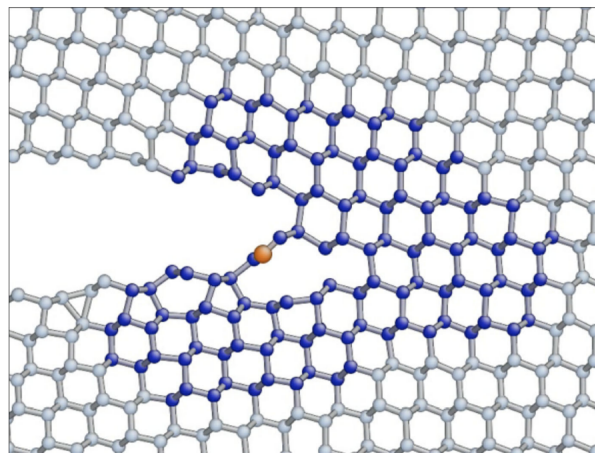


FIGURE 1.17. – Simulation de la propagation d'une fissure dans du silicium incluant un défaut sous la forme d'un atome de bore [61]

Néanmoins, il est possible d'utiliser des approches de Dynamique Moléculaire (DM) dites "gros grains" pour limiter le nombre d'éléments constituant le matériau. Les grains constituant la matière ne représentent alors plus les atomes mais une échelle supérieure. Ces grains sont des points matériels dont on calcule les forces d'interactions à partir de leur position relative, comme dans les approches atomistiques. Il est alors possible de modéliser la fracturation d'une particule (figure 1.18) mais les calculs restent encore lourds au vu du nombre important de grains impliqués.

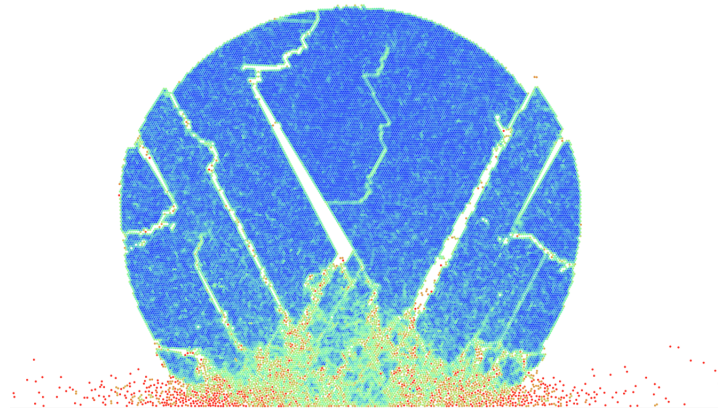


FIGURE 1.18. – Simulation de la fragmentation d'un disque impactant une cible rigide utilisant la dynamique moléculaire avec une approche "gros grains". L'interaction entre les points matériels est modélisée par un potentiel de Lennard-Jones [62]. La coloration représente l'énergie potentielle élastique des particules maximale en bleu et minimale en rouge.

Méthodes en Éléments Discrets

A une échelle plus importante, l'approche par élément discret appelée également *Discrete Element Method* (DEM) considère le matériau comme étant constitué d'un ensemble de particules solides et non plus ponctuelles possédant une forme et une taille propre. Contrairement aux approches précédentes, les éléments constituant les matériaux ne sont plus soumis à des interactions à distances mais à des forces de contact. Dans l'approche développée par Cundall [63], les forces aux contacts sont calculées à partir de l'interpénétration des grains qui doit rester la plus faible possible pour rester réaliste. La rigidité du contact doit donc être élevée et en contrepartie le pas de temps utilisé est très faible ce qui augmente le temps de calcul [64].

Au contraire dans le cadre de la Dynamique des Contacts (DC), développée par Moreau et Jean [65, 66, 67] les grains ne peuvent pas s'interpénétrer. Les forces de contact sont calculées à partir de la vitesse relative entre les éléments. Les lois de contact ne sont ici pas régularisées et les grains subissent des sauts de vitesse au fil des différentes collisions. A cause de ces discontinuités, les équations du mouvement nécessitent un schéma d'intégration implicite. La DC permet donc d'avoir des pas de temps plus grands qu'avec les schémas d'intégration du type DM.

La DEM est beaucoup utilisée pour étudier les milieux granulaires mais permet également d'étudier la fracturation de particules en utilisant des modèles de DEM cohésifs. Dans ce cas, la particule est modélisée sous la forme d'un agglomérat de grains liés ensemble par des forces de cohésions. En introduisant un critère basé sur une énergie ou une contrainte critique de rupture il est alors possible de briser le lien existant entre les grains et ainsi de briser la particule. A l'échelle de l'échantillon, la propagation d'une fissure consiste en la rupture successive de ces ponts cohésifs. Après rupture, la méthode DEM présente l'avantage de gérer naturellement le contact entre les fragments. Néanmoins, les fissures passent nécessairement par l'interface inter-grain, ce qui fixe d'avance les chemins de fissure possibles. Enfin, dans le cas où les grains sont des sphères (ou disques en 2D), la particule présente une porosité qui n'a pas nécessairement de réalité physique (figure 1.19). On peut corriger ce défaut en divisant la particule en différents polygones (en 2D)

(figure 1.20a) ou polyhèdres (en 3D) (figure 1.20b) à l'aide d'une tessellation de Voronoï par exemple. Dans ce cas la détection des contacts est plus complexe.

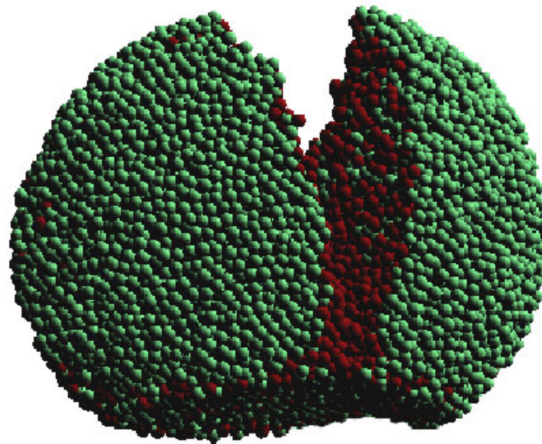


FIGURE 1.19. – Simulation par éléments discrets cohésifs de la fragmentation d'une particule sphérique par impact sur une cible rigide [68].

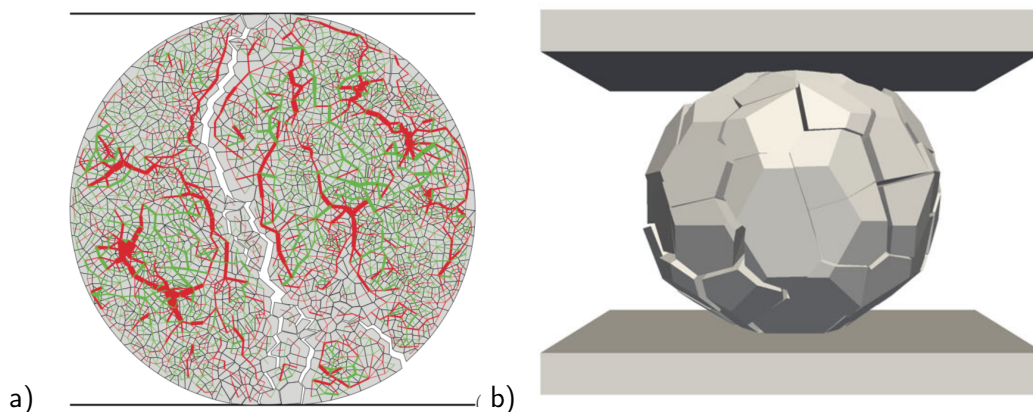


FIGURE 1.20. – Simulation de la fissuration quasi-statique d'un disque par dynamique des contacts. a) Simulation 3D [69] b) Simulation 2D avec les lignes rouges et vertes représentant respectivement les contacts en compression et tension [70].

Méthodes sur réseau

Une façon d'éviter de fixer à l'avance les chemins de fissure possibles est d'utiliser des approches sur réseau du type *Lattice Element Method* (LEM). Le matériau est composé d'un ensemble de noeuds appartenant à une grille. Chaque noeud est alors relié par des éléments 1D à un nombre limité de proches voisins qui restera toujours le même. Ces éléments peuvent se comporter alors comme des liens inélastiques comportant un seuil de rupture, pour étudier notamment la statistique de rupture, mais également comme des ressorts élastiques ou des poutres. La connectivité définie à l'avance des noeuds permet d'éviter de devoir actualiser la liste des voisins comme c'est le cas en DEM et donc de gagner en temps de calcul. Cette méthode est également particulièrement adaptée

pour modéliser des matériaux avec plusieurs phases comme les matériaux granulaires cimentés [71, 72, 73]. Néanmoins, les fractures passant entre proches voisins subissent les anisotropies locales du maillage.

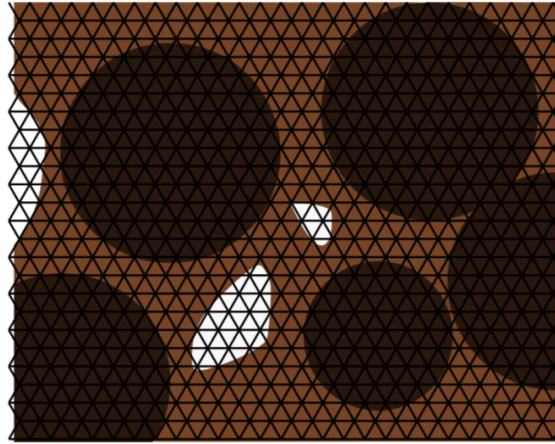


FIGURE 1.21. – Illustration de la discrétisation par réseau d'un échantillon triphasique par la méthode LEM à l'aide d'un réseau triangulaire [74].

Dans cette thèse, nous avons fait le choix d'utiliser une méthode appelée Peridynamique Bond Based qui sera détaillée dans la première section du chapitre 2. Cette méthode sur réseau s'appuie sur un voisinage étendu et permet de s'affranchir en grande partie des effets d'anisotropies de maillage présents dans l'approche LEM.

1.3. Comportement à l'échelle de plusieurs grains

Dans cette section, on s'intéresse aux interactions entre deux ou plusieurs grains. Celles-ci sont importantes pour mieux appréhender le comportement à l'échelle du lit de poudre. Les quelques résultats présentés relèvent de l'étude des matériaux granulaires, domaine à part entière qui reste très actif [75, 76]. En donner une présentation exhaustive est illusoire et dépasse le cadre de cette thèse. On se limitera ici à l'énumération de quelques points qui nous ont semblé important pour la suite ; regroupés dans trois sections. La première section rappelle les différentes interactions cohésives possibles entre particules. Dans la deuxième section, on s'intéressera au comportement de l'assemblage de grains. Enfin, on donnera quelques éléments sur les principales lois phénoménologiques de broyage.

1.3.1. Interactions à l'échelle du grain

Les interactions à l'échelle des grains sont complexes et peuvent avoir différentes origines. On présente succinctement les principales interactions cohésives qui peuvent jouer un rôle important au cours du broyage. Le problème de la modélisation des chocs et du contact ne sera pas explicité ici pour des raisons de concision. Plus d'informations à ce sujet pourront être trouvées dans le livre de J.N. Israelachvili [77].

Interactions à distance

Forces de van der Waals : Les forces de van der Waals sont des interactions électriques de faible intensité et peuvent être définies entre molécules, ou entre une molécule et un cristal. Ces forces ont plusieurs origines liées à des effets d'orientation (forces de Keesom), des effets d'induction (forces de Debye) et des effets de dispersion (forces de London). Le terme de London est le terme prépondérant en intensité. De plus il est toujours présent car il ne dépend pas de la nature des molécules. Ainsi, les forces de van der Waals sont présentes quelles que soient les matériaux en interaction.

La force de van der Waals entre deux sphères de rayon R d'un même matériau a été exprimée par Hamaker [78] et suit la relation :

$$F_{vw} = \frac{HR}{12y^2} \quad (1.22)$$

avec y la distance entre les centres de masse des particules et H la constante d'Hamaker qui dépend des matériaux en présence et du milieu ambiant. H est par exemple plus faible dans l'eau que dans l'air, c'est pourquoi la dispersion d'une poudre dans l'eau est souvent plus facile [24]. La portée des forces de van der Waals est théoriquement infinie. En pratique, la plage de distance pour laquelle ces forces sont significatives est comprise entre 0.2 nm (espace inter-atomique) et 10 nm et n'excède pas 100 nm [79].

Forces électrostatiques : Des forces électrostatiques peuvent apparaître suite à un déséquilibre des charges électriques à la surface des particules qui peuvent résulter d'un échange d'électrons suite à un frottement entre les particules ou contre des surfaces. Cette force est proportionnelle au produit des charges et peut être attractive ou répulsive selon leurs signes.

Dans un système de deux particules sphériques de charges q_1 et q_2 , chaque particule exerce sur l'autre une force électrostatique dont l'intensité est donnée par la loi de Coulomb [79] :

$$F_e = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r y^2} \quad (1.23)$$

où $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12} \text{ C J}^{-1} \text{ m}^{-1}$ est la permittivité du vide, ϵ_r la permittivité relative du milieu.

Force de capillarité

La présence de liquide dans un milieu granulaire crée des forces de cohésions par le biais de ponts liquides entre les grains. Cette force va dépendre de la quantité de liquide, de sa tension de surface et de sa viscosité.

Le calcul de cette force est complexe et plusieurs modèles ont été proposés. Richefeu *et al.* a développé un modèle simplifié, reliant la force capillaire f_{cap} aux paramètres géométriques et physiques du pont capillaire [80, 81] :

$$f_{cap} = -\kappa \sqrt{R_1 R_2} e^{-d_n/\lambda} \text{ pour } 0 \leq d_n \leq d_{rupture} \quad (1.24)$$

où d_n est la distance séparant les surfaces des deux particules et κ est déterminé par $\kappa = 2\pi\sigma \cos \theta$ [82, 83, 84] avec σ la tension superficielle du liquide, θ l'angle de mouillage et R_1 et R_2 les rayons des particules. $\lambda = \lambda(V, R_1, R_2)$ avec V le volume de liquide, gouverne la décroissance exponentielle de la force capillaire en fonction de la distance normale [81].

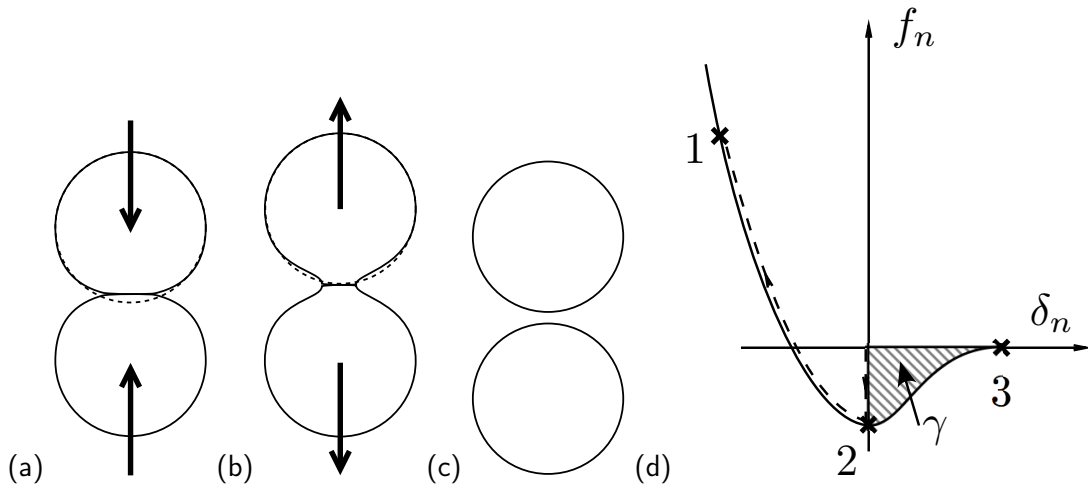


FIGURE 1.22. – Trois étapes dans la formation et la rupture d'un contact adhésif. (a) Formation du contact adhésif; (b) résistance à la traction due à la présence d'adhésion; (c) rupture pour une valeur de $\delta_n > 0$. (d) Evolution de f_n en fonction de δ_n . γ représente l'énergie nécessaire à la rupture du contact adhésif.

Forces d'adhésion

Les forces d'adhésion au contact entre deux particules peuvent avoir des origines physico-chimiques diverses (dont les forces de van der Waals font parties). Pour expliquer ce phénomène, on peut partir de l'exemple présenté sur la figure 1.22. Trois étapes sont représentées sur cette figure. Tout d'abord, on applique progressivement un chargement aux deux sphères (figure 1.22a). Sur le diagramme 1.22d la force f_n évolue en fonction de δ_n en suivant la courbe en pointillé jusqu'à atteindre un point noté 1. Si l'on applique ensuite une sollicitation de traction aux deux particules, les forces d'adhésion vont résister à la séparation des deux particules (figure 1.22b correspondant au point 2 sur la figure 1.22d) jusqu'au décollement des particules (figure 1.22c, point 3 sur la figure 1.22d). On remarque que la distance à laquelle se forme le contact n'est pas la même que la distance de rupture. On note γ le travail par unité de surface nécessaire pour séparer deux particules 1 et 2. Ce travail peut être décomposé de la façon suivante :

$$\gamma = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{12} \quad (1.25)$$

où γ_1 et γ_2 sont les énergies de surfaces des solides et γ_{12} celle obtenue avec les deux solides en contact.

Modèle DMT et JKR Deux modèles sont couramment utilisés pour calculer l'énergie, la force et le rayon de l'aire de contact entre les particules : le modèle de DMT et de JKR. Le modèle DMT développé par Derjaguin, Muller et Toporov [85] considère que la déformation au contact entre les particules est la même que celle prédite par la théorie du contact de Hertz [86]. La force d'attraction est calculée en intégrant les forces intermoléculaires de l'infini jusqu'au rayon de la zone de contact. Cette force s'exprime alors par :

$$F_{DMT} = -4\pi\gamma R^* \quad (1.26)$$

avec $R^* = \frac{R_1 R_2}{R_1 + R_2}$ le rayon réduit et R_1 et R_2 les rayons des deux particules.

Johnson, Kendall et Roberts ont proposé un modèle (appelé JKR) [87] qui s'appuie également sur le modèle de contact de Hertz mais ici on considère que les forces d'attractions suffisent à déformer la particule au contact. Le principe consiste à relier l'aire du contact à l'élasticité du milieu en tenant compte de l'énergie de surface au niveau de la zone de contact. Dans ce modèle, la force maximale pour séparer les particules est donnée par :

$$F_{JKR} = -3\pi\gamma R^* \quad (1.27)$$

On peut noter que γ peut être relié à la constante de Hamaker H , ce qui permet d'assurer la continuité de la transition entre l'interaction sans contact (van der Waals) et avec le modèle de JKR. En effet, il est possible d'utiliser l'expression $A_H = 24\pi\delta_0^2\gamma$ [88] où δ_0 est généralement égal à la distance inter-atomique divisé par 2.5 [77].

Le modèle de JKR est une bonne approximation pour les grandes énergies d'adhésion, les particules de grandes tailles et de faible module d'élasticité tandis que le modèle de DMT est en général utilisé pour les faibles adhésions, les matériaux rigides et les particules de petites tailles.

L'ensemble de ces forces cohésives a tendance à "coller" les particules dans le milieu granulaire. Sur la figure 1.23 l'intensité de ces différentes forces est représentée en fonction de la taille de la particule.

Lors d'un broyage en voie sèche, les interactions par capillarité peuvent être négligeables⁵ au vu de la faible quantité d'eau. Pour des poudres ultra-fines, les forces de van der Waals et électrostatiques ont potentiellement un effet important sur la cohésion et dominant théoriquement la gravité pour des particules de l'ordre du millimètre.

Néanmoins, il est important de noter que les expressions des forces présentées ci-dessus sont données pour deux particules sphériques et parfaitement lisses. Dans les cas où l'on souhaite étudier des particules possédant une rugosité et ou une forme plus irrégulière, les calculs peuvent alors devenir très complexe et il n'y a pas nécessairement d'expression analytique.

A titre d'illustration, en se basant sur les travaux de Xie *et al.* [90], nous avons évalué les forces d'attractions de van der Waals entre deux grains en présence d'une aspérité (figure 1.24a). La figure 1.24b illustre l'évolution de cette force en fonction du rayon d'une aspérité modélisée par une calotte sphérique dont le centre est positionné sur la périphérie de la particule. Le calcul est effectué pour sur une particule de quartz de 1 mm de diamètre. On remarque que la force d'attraction de van der Waals est fortement impactée par la présence de l'aspérité et qu'elle peut être divisée par un facteur supérieur à 1000 pour une aspérité de l'ordre de 40 nm de rayon. Ceci aura une importance pour la suite dans la mesure où ce calcul montre qu'il est très difficile d'obtenir une évaluation de la force d'attraction à partir d'une taille moyenne de grain comme obtenue au granulomètre laser.

1.3.2. Comportement à l'échelle du lit de poudre

Dans la section précédente, nous nous sommes intéressés aux interactions de paires entre particules. Dans un matériau granulaire, ces particules s'assemblent de façon désordonnée dissipant ou s'opposant aux contraintes appliquées.

5. C'est le cas par exemple pour les broyages effectués sous gaz neutre.

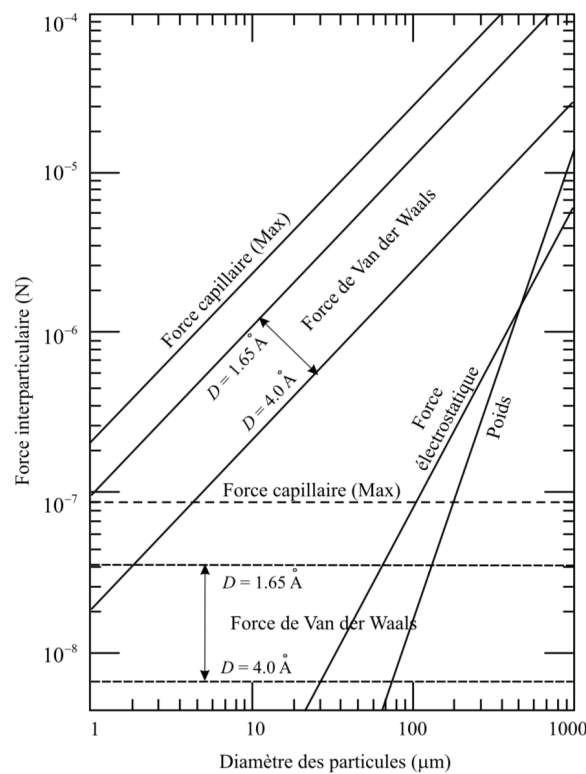


FIGURE 1.23. – Comparaison entre les différentes forces inter-particulaires d'après [89] dans l'air. En traits pleins pour des particules de même taille et en pointillés pour une aspérité de $0.1\mu\text{m}$ et un plan. La force de van der Waals est calculée avec $H = 6.5 \times 10^{-20} \text{ J}$ (cas du quartz). La force de capillarité est calculée en présence d'eau et la force électrostatique est calculée pour des charges surfaciques opposées de $10 \mu\text{C m}^{-2}$. Le poids est évalué pour une densité de 3100 kg m^{-3} .

Transmission de forces dans un milieu granulaire

Les milieux formés de grains interagissent à travers leur contact, le frottement et, comme nous l'avons vu dans la section 1.3.1, à travers des interactions d'adhésion. Même pour des grains simples (disques ou sphères) qui interagissent à travers du contact frottant, la transmission des forces (ou des contraintes) est complexe et fortement hétérogène. Elle joue un rôle important dans les opérations de broyage.

La transmission des forces dans les milieux granulaires a été étudiée expérimentalement [91, 92] et numériquement [93, 94, 95]. Contrairement aux matériaux continus, cette transmission hétérogène est marquée par une distribution des forces large. La figure 1.25 montre les chaînes de forces existant entre les grains et leur distribution. Cette distribution suit une décroissance exponentielle pour des valeurs de force supérieure à la force moyenne. Ceci montre que, bien que peu nombreuses, des forces de grandes intensités peuvent exister dans les systèmes granulaires et c'est au niveau de ces forces qu'apparaissent en priorité des ruptures de grains [97]. Les forces les plus faibles sont en nombre beaucoup plus important mais leur contribution à la fracturation reste minime. De nombreux grains peuvent d'ailleurs être soumis à aucune force. De plus, si une particule est en contact avec de nombreuses particules sur l'ensemble de sa surface, alors elle peut

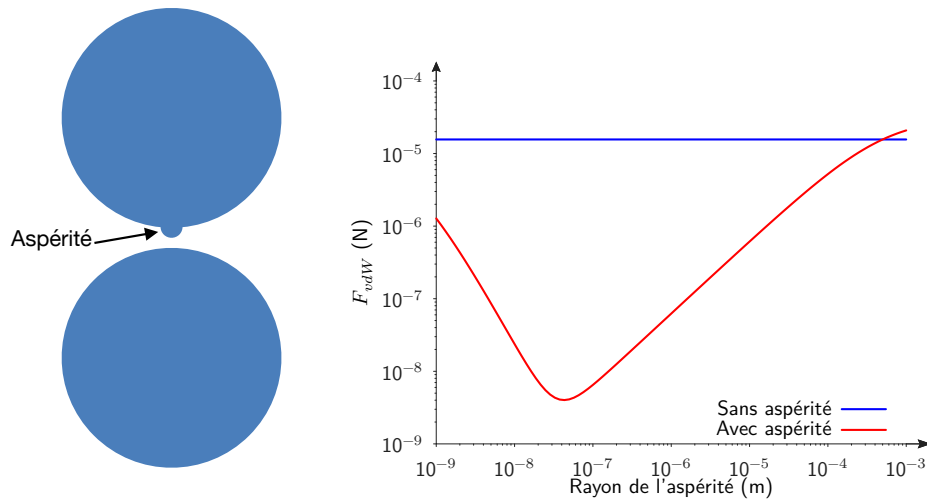


FIGURE 1.24. – a) Schéma d'une aspérité sphérique positionnée en surface d'une des deux sphères. Les deux particules sont supposées distantes de 4 Å. b) Force d'attraction de van der Waals entre deux sphères de quartz de 1mm de diamètre en fonction de la taille (rayon) de l'aspérité.

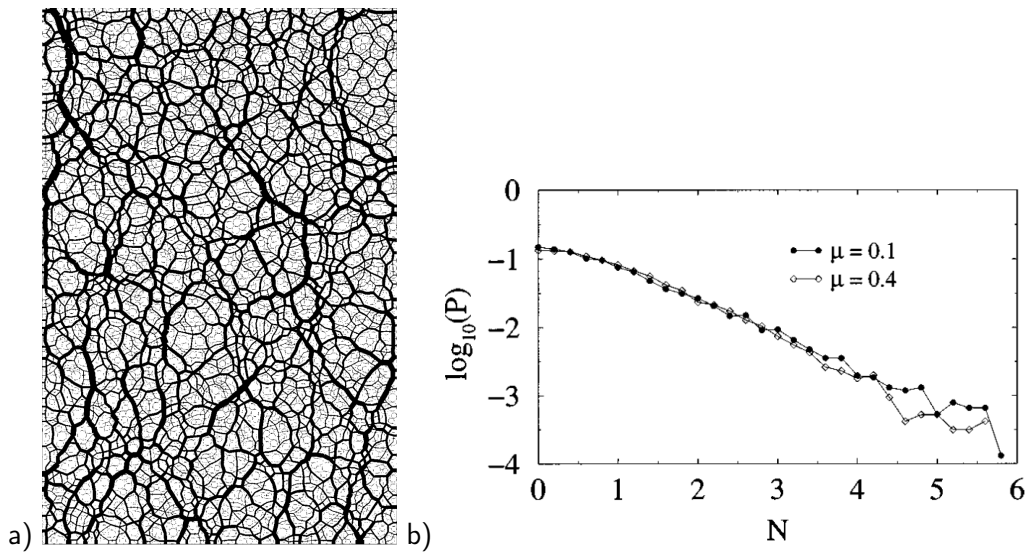


FIGURE 1.25. – a) Forces normales dans un assemblage de 4000 particules obtenues par simulation numérique. L'épaisseur des traits représente l'intensité de la force [96]. b) Densité de probabilité des forces normales dans un empilement granulaire 2D en utilisant la méthode de Dynamique Moléculaire et de Dynamique (MD) des Contacts (CD) [96].

se retrouver essentiellement soumise à une compression hydrostatique, ce qui évitera qu'elle se brise. On mesure cet effet en calculant la contrainte déviatorique agissant sur la particule. Les plus grosses particules sont celles qui ont le plus de chances de se retrouver dans cette situation car elles partagent le plus grand nombre de contact [98]. Sur la figure 1.26 on peut voir un exemple d'une grande particule entourée de nombreuses petites particules et qui reste intacte sous l'effet d'une

contrainte déviatorique faible. On peut noter également que les interactions de cohésion [100] et

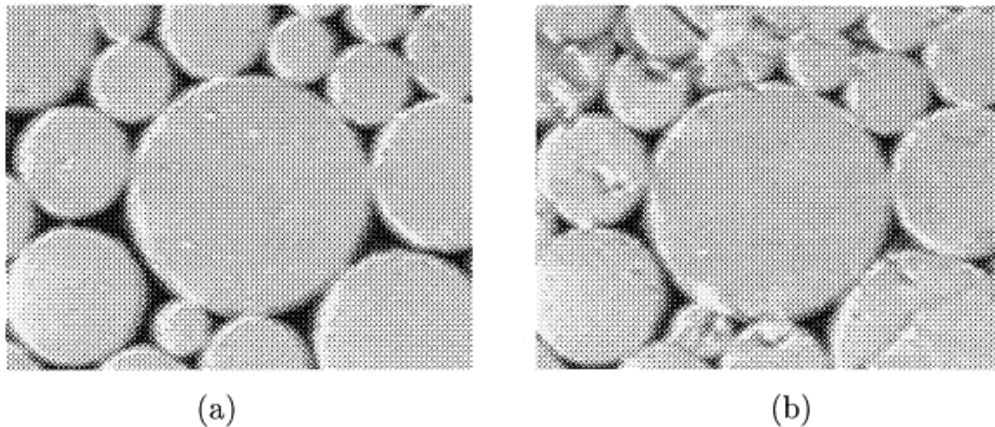


FIGURE 1.26. – Exemple de l'effet hydrostatique dans un empilement granulaire. La plus grosse particule est épargnée à cause de cet effet (d'après [99])

la forme [101, 102] des particules peuvent jouer un rôle important dans la transmission des forces.

Cohésion et frottement interne

Comme on l'a vu précédemment, la transmission des forces à travers le réseau de contact est complexe. D'un point de vue pratique, elle est impossible à caractériser dans une expérience de broyage, et il est souvent nécessaire de définir des paramètres rhéologiques à l'échelle du lit de poudre. Par exemple, il est classique de s'intéresser à la plasticité du matériau en fonction des contraintes macroscopiques appliquées. Cette plasticité résulte de la résistance de la structure mésoscopique de l'assemblage de grains et de ses possibilité de réarrangement à petites échelles. Si sans cohésion, le frottement joue souvent un rôle limité dans l'écoulement de la poudre, en présence de cohésion la mobilité des grains peut-être fortement réduite, conduisant à des phénomènes d'agglomération et dans les cas extrêmes à la formation d'une pâte.

Expérimentalement, la relation entre la contrainte de cisaillement et la contrainte normale appliquée est souvent linéaire. Pour cette raison, la relation entre le seuil d'écoulement plastique σ_t et la contrainte normale σ_n appliquée est souvent approximée par le modèle de Mohr-Coulomb en technologie des poudres ou en mécanique des sols. Ce modèle permet de définir les deux paramètres φ et c qui correspondent respectivement à l'angle de frottement interne et à la cohésion du milieu granulaire.

$$\sigma_t = c + \sigma_n \tan \varphi \quad (1.28)$$

avec c la cohésion et φ l'angle interne de frottement.

Enfin, on pourra noter que le comportement mécanique de la poudre dans un broyeur est très complexe. La forme des particules et la polydispersité de taille jouent un rôle important. De plus, les sollicitations fortement inhomogènes présentent dans les broyeurs et les effets inertiels des particules jouent un rôle également important mais peu connu car difficiles à appréhender.

1.3.3. Loïs de broyages

Plusieurs lois de broyages ont été proposées afin d'établir une corrélation entre l'énergie de broyage et la granulométrie du produit obtenu. Les plus connues sont celles de Von Rittinger,

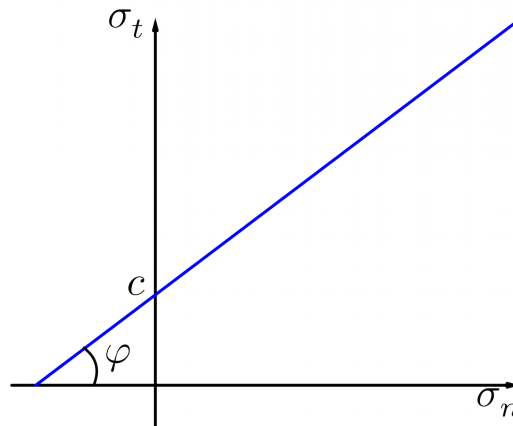


FIGURE 1.27. – Evolution de la contrainte seuil d'écoulement plastique en fonction de la contrainte normale appliquée.

Kick et Bond. Initialement développée pour l'industrie minière, chacune de ces méthodes exprime l'énergie de broyage en fonction de la finesse de la poudre. Pour Von Rittinger [103] l'énergie de broyage est directement proportionnelle à la création de surface. Il relie l'énergie spécifique de broyage E_m (énergie par unité massique de produit) avec la variation de surface spécifique :

$$E_m = K_r(S_{p2} - S_{p1}) \quad (1.29)$$

avec K_r , constante dépendant de la nature du produit et du broyeur et S_{p1} et S_{p2} les surfaces spécifiques du produit avant et après broyage. Cette loi a montré son efficacité sur différents matériaux mêmes lignocellulosiques bien que cela soit pour des particules millimétriques [104, 105]. Cependant, en réalité la création de nouvelles surfaces ne suffit pas à expliquer la consommation énergétique des broyeurs puisque l'énergie dépensée est 200 à 300 fois plus grande que l'énergie de surface des matériaux [24]. Kick propose donc un modèle basé sur la variation d'énergie en fonction de la variation de volume (plus spécifiquement du rapport entre le volume avant et après fracturation). Il obtient donc l'évolution de l'énergie massique E_m en fonction du ratio de diamètre moyen avant (D_1) et après broyage (D_2) :

$$E_m = K_k \ln \left(\frac{D_1}{D_2} \right) \quad (1.30)$$

Or, il est connu qu'il faut une énergie plus importante pour fractionner des particules de faibles tailles en comparaison à des particules plus grandes, ce que la loi de Kick ne prend pas en compte. Ainsi en utilisant les données d'énergie relatives à un broyage grossier, l'extrapolation vers des tailles beaucoup plus fines donnera des valeurs d'énergies de broyage largement sous-estimées. [24]. Bond [106], quant à lui, exprime l'évolution d'énergie spécifique en fonction de la différence de l'inverse de la racine du d_{80} après et avant broyage (voir Eq. 1.31)

$$E_m = 10W_i \left(\frac{1}{\sqrt{D_2}} - \frac{1}{\sqrt{D_1}} \right) \quad (1.31)$$

avec W_i une constante matériau⁶ appelée *Bond Work Index* [107] égale à l'énergie nécessaire pour broyer une unité de masse de matériau d'une taille infinie à une taille de $100\mu\text{m}$ [24].

6. Elle est mesurée par un test de broyabilité spécifique développé par Bond

Au travers des différentes études menées dans la littérature, la loi de Kick s'est montrée plus adaptée pour prévoir les consommations énergétiques lors de broyages grossiers, celle de Bond lors des broyages intermédiaires et celle de Rittinger pour les broyages fins [108]. Parmi l'ensemble de ces lois, Bond reste la plus connue et la plus utilisée dans l'industrie minière notamment grâce à sa simplicité. Néanmoins, dans de nombreux cas, ces lois ne permettent pas d'établir une bonne corrélation entre la réduction granulométrique et la consommation énergétique. Holmes a donc proposé de remplacer la racine carré de la loi de Bond par un exposant r variant avec le matériau [41] et Svensson et Murkes ont proposé d'utiliser la moyenne géométrique des d_{10} , d_{30} , d_{50} , d_{70} et d_{90} au lieu du d_{80} uniquement [108]. En s'appuyant sur le constat que les lois de Rittinger, Kick et Bond proviennent d'une même équation différentielle, Walker et Shaw ont proposé de les rassembler selon l'équation :

$$dE_m = -K_c \frac{dD}{D^n} \quad (1.32)$$

avec $n = 1$ pour la loi de Kick, $n = 1.5$ pour celle de Bond et $n = 2$ pour celle de Rittinger. Hukki modifiera ensuite cette loi en postulant que n n'est pas constant et dépend de la taille de la particule [109].

Enfin, on peut signaler l'existence de modèles basés sur des bilans de population pour décrire l'évolution de la granulométrie au cours du broyage. Bien qu'intéressants, ces modèles nécessitent un nombre important de mesures pour être calibrés. En effet, il est nécessaire de faire des essais de broyages indépendants pour chaque fraction granulométrique considérée. Ceci est particulièrement difficile pour les fractions les plus fines non séparables par tamisage. Pour cette raison, cette méthode ne sera pas utilisée par la suite. Quelques commentaires à ce sujet sont disponibles en annexe .B.

1.4. Technologies de broyages

Les différentes lois de broyages vues précédemment ont été appliquées à de nombreux broyeurs en industrie ou en laboratoire. Ces différents types de broyeurs peuvent être classés selon la granulométrie cible qu'ils permettent d'atteindre [110]. La qualification de broyage grossier est généralement utilisé jusqu'à 0.5 mm, celui de broyage fin jusqu'à une dizaine de μm , et d'ultra-fin pour les tailles inférieures. Le broyage grossier est le plus souvent opéré par des concasseurs dans l'industrie minérale et des broyeurs à marteaux ou couteaux pour la biomasse lignocellulosique. Il ne seront pas détaillés dans cette partie où nous nous concentrerons sur les technologies pour le broyage fin et ultrafin qui font l'objet de cette thèse.

1.4.1. Les broyeurs à compression

Presse à rouleaux

Deux rouleaux en rotation exercent une compression sur le matériau à broyer à l'aide d'un système de pressage hydraulique (figure 1.28). Ce type de broyeur produit généralement beaucoup de fines particules et la poudre sort sous forme de plaques agglomérées. Un système est donc souvent ajouté en sortie de broyeur pour désagglomérer le produit, et des racleurs sont parfois également utilisés pour décoller la poudre des rouleaux. Les rouleaux peuvent présenter différents types de motifs pour améliorer le passage du produit. Cette technologie est souvent employée pour un broyage préliminaire avant une étape de finition au broyeur à boulets par exemple. Mais des versions avec séparateur permettent d'atteindre des tailles plus faibles de l'ordre de $20\mu\text{m}$.



FIGURE 1.28. – Schema du principe de fonctionnement d'une presse à rouleaux (à gauche) et photo d'un type de rouleaux possédant une surface utilisée pour améliorer le passage du produit (à droite).

Broyeurs verticaux

Reposant sur le même principe que les presses à rouleaux, ces broyeurs sont constitués de meules, galets ou boules roulant sur une piste, fixe ou tournante, venant écraser le produit (figure 1.29). La pression s'exerce soit par gravité, soit par pression hydraulique. Ces broyeurs sont couplés à des sélecteurs qui permettent d'améliorer leur efficacité. Les flux d'air important utilisés pour la circulation du produit permettent d'ajouter à ces broyeurs une fonction de séchage. Ce type de broyeur peut atteindre des tailles de l'ordre d'une vingtaine de micromètres et est utilisé à l'échelle industrielle pour des débits pouvant aller jusqu'à 5500 t/h.

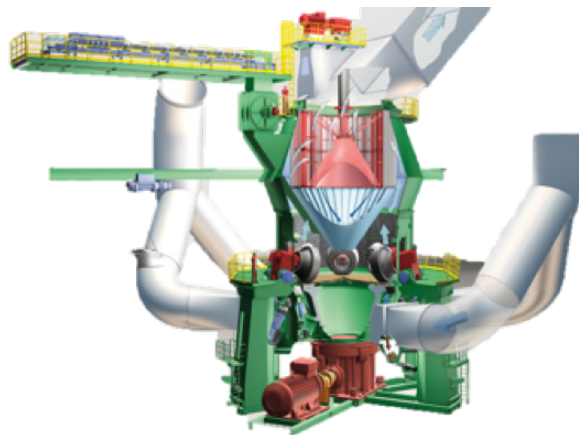


FIGURE 1.29. – Dessin d'un broyeur vertical Quadropol fabriqué par Polysius

1.4.2. Les broyeurs à impacts

Broyeurs à disques

Ces technologies sont constituées de disques en rotation sur lesquels sont montés différents outils tels des marteaux, doigts ou encore lames qui viennent percuter le produit. Les disques peuvent tourner jusqu'à 150 m/s [111]. La diversité des broyeurs proposés par les fournisseurs est grande et de nombreux broyeurs de laboratoires reposent sur un principe similaire.



FIGURE 1.30. – Photo du broyeur à disques Alpine CW Contraplex

Broyeurs à jet d'air

Les deux grands types de broyeurs à jet d'air sont le broyeur à lit fluidisé (figure 1.31a) et le broyeur à spirale (figure 1.31b).

Broyeur en lit fluidisé Le produit à broyer est inséré en continu par le haut d'une chambre dans laquelle des buses (au minimum 3) envoient des jets d'air comprimé à 1000 ou 1200 m/s. Ces jets d'air projettent le produit au centre de la chambre où les particules s'entrechoquent et se brisent. Il s'agit d'un broyage autogène car les particules sont fragmentées par contact entre elles. Ainsi, l'usure des pièces mécaniques de broyeur est considérablement diminuée, réduisant les coûts et les contaminations du produit en particules métalliques. Ce broyeur est particulièrement efficace pour des produits ayant des duretés supérieures à 4 sur l'échelle de Mohs. Il permet également d'assurer une fonction de séchage du produit grâce à ses débits d'air élevés. Néanmoins, ces débits d'airs importants entraînent une consommation élevée d'énergie. Ce type de broyeur est donc plutôt utilisé pour des produits à forte valeur ajoutée comme dans l'industrie pharmaceutique par exemple. La finesse atteinte, de l'ordre du micromètre, reste un atout majeur de cet équipement.

Broyeur en spirale Le broyeur à assiette (ou spirale) repose sur le même principe mais la chambre se présente sous la forme d'une "galette" (une variante existe également avec une chambre de broyage en forme de "U") équipée de buses disposées tangentiellement à la paroi externe de la chambre et orientées toujours dans le même sens. Le produit est inséré par un côté et décrit un mouvement circulaire. Le broyage est réalisé sous l'action de chocs autogènes et de frottements contre la paroi de la chambre. Au fur et à mesure que la taille des particules diminue, les particules se rapprochent du centre où elles sont évacuées.

Les frottements entre les parois et le produit étant importants, il est préconisé de ne pas passer un produit possédant une dureté supérieure à 4 sur l'échelle de Mohs.

1.4.3. Broyeur à media broyant

Ces technologies ont la particularité d'utiliser des billes ou boulets mis en mouvement avec le produit et dont les mouvements (chocs et frottements) permettent la réduction en taille des

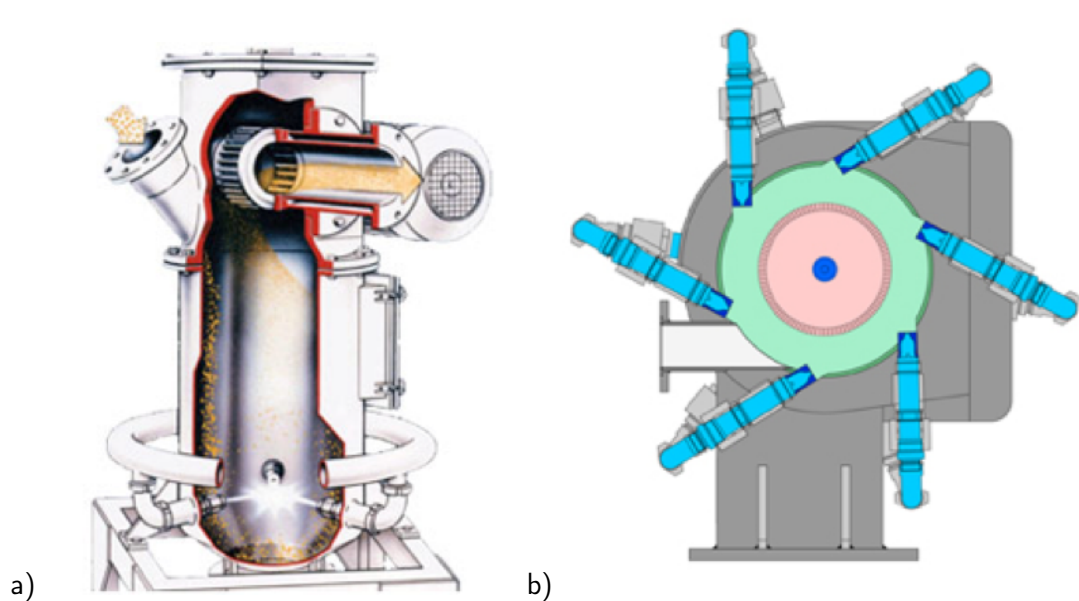


FIGURE 1.31. – a) Dessin d'un broyeur à jets d'air opposés Alpine AFG. b) Schéma de principe vue du dessus d'un broyeur à assiettes.

particules. Les matériaux employés doivent être assez résistants pour survivre aux contraintes mécaniques et à l'usure engendrée par le broyage. L'alumine et différents types d'acier (acier fortement allié en chrome par exemple) sont généralement utilisés.

Plus la masse unitaire d'un media sera importante (densité grande et taille importante), plus grande sera son énergie, et permettra la comminution de particules de tailles importantes. A l'inverse, une faible taille de media broyant permet d'augmenter la surface de contact utile au broyage engendrant une meilleure dispersion du produit et limitant les phénomènes d'agglomération. Il existe plusieurs formes de media broyant : sphère, barres, cylpebs, etc.. (figure 1.32). Les cylpebs sont censés être plus avantageux que les boulets car leur surface est plus importante. En effet, à masse égale avec une sphère, il développe une surface supérieure de 15%.



FIGURE 1.32. – Exemples de media broyants utilisés : a) boulets b) cylpebs.

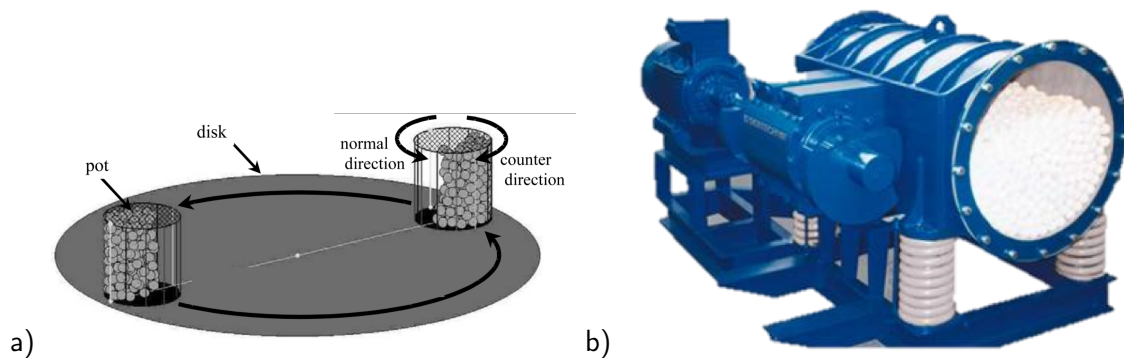


FIGURE 1.33. – Schema du fonctionnement d'un broyeur planétaire [112] (a) et photo d'un broyeur vibrant excentrique de Siebtechnik (b).

Broyeur planétaire

Ces broyeurs sont constitués d'une chambre de broyage tournante, elle même fixée en excentrique sur un disque en rotation. Les billes de broyages viennent alors percuter violemment le produit sur les parois de la cuve du broyeur. Un schéma du principe de fonctionnement peut être vu sur la figure 1.33a.

Broyeur vibrants

Ce sont des broyeurs constitués d'une chambre mise en mouvement par vibration et remplie de media broyant (figure 1.33b). Le produit subit alors de nombreux chocs, des efforts de compressions et de cisaillements.

Ces broyeurs sont capables de broyer des matériaux de toute dureté mais le broyage dans l'ultra-fin dépend du type de broyeur. Le rendement d'un broyeur de type Palla par exemple chute très rapidement lorsque la taille des particules passe en dessous de $100\ \mu\text{m}$ alors qu'un broyeur Sweco peut broyer jusqu'à des finesses de l'ordre du micromètre.

Broyeurs à boulets

Le broyeur à boulets est constitué d'une chambre cylindrique ou semi-conique horizontale tournant sur elle-même et chargée de media broyant. Selon la vitesse de rotation du broyeur, le régime du broyeur sera dit en cascade si les boulets ne font que rouler sur le produit, ou en cataracte si les boulets s'élèvent et se décollent de la cuve avant de retomber sur le produit (figure 1.34). Ce régime amplifie les contraintes de chocs par rapport aux phénomènes de cisaillement, de compression et de frottement.

Le changement de régime est principalement relié à deux paramètres opératoires : la vitesse de rotation du broyeur et son taux de remplissage. Une vitesse élevée et le taux de remplissage bas favoriseront le phénomène de cataracte.

La vitesse de rotation du broyeur est généralement exprimée en pourcentage de la vitesse critique (N_c) qui correspond à la vitesse à partir de laquelle les boulets restent collés à la paroi du broyeur sous l'action de la centrifuge. Elle est fonction de la taille de la cuve et de la taille et de la

masse des boulets [113] :

$$N_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{2g}{D - 2r}} \quad (1.33)$$

avec g l'accélération de pesanteur, D le diamètre du broyeur, et r le rayon du boulet. Usuellement, la vitesse est comprise entre 65% et 80% de la vitesse critique.

Des releveurs peuvent être également installés sur les parois du broyeur pour permettre de faire chuter les boulets d'une hauteur plus importante. Shoji [114] a montré lors du broyage de quartz que les releveurs ont un effet important sur la consommation énergétique. En effet, s'il n'y a pas de releveurs ou qu'ils sont trop petits, une partie non négligeable de l'énergie est dissipée dans le frottement des boulets contre la paroi.

Le taux de remplissage des boulets est habituellement compris entre 20 et 60% du volume de la cuve [115]. Celui en produit est souvent exprimé en fraction du volume interstitiel des boulets (volume de vide entre les boulets) occupé. Il est le plus souvent considéré qu'un taux de remplissage optimal est compris entre 0.6 et 1.1 du volume interstitiel des boulets [114], mais, selon le matériau ce taux peut varier. Pour le broyage de pierre ponce, un taux de remplissage de 0.4 a par exemple été préconisé par Deniz *et al.* [116].

Au fur et à mesure que la taille du produit diminue, il est plus efficace d'utiliser des boulets de diamètres inférieurs [117]. Les broyeurs industriels peuvent alors être divisés en chambres successives contenant des boulets de tailles différentes.

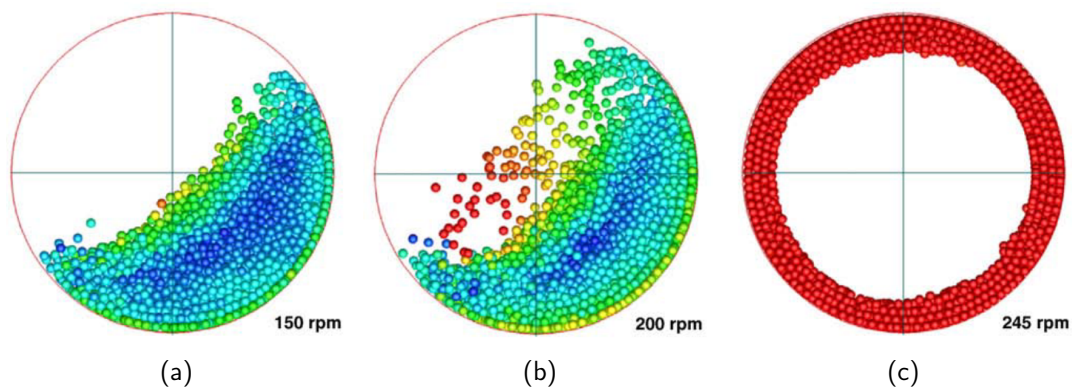


FIGURE 1.34. – Simulations numériques des différents régimes du broyeur à boulets [118] : a) régime en cascade, b) régime en cataracte et c) régime en centrifugation.

Broyeur à billes agitées

Les broyeurs à billes agitées sont des broyeurs équipés d'une chambre cylindrique, en position horizontale ou verticale, dans laquelle un arbre agitateur met en mouvement des billes. La taille de ces billes est relativement réduite en comparaison des autres broyeurs utilisant des media broyants. L'agitateur lui est un rotor sur lequel est monté des outils aux formes variables : bras, disque, hélice, etc..

Habituellement utilisé en voie humide, ce type de broyeur a également été développé pour le broyage en voie sèche.

Ces broyeurs sont censés être plus efficaces que les broyeurs à boulets car ils ont un taux de remplissage en media broyant plus élevé avec des billes de petites tailles. De plus, l'accélération

subie par les billes peut-être très élevée grâce à la rotation de l'arbre. Ainsi, les énergies volumiques mises en jeu sont plus importantes dans ce type de broyeur.

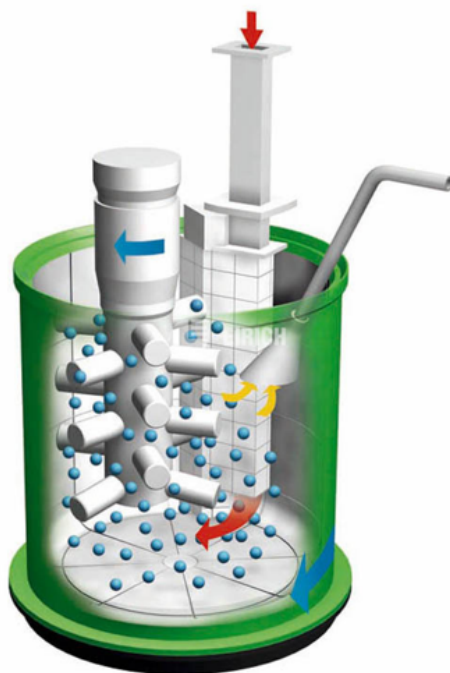


FIGURE 1.35. – Schéma du broyeur attriteur Maxxmill de Eirich

1.4.4. Conclusion et choix de broyeur

Le choix d'un broyeur repose sur de nombreux facteurs : propriétés du matériau à broyer, mode d'applications des contraintes, débit massique voulu, taille voulue, coût de revient, insertion dans une chaîne de procédé, etc. . . Dans la suite de cette thèse, le choix des broyeurs utilisés a principalement reposé sur trois paramètres :

- La capacité : pour pouvoir multiplier facilement les essais, le broyeur ne doit pas nécessiter une trop grande quantité de matière première. Pour ces raisons, les broyeurs devront rester à échelle laboratoire ce qui implique un fonctionnement en *batch* (le produit reste dans la chambre de broyage du début à la fin du broyage).
- L'adéquation avec les matières premières à broyer : le broyeur doit être capable de broyer efficacement des matériaux lignocellulosiques et des minéraux sans générer d'usure prématurée du broyeur. Pour ces raisons, les broyeurs à impacts avec rotor ont été éliminés. En effet, un des minéraux étudiés possède une trop grande abrasivité pour ce type de broyeur.
- Le mode d'application des contraintes : les broyeurs choisis devront pouvoir générer des sollicitations mécaniques différentes afin d'étudier l'effet de la contrainte sur le broyage.

Sur la base de ces critères, trois broyeurs permettant à la fois le broyage de minéraux et de végétaux ont été sélectionnés

- Broyeur vibrant MM400 : ce broyeur vibrant de faible capacité (50 mL) nous a permis d'étudier spécifiquement l'effet de l'impact sur le broyage.
- Broyeur à boulets Faure : ce broyeur est un tourne-jarre de 2 L permettant l'étude de sollicitations mixtes (frottement, impact et compression).

- Broyeur à billes agitées Femag : ce prototype de broyeur à billes agitées de 3 L que nous avons développé au cours de cette thèse nous a permis d'étudier l'effet d'un media broyant constitué de petites billes permettant de cisailer et de frotter le produit. Les vitesses employées devaient être plus importantes que dans un broyeur à boulets mais l'intensité des impacts devrait être moins importante.

Ces broyeurs seront présentés avec plus de détails dans le chapitre 5

Conclusion

Dans ce chapitre, quelques éléments de contexte ont été présentés ; souvent superficiellement car un exposé plus exhaustif nous aurait conduit trop loin. Il s'agissait de mieux situer le domaine d'application de cette thèse : quelques notions sur la mesure, les solutions technologiques disponibles, mais aussi les modèles théoriques qui nous aideront à mieux comprendre et interpréter les résultats des chapitres suivants.

2. Modélisation numérique de la fragmentation à l'échelle du grain

Sommaire

Introduction	52
2.1. Méthode Périodynamique	52
2.1.1. Principe de la méthode	53
2.1.2. Périodynamique bond-based	54
2.1.3. Discrétisation	55
2.2. Compression quasi-statique d'une particule	57
2.2.1. Description de l'essai	57
2.2.2. Cas d'une particule sans défaut	58
2.2.3. Rupture d'une particule en présence de défauts	63
2.2.4. Identification des fragments	68
2.2.5. Effet du seuillage sur le nombre de fragments	70
2.3. Effet de la taille des particules sur la fragmentation	72
2.3.1. Paramètres de l'étude paramétrique	72
2.3.2. Fracturation des plus petites particules	73
2.3.3. Distribution de tailles de fragments	75
2.3.4. Longueurs de fissures	76
2.3.5. Probabilité de survie d'une particule	76
2.3.6. Contrainte à la rupture	79
Conclusion	80

Introduction

L'initiation de la rupture résulte de phénomènes locaux à l'échelle du grain. Celle-ci dépend des champs de contrainte ainsi que de la microstructure du matériau constitutif des particules. Or, la caractérisation expérimentale de la mécanique à cette échelle présente plusieurs difficultés, notamment concernant :

- La préparation d'un grand nombre d'échantillons de microstructures similaires dans des conditions contrôlées
- L'accès aux champs de contraintes locaux
- La distribution de taille des fragments lors des études paramétriques de grande ampleur.

Une solution consiste à avoir recours à la simulation numérique. D'une part, celle-ci permet de contrôler la microstructure et les conditions de sollicitation. D'autre part, toute l'information mécanique nécessaire (champs de contrainte, endommagement, etc...) est facilement accessible.

La méthode numérique choisie, basée sur une approche appelée Périodynamique, est présentée. Après avoir rapidement explicité l'implémentation de la méthode et la discrétisation du domaine, on présente les conditions d'un essai de compression diamétrale d'une particule.

La transmission des contraintes joue un rôle important dans l'initiation de la rupture. Elle est d'abord étudiée pour une particule parfaite, puis pour des particules avec défauts. La résolution du maillage peut influencer les propriétés élastiques et le comportement à la rupture. L'étude de particules contenant ou non des défauts, maillées à différentes résolutions, a permis d'évaluer ces effets. Il est clair également que des défauts peuvent avoir un rôle plus ou moins critique suivant qu'ils sont placés ou non dans une zone à forte concentration de contrainte. Pour préciser ce rôle, on s'intéressera à l'effet sur la contrainte à la rupture de la position d'un défaut isolé au sein de la particule.

Une méthodologie d'analyse d'image est ensuite proposée pour déterminer la position et la taille des fragments après rupture et identifier les fissures qui participent à la génération de fragments. Cette méthode permet d'établir un lien entre les propriétés du matériau, la sollicitation mécanique et la fragmentation à l'échelle d'un grain.

Enfin, une étude paramétrique du rôle d'une population de défaut est présentée. On étudie la probabilité de survie de particules ayant des tailles variant sur une décade. Le chapitre se termine par une caractérisation des effets d'échelles pour une distribution de défauts particulière.

2.1. Méthode Périodynamique

La périodynamique, introduite par Silling [119], est une approche alternative de la Mécanique des Milieux Continus (MMC). Celle-ci s'appuie sur des équations intégro-différentielles, contrairement aux approches classiques, basées sur des équations aux dérivées partielles. En effet dans la MMC, les fissures et les interfaces apparaissent comme des singularités au niveau desquelles les dérivées partielles ne sont pas définies. Au contraire, dans la méthode périodynamique, on considère des équations intégrales pour lesquelles les singularités ne posent pas de problème particulier. Par exemple, dans ce cadre il n'est pas nécessaire d'introduire une formulation de la propagation de rupture basée sur un facteur d'intensité de contrainte. Bien qu'encore peu utilisée et développée dans la littérature, cette méthode a permis de modéliser avec succès le comportement et la rupture de matériaux continus ou hétérogènes (ciment [120], nanofils de nickels [121], bois [122]...).

2.1.1. Principe de la méthode

La méthode Périodynamique a un caractère non-local, au sens où, comme son nom le suggère, on intègre les "forces" ou interactions "autour" (péri) d'un point matériel. Bien qu'a priori les interactions puissent avoir une portée quelconque, il est souvent suffisant de ne considérer qu'un domaine d'influence restreint appelé voisinage. Dans ce cas, seules les liaisons qui ont une portée inférieure à une distance h appelée horizon seront considérées (figure 2.1).

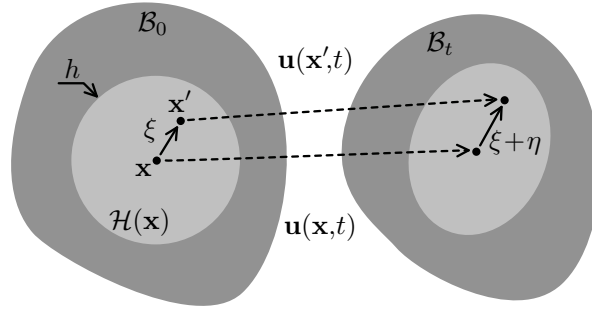


FIGURE 2.1. – Schéma du domaine de référence (à gauche) B_0 et déformé (à droite) B_t d'une liaison du point x et son voisinage d'horizon $H(x)$. Sont également représentés le déplacement $\mathbf{u}$ et le déplacement relatif η .

De façon générale, si l'on considère un domaine B_0 défini à $t = 0$ dans $\mathbb{R}^D$ avec D la dimension de l'espace alors l'équation de mouvement de tout point $x \in B_0$ soumis à des forces extérieures $\mathbf{b}(x, t)$ et soumis aux forces $\mathbf{f}$ des autres noeuds x' , peut s'écrire :

$$\rho(x)\ddot{\mathbf{u}}(x, t) = \int_{H(x)} \mathbf{f}(\mathbf{u}(x', t) - \mathbf{u}(x, t), x' - x, x) dV_{x'} + \mathbf{b}(x, t) \quad (2.1)$$

avec ρ et $\mathbf{u}$ respectivement la densité et le champ de déplacement. La dimension de $\mathbf{f}$ est une force par unité de surface au carré en 2D et une force par unité de volume au carré en 3D. La position relative entre les deux points x et x' notée $\xi = x' - x$. $H(x)$ représente l'ensemble des liaisons reliant le point x aux points situés à une distance inférieure à l'horizon : $H(x) = \{\xi \in \mathbb{R}^D | x + \xi \in B_0 \wedge \|\xi\| < h\}$.

Il existe différents schémas de calcul des interactions en périodynamique. On peut les classer en 3 schémas principaux en fonction du traitement fait des liaisons entre points matériels :

- La périodynamique *non-ordinary state-based* est l'implémentation la plus générale. Dans cette méthode on considère que la forces exercée par le point x sur x' et celle exercée par le point x' sur x peuvent avoir des directions et des intensités différentes. Il possible d'implémenter dans ce cadre des lois de comportement très générales.
- Dans les modèles *ordinary state-based*, les deux forces sont de même direction et de sens opposés mais pas nécessairement de même intensité.
- Dans la méthode *bond-based*, les deux forces sont de même direction, de sens opposés et de même intensité. La conséquence de cette simplification est que le coefficient de Poisson est fixé à une valeur constante déterminable théoriquement.

Dans la suite de cette thèse, nous avons choisi de se limiter à cette dernière méthode qui a l'avantage de permettre une implémentation très efficace. Dans les études qui suivront, on supposera que les défauts jouent un rôle prépondérant sur le comportement et on ne traitera pas ici de l'influence du coefficient de Poisson.

2.1.2. Périodynamique bond-based

L'hypothèse de Périodynamique *bond-based* permet d'écrire : $\mathbf{f}(\mathbf{u}(\mathbf{x}', t) - \mathbf{u}(\mathbf{x}, t), \mathbf{x}' - \mathbf{x}, \mathbf{x}) = -\mathbf{f}(\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) - \mathbf{u}(\mathbf{x}', t), \mathbf{x} - \mathbf{x}', \mathbf{x}')$. L'équation 2.1 donne :

$$\rho(\mathbf{x})\ddot{\mathbf{u}}(\mathbf{x}, t) = \int_{\mathcal{H}(\mathbf{x})} \mathbf{f}(\xi, \eta, \mathbf{x}) dV_{\mathbf{x}'} + \mathbf{b}(\mathbf{x}, t) \quad (2.2)$$

avec $\eta = \mathbf{u}(\mathbf{x}', t) - \mathbf{u}(\mathbf{x}, t)$ le déplacement relatif entre les deux points. Ainsi on peut définir la force radiale entre les deux points uniquement à partir de la configuration initiale et du déplacement relatif :

$$\mathbf{f}(\xi, \eta, \mathbf{x}) = f(\xi, \eta, \mathbf{x}) \frac{\xi + \eta}{\|\xi + \eta\|} \quad (2.3)$$

où $f(\xi, \eta, \mathbf{x})$ est un scalaire égal à l'intensité de la force. En remplaçant 2.3 dans 2.2 on obtient :

$$\rho(\mathbf{x})\ddot{\mathbf{u}}(\mathbf{x}, t) = \int_{\mathcal{H}(\mathbf{x})} f(\xi, \eta, \mathbf{x}) \frac{\xi + \eta}{\|\xi + \eta\|} dV_{\mathbf{x}'} + \mathbf{b}(\mathbf{x}, t) \quad (2.4)$$

Dans la suite de la thèse on a choisi d'utiliser un modèle harmonique pour calculer la force $f(\xi, \eta, \mathbf{x}) = s(\xi, \eta)c_{\lambda(\mathbf{x}), \lambda(\mathbf{x}+\xi)}$ avec s l'élongation du lien :

$$s(\xi, \eta) = \frac{\|\xi + \eta\| - \|\xi\|}{\|\xi\|} \quad (2.5)$$

et c le micromodule élastique. Le module d'élasticité est proportionnel à ce micromodule [123] :

$$E = c [\pi h^3 (1 - \nu)/6] \quad (2.6)$$

où ν est le coefficient de Poisson. Pour un matériau isotrope et élastique la valeur de ce coefficient est de 1/3 en 2D (1/4 en 3D).

On introduit la rupture directement au niveau des liens en considérant qu'ils ont un comportement élastique jusqu'à une valeur critique d'élongation s_0 . Quand cette valeur est atteinte, le lien est cassé et n'exerce plus aucune force (figure 2.2). L'énergie de fracture G peut être déduite [123]

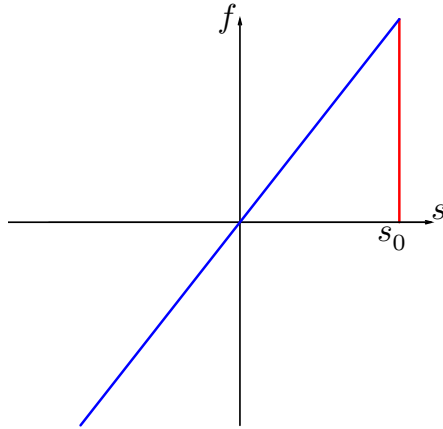


FIGURE 2.2. – Schéma de la force exercée par un lien en fonction de son élongation

en utilisant :

$$G = (9Ehs_0^2)/4\pi \quad (2.7)$$

Par la suite, on fixera comme constantes matériaux G , E et ρ .

2.1.3. Discrétisation

Pour implémenter la méthode Périodynamique *Bond-Based*, on considère un domaine discrétisé à l'aide d'une grille rectiligne $N_x \times N_y$ et une résolution spatiale δx . La figure 2.3 montre la connectivité des liens associés à un point matériel pour une valeur d'horizon $h = 3\delta x$. Un avantage de cette description est de permettre une prise en compte facile des hétérogénéités, telles que pores, inclusions, gradient de propriétés et interfaces, à travers une modification des propriétés des liens.

Si on considère un matériau multiphasique comportant N_p phases (porosité comprise, éventuellement), la phase d'un point matériel $\mathbf{x}_i$ est définie par un index $\lambda(\mathbf{x}_i) \in 1, \dots, N_p$. Chaque noeud i possède une masse $m_i = (\delta x)^2 \rho(\mathbf{x}_i)$ et appartient à une phase λ possédant ses caractéristiques mécaniques.

L'équation du mouvement discrétisée s'écrit :

$$m_i \ddot{\mathbf{u}}_i(t) = \sum_{\mathbf{x}_j \in \mathcal{H}(\mathbf{x}_i)} k_{\lambda_i \lambda_j} s(\xi_{ij}, \eta_{ij}) \frac{\xi_{ij} + \eta_{ij}}{\|\xi_{ij} + \eta_{ij}\|} + \mathbf{b}_i(t) \quad (2.8)$$

avec $\ddot{\mathbf{u}}_i(t) = \ddot{\mathbf{u}}(\mathbf{x}_i, t)$, $\xi_{ij} = \mathbf{x}_j - \mathbf{x}_i$, $\eta_{ij} = \mathbf{u}_j - \mathbf{u}_i$, $\mathbf{b}_i(t) = (\delta x)^2 \mathbf{b}(\mathbf{x}_i, t)$, $k = c(\delta x)^4$, $\lambda_i = \lambda(\mathbf{x}_i)$ et $\lambda_j = \lambda(\mathbf{x}_j)$.

Cette équation est résolue au niveau de chaque noeud en utilisant un algorithme d'intégration explicite de la dynamique de type Velocity Verlet [124]. Une conséquence directe est la présence d'ondes élastiques dans le système.

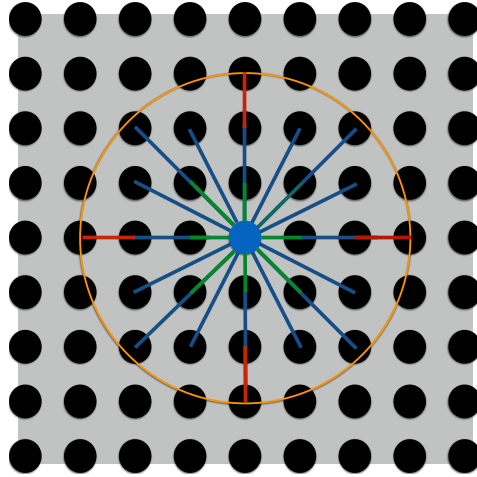


FIGURE 2.3. – Schéma des liaisons d'un noeud (en bleu) à l'intérieur de son voisinage d'horizon $h = 3$ (cercle orange).

Le tenseur des contraintes est calculé à partir des forces agissant sur chaque lien à partir de l'équation suivante :

$$\sigma_i = \frac{1}{2V_i} \sum_j F_{ij} \otimes r_{ij} \quad (2.9)$$

avec V_i le volume attribué au noeud i , F_{ij} la force reliant le noeud i au noeud j et r_{ij} la longueur du lien.

En Périodynamique, la fissuration est considérée à l'échelle du noeud comme résultant de l'endommagement de l'ensemble des liens qui y sont connectés. Le niveau d'endommagement est calculé comme le rapport entre le nombre de liaisons cassées et le nombre de liaisons initiales.

La figure 2.4a montre un exemple de fissure représentée à partir du champ d'endommagement. Le niveau de couleur varie du bleu (pas d'endommagement) au rouge (fortement endommagé). La figure 2.4b représente l'endommagement dans une section droite perpendiculaire à la fissure.

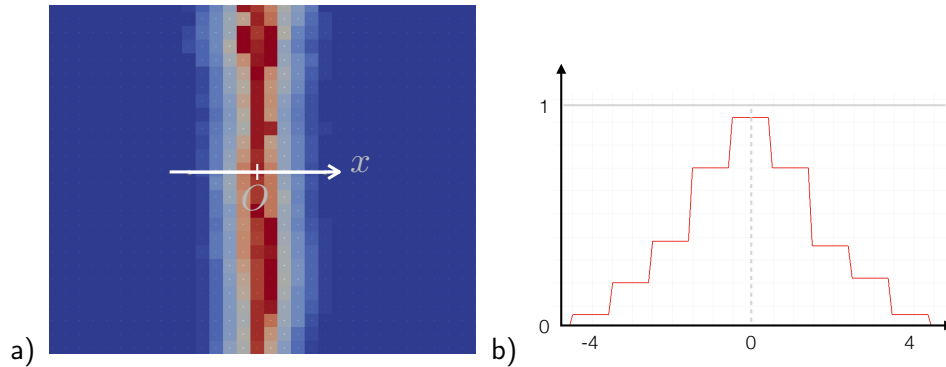


FIGURE 2.4. – a) Exemple de fissure matérialisée par le niveau d'endommagement; b) niveau d'endommagement sur la section droite représentée à gauche.

Un intérêt de la périodynamique par rapport à d'autres méthodes "sur réseau" (*Fuse Models* [125], *Lattice Element Method (LEM)* [126]...) est que la fissuration n'est que très peu influencée par les anisotropies locales du maillage. La figure 2.5 montre, pour des maillages grossiers, deux exemples de rupture dans des matériaux granulaires cimentés. Dans le cas du modèle LEM, on voit clairement l'influence du maillage. Il est possible de limiter ces effets en utilisant un maillage désordonné mais le calcul y perd en efficacité.

Enfin, un dernier avantage de la périodynamique est son "bon comportement" à la parallélisation qui est dû en grande partie à l'utilisation d'un maillage régulier et à la connectivité fixe des liaisons. Le code de calcul utilisé dans la thèse a été spécifiquement réalisé pour être très rapide, permettre les études paramétriques de grande ampleur et les fortes résolutions de maillage. Il a été implémenté par Xavier Frank en Fortran90 et parallélisé par échanges de messages en utilisant la norme *Message-Passing Interface (MPI)*, à partir d'une décomposition de domaine. Le code réalisé a été utilisé pour une étude complète de scalabilité en fonction de la résolution et de l'horizon. Cette étude a confirmé les très bonnes propriétés de la périodynamique pour l'implémentation parallèle.

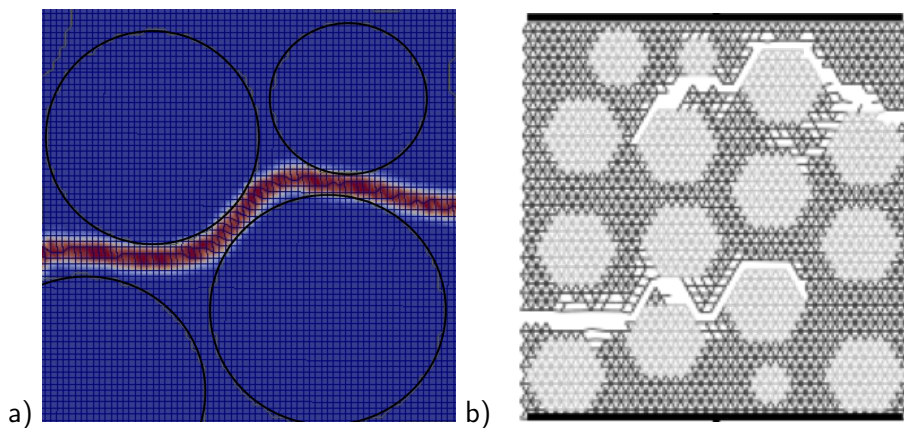


FIGURE 2.5. – Exemples de profil de fissure obtenue par périodynamique a) et par LEM [126] b).

2.2. Compression quasi-statique d'une particule

Dans cette section on s'intéresse, au comportement quasi-statique d'une particule bidimensionnelle de la forme d'un disque, soumise à une compression diamétrale (souvent appelé essai brésilien dans la littérature).

2.2.1. Description de l'essai

On considère une particule bidimensionnelle de diamètre D soumise à une compression diamétrale quasi-statique entre deux plateaux (figure 2.6). La particule est discrétisée sur un maillage carré régulier rectilinéaire comportant $N_x \times N_x$ noeuds (N_x nombre de noeuds sur une direction) avec un horizon $h/\delta x = 3$ (figure 2.1) qui représente un bon compromis entre précision et durée du calcul [127, 128].

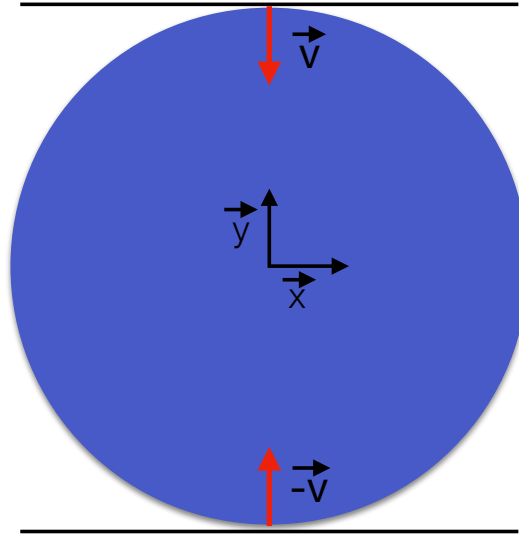


FIGURE 2.6. – Schéma d'une particule soumise à une compression diamétrale entre deux plateaux.

Le contact frottant est modélisé en ajoutant des forces normales et tangentielles au niveau des noeuds à l'interface entre la particule et les plateaux. La force normale, appliquée à tout point matériel ayant pénétré à l'intérieur d'un plateau, est calculée en supposant un comportement linéaire élastique (force proportionnelle à l'overlap). Le frottement est modélisé par une loi de Coulomb régularisée de coefficient de frottement 0.5. Celui-ci sera conservé constant dans toutes les expériences numériques de ce chapitre.

La vitesse de déformation est un compromis entre le temps de la simulation et l'amplitude des ondes élastiques transmises. Une force visqueuse $\mathbf{f}_i^v(t)$ est appliquée au niveau de chacun des noeuds de manière à dissiper partiellement les ondes élastiques avec $\mathbf{f}_i^v(t) = \mu_g \dot{\mathbf{u}}_i(t)$ et μ_g la viscosité globale utilisée. Comme les liens peuvent avoir différentes rigidités, on a choisi comme viscosité $\mu_g = \alpha \min\{2\sqrt{m_i k}\}$ qui correspond à une fraction α de la valeur critique obtenue pour les liens les moins rigides. On peut voir sur la figure 2.7 l'évolution de la force sur le plateau supérieur normalisée par la force pour rompre une liaison $f_0 = s_0 k$ (voir partie 2.1.3) après que celui-ci ait été stoppé. Le temps est normalisé par la durée théorique $t_1 = D/c_\ell$ que met une onde élastique

longitudinale pour parcourir la hauteur de la particule avec c_ℓ la célérité de l'onde :

$$c_\ell = \sqrt{\frac{E}{\rho(1 - \nu^2)}} \quad (2.10)$$

où ν est le coefficient de Poisson et ρ la densité de la particule. Les oscillations de la force observables sur cette figure sont la conséquence de la propagation d'ondes élastiques dans la particule. On observe sur la figure l'effet de la dissipation de ces ondes en fonction du facteur α . Bien que l'on puisse faire des simulations sans utiliser de viscosité globale, une légère valeur de α permet d'obtenir des fragments stables en fin de simulation. Dans le cas contraire, sans dissipation d'énergie, les oscillations finissent par générer des fissures bien après la rupture principale. Dans la suite, on utilisera toujours $\alpha = 0.1$.

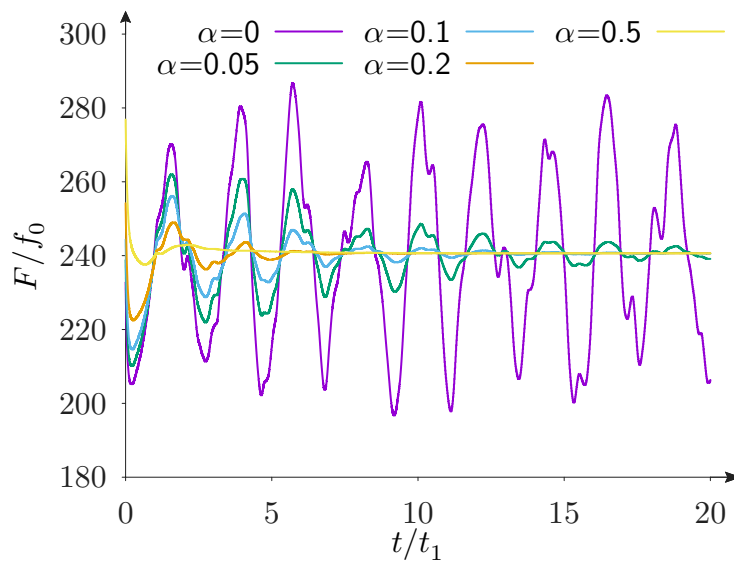


FIGURE 2.7. – Force sur le plateau supérieur en fonction du temps pour différentes viscosités après l'arrêt de celui-ci.

Après rupture, la simulation est poursuivie pour une durée limitée. Cette durée est choisie de manière à éviter que les fragments nouvellement créés ne se brisent à leur tour. Sur la figure 2.8 on peut voir un exemple de l'évolution de la force et de l'endommagement au cours de la simulation. Sur cet exemple, on a laissé le temps aux fissures de se propager complètement. Pour cette durée de simulation, fixée à 2.5 s, la vitesse d'endommagement totale de la particule en fin de simulation reste inférieure à 0.2% par unité de temps. Ces paramètres seront utilisés dans l'ensemble des simulations de ce chapitre.

2.2.2. Cas d'une particule sans défaut

Dans cette section, on s'intéresse au comportement d'une particule "sans défaut" soumise à une compression diamétrale. On précise dans ce cas les conditions de la détermination des propriétés élastiques ainsi que l'effet de la discrétisation sur les seuils de rupture.

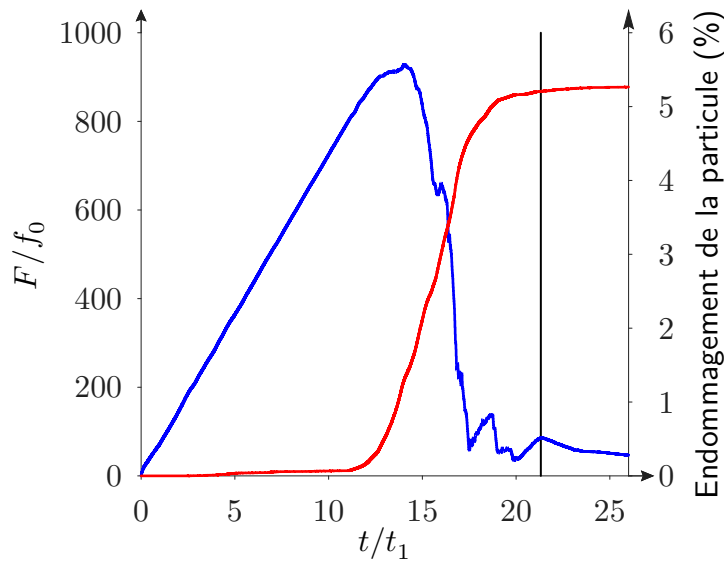


FIGURE 2.8. – Force sur plateau supérieur normalisée par la force de rupture d'une liaison (en bleu) et endommagement de la particule (en rouge) en fonction du temps. Le trait vertical marque l'arrêt des plateaux.

Distribution des contraintes dans une particule

On s'intéresse ici à la distribution des contraintes (avant rupture) dans une particule soumise à une compression entre les deux plateaux. La figure 2.9 montre les composantes σ_{XX} et σ_{YY} du champ de contraintes. Le gradient de couleur va du bleu, pour les valeurs en compression (comptées négativement) au rouge pour les valeurs en tension (positives). On note les fortes concentrations en compression au niveau des contacts avec les plateaux ainsi que la forte intensité des contraintes en traction au centre de la particule. Les maximums et minimums de ces concentrations sont obtenues au niveau de l'axe de symétrie vertical.

La figure 2.10 montre l'évolution de σ_{XX} et σ_{YY} le long de cet axe vertical en fonction de la distance au centre y/D ($y = 0$ et $x = 0$ au centre du disque, cf figure 2.6), ainsi que la comparaison avec les modèles théoriques présentés au chapitre 1.2.3. Les contraintes sont normalisées par K^∞ qui correspond à la rigidité (homogène à un module d'élasticité) que l'on obtiendrait pour un disque maillé avec une résolution infinie (voir précisions section 2.2.2).

σ_{YY} reste toujours négative c'est-à-dire en compression. L'intensité σ_{YY} est maximale au niveau des deux plateaux (disques bleus) et minimale au centre. La contrainte horizontale σ_{XX} peut prendre des valeurs positives et négatives et atteint son maximum en traction proche du centre de la particule, en deux points sur l'axe y pour $y/D=0.02$ et $y/D=-0.02$. On remarque que la contrainte décroît rapidement en s'éloignant du centre et que cette décroissance s'infléchit pour des hauteurs y/D égales à 0.4 et -0.4.

Cette évolution des contraintes sur l'axe de chargement a fait l'objet de nombreuses études théoriques. Les courbes pleines de la figure 2.10 représentent le résultat des deux modèles décrits au chapitre 1.2.3 pour un contact ponctuel [40] et pour un chargement réparti au niveau de la zone de contact [42]. Dans ce dernier cas, l'adéquation avec le calcul en Périodynamique est globalement très bonne sauf au voisinage direct de la zone de contact. Ceci peut être attribué en grande partie au caractère non local de la Périodynamique qui a pour conséquence une légère baisse de la rigidité au voisinage des bords du domaine maillé. En effet, une partie du voisinage des points matériels

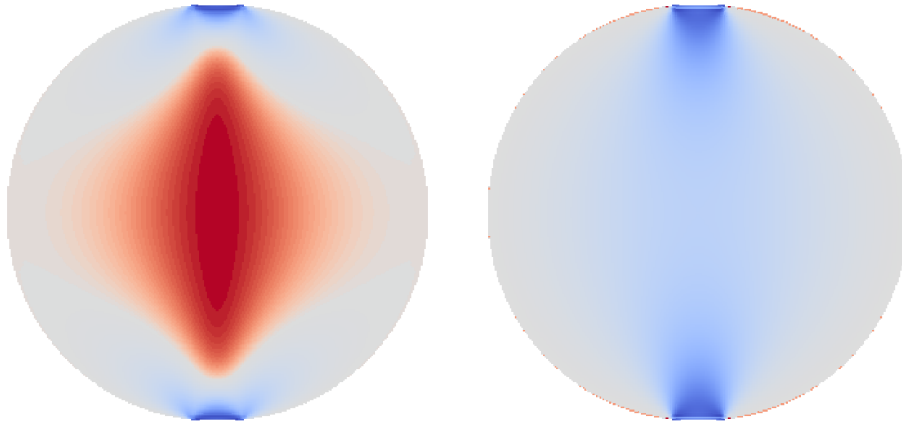


FIGURE 2.9. – Composantes σ_{XX} (à gauche) et σ_{YY} (à droite) du champ de contrainte dans une particule soumise à une compression diamétrale. L'échelle de couleur va du bleu, contrainte maximale en compression, jusqu'au rouge pour la contrainte maximale en tension.

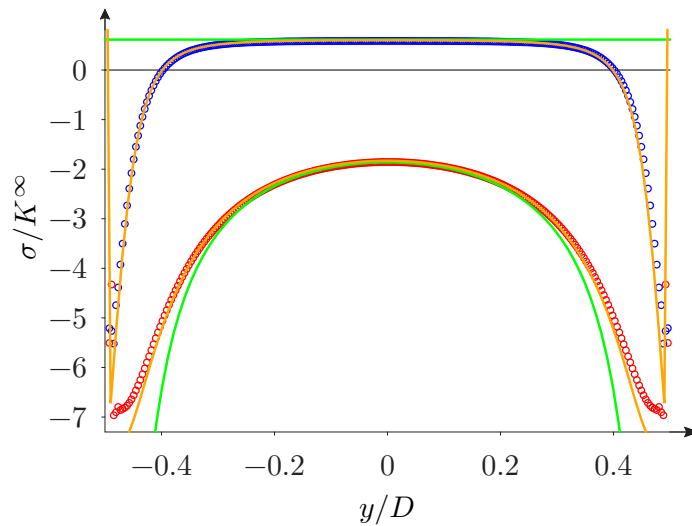


FIGURE 2.10. – Évolution de la contrainte σ_{XX} et σ_{YY} normalisées par K^∞ en fonction de la distance au centre du disque sur l'axe de chargement. En trait plein, les contraintes théoriques.

proches du bord se situent en-dehors de la particule et ne fournit pas de liaisons.

Rupture d'une particule

Dans cette section, on s'intéresse à la rupture d'une particule et à l'influence du maillage sur cette rupture. La figure 2.11a) montre l'initiation des fissures. La rupture ne s'initie pas pour la valeur maximale en traction de σ_{XX} mais à une position située à environ $y/D = \pm 0.375$ (0.125 par rapport au contact avec les plateaux). Ce comportement semble indiquer que sans défauts,

la particule ne se rompt pas en traction mais en cisaillement. Ceci est souvent observé dans les expériences où l'initiation de la fissure peut se faire en cisaillement [129]. Néanmoins la contrainte à la rupture globale reste en général proche de celle en traction pure. Enfin, on notera qu'en utilisant une contrainte équivalente de Tresca, les valeurs maximales sont situées à ± 0.43 (0.07 du bord) et pas au centre de la particule.

La figure 2.11b montre le faciès de rupture obtenu après déchargement complet de la force appliquée par les plateaux. La fissure est matérialisée par des niveaux de couleurs qui correspondent au champ d'endommagement déterminé à partir du nombre de liaisons cassées au niveau de chaque noeud. La zone endommagée est symétrique, ce qui est cohérent avec le fait qu'aucun défaut n'est présent initialement dans la particule. On remarque également que cette zone est très étendue. Ceci est dû au fait, qu'avant rupture la zone de concentration de contrainte est large et peu localisée. La particule peut alors stocker une énergie élastique importante qui est libérée brutalement lors de la rupture, générant une propagation dynamique et plusieurs branches de fissures.

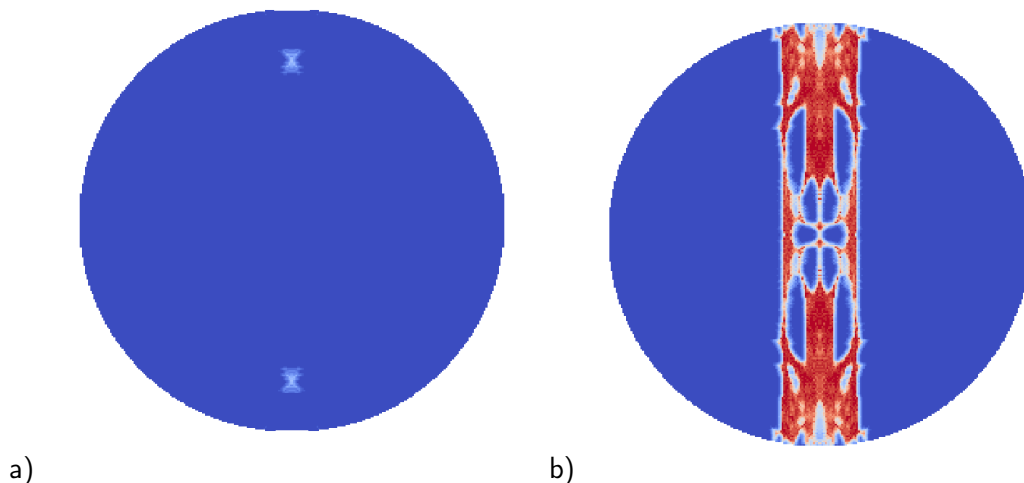


FIGURE 2.11. – Champs d'endommagement au moment de l'initiation de la rupture a) et après propagation des fissures b). L'échelle de couleur va du bleu (endommagement nul) au rouge (endommagement maximum).

Convergence au maillage

La sensibilité à la discrétisation spatiale a été étudiée dans la littérature pour différentes méthodes numériques et types de maillages ordonnés ou désordonnés, par exemple, pour une mousse solide modélisée en Eléments Finis [130] ou pour des composites chargés en inclusions modélisés par LEM [73]. Il s'agit en général de représenter, sur un cas particulier, l'évolution des propriétés élastiques quand la taille de maille tend vers 0. Cette sensibilité au maillage dépend de plusieurs facteurs tels que :

- la convergence du problème numérique à la taille de maille,
- l'amélioration progressive de la représentation des conditions aux limites ou de la discrétisation des inclusions (effet d'escaliers pour des inclusions sphériques, par exemple).

Dans le cas de la Périodynamique, une étude a été réalisée [131] pour des inclusions. Elle montre une évolution linéaire du module d'élasticité en fonction de la densité du maillage $1/N_x$. Ce résultat est important car il montre qu'à partir de deux valeurs, on peut extrapoler une valeur théorique

du module pour un maillage infiniment résolu. On notera que pour une analyse complète de la convergence au maillage en Périodynamique, il est nécessaire de considérer également la taille de l'horizon.

Dans cette section, on cherche à évaluer l'effet de la discrétisation sur le comportement élastique au contact. Pour un disque de diamètre $D = 1$, huit résolutions ont été testées (pour $h = 3\delta x$), allant de $N_x = 256$ à $N_x = 704$ noeuds dans la longueur. Deux exemples de discrétisation pour ces valeurs extrêmes sont représentés figure 2.12. On constate l'effet d'escalier et la présence d'une zone "plate" en haut de la particule et au niveau de laquelle aura lieu le contact avec le plateau supérieur.

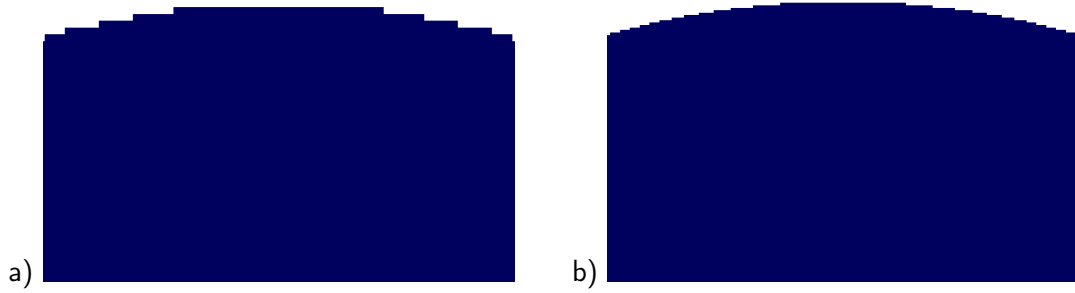


FIGURE 2.12. – Agrandissement de la partie haute de la particule représentée pour deux discrétisations a) $N_x = 256$ et b) $N_x = 704$.

Pour chaque résolution, une compression diamétrale jusqu'à rupture est réalisée. La figure 2.13 montre un exemple de courbe contrainte-déformation pour la valeur de résolution la plus grande $N_x = 704$. La contrainte σ est la contrainte $\sigma_{XX} = 2F/\pi D$ (voir partie 1.2.3) maximale au centre du disque. La déformation ϵ est définie à partir du déplacement imposé au niveau des plateaux (en notant ℓ la distance entre les plateaux et ℓ_0 la valeur initiale $\epsilon = \frac{\ell - \ell_0}{\ell_0}$). On remarque que la contrainte est linéaire par morceaux avec un changement de pente vers $\epsilon = 0.6\%$. Ceci est en contradiction avec la loi de Hertz qui montre que cette évolution devrait être linéaire pour un contact cylindre-plan. Cet artéfact est lié à la discrétisation au niveau des contacts et n'est présent que pour les résolutions importantes pour lesquelles plusieurs rangées de points matériels peuvent être en contact avec le plateau. Bien que de nature différente, cet effet peut être rapproché de l'effet des rugosités qu'il faut résorber avant que le contact soit bien établi lors des expériences de compression quasi-statique [132]. Pour cette raison, le comportement élastique de la particule est évalué en considérant la pente la plus grande K^* .

La figure 2.14 montre l'évolution de K^* , normalisée par la valeur extrapolée K^∞ qui correspondrait à un maillage infiniment résolu, tracée en fonction de $1/N_x$. On remarque que K^* varie linéairement en fonction de $1/N_x$ montrant qu'il est possible d'obtenir un résultat indépendant du maillage en extrapolant la valeur à 0 pour quelques essais réalisés à différentes résolutions.

Effet de la discrétisation sur la rupture

Comme on a pu le voir au chapitre 1.2.1, la rupture dans les solides est largement tributaire de la présence de défauts. Dans l'exemple de la section 2.1.3, nous n'introduisons pas directement de défauts dans la particule qui est un système masse-ressort que l'on peut rapprocher d'un cristal moléculaire. Ceci n'est plus vrai si l'on considère la non-conformité du maillage avec la forme cylindrique du grain ainsi que le fait que la taille des mailles dépend de la résolution. Dans une étude utilisant la méthode LEM, portant sur le comportement mécanique d'agrégats cohésifs discrétisés

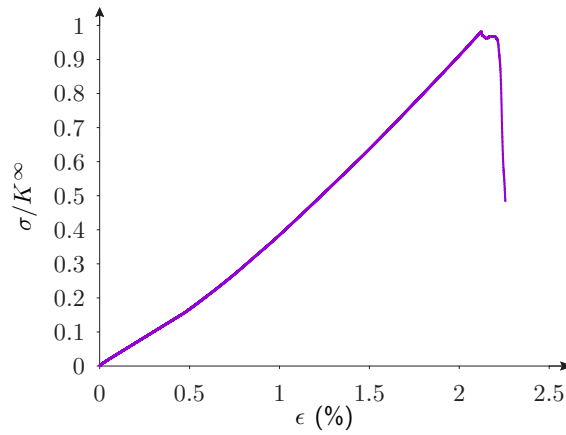


FIGURE 2.13. – Evolution de la contrainte maximale horizontale normalisée par K^∞ du matériau en fonction de la déformation de la particule pour $N_x = 704$.

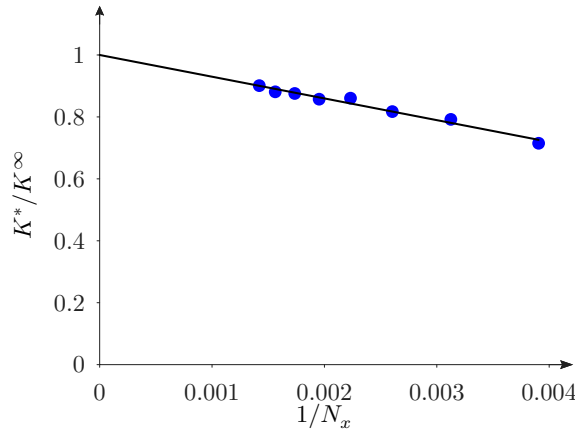


FIGURE 2.14. – Évolution de K^*/K^∞ de la particule en fonction de $1/N_x$.

sur mailles régulières, Topin *et al.* [126] considèrent la taille de maille dans le calcul de la ténacité. La taille de maille apparaît comme l'échelle du plus petit défaut dans le système.

Dans le même ordre d'idée, on s'intéresse à l'évolution de la contrainte à la rupture en fonction de $\sqrt{N_x}$ (figure 2.15). La contrainte à la rupture $\sigma_c = 2F_t/\pi D$ est ici définie comme la valeur maximale de σ_{XX} au centre de la particule avec F_t la force appliquée sur la particule au moment de la rupture. L'évolution observée est conforme à la théorie de Griffith [36] (chapitre 1.2.1) selon laquelle la contrainte à la rupture est proportionnelle à l'inverse de la racine de la longueur du défaut (voir equation 1.4). En effet, la taille d'une liaison est proportionnelle à $1/N_x$ et donc l'inverse de la racine carrée de la longueur d'une liaison est proportionnelle à $\sqrt{N_x}$. Puisqu'ici E et G sont fixés, la contrainte à la rupture varie donc avec la résolution utilisée.

On notera également que pour $N_x = 2$ la valeur de la contrainte déterminée par l'interpolation est la même que la contrainte théorique $\sigma_{c0} = \sqrt{EG}/\sqrt{\pi D}$ pour briser un lien.

2.2.3. Rupture d'une particule en présence de défauts

Dans cette section, on s'intéresse à l'effet de défauts sur la rupture d'une particule. Après avoir présenté le modèle de défaut choisi, on explicite les cas d'une particule contenant un défaut unique

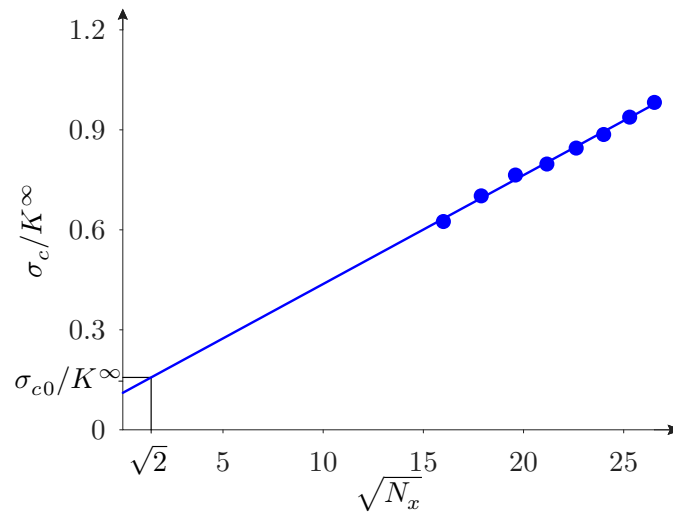


FIGURE 2.15. – Évolution de la contrainte à la rupture en tension normalisée par K^∞ en fonction de $\sqrt{N_x}$.

et une population de défaut.

Modèle de défaut

Différentes solutions numériques peuvent être mises en oeuvre pour introduire des défauts ou des interfaces dans un système sur réseau. Deux méthodes ont été testées dans cette thèse. La première consiste à modifier localement les seuils de rupture des liens. Bien que cette méthode utilisée dans la partie 3.2 permette d'ajouter un désordre local qui rende plus réaliste le comportement à la rupture, elle a l'inconvénient de ne pas générer d'hétérogénéités dans le champ de contraintes.

La deuxième méthode, utilisée dans ce chapitre, consiste à modifier les propriétés élastiques des liens qui traversent un défaut 1D prédéfini (figure 2.16).

Tout se passe comme si le défaut était un clivage dont la rigidité est plus faible que le matériau. De cette manière, il est aussi possible de moduler le niveau de rigidité d'un module égal à celui de la matrice à un module nul correspondant à une coupure franche. Dans la suite de la thèse, on utilisera des défauts dont la rigidité est égale à 20% de celle de la matrice. Comme on le verra ci-dessous, ces défauts ont pour effet de concentrer les contraintes en pointe de fissures. Cette concentration dépendra de la position, la taille et l'orientation de la fissure et aura une influence sur le seuil de rupture.

Exemple pour un défaut unique

La figure 2.17 montre l'endommagement créé par l'introduction d'un défaut sous la forme d'un segment vertical de $0.1D$ placé au centre du disque.

La figure 2.18 représente les champs de contraintes σ_{XX} et σ_{YY} ainsi que les concentrations de contraintes obtenus après une légère compression. La comparaison avec le cas sans défaut (figure 2.9) montre que la contrainte en tension en pointe de fissure est plus importante que lorsqu'il n'y avait pas de défaut.

La position du défaut a une influence importante sur le seuil de rupture de la particule. Une étude paramétrique a été réalisée dans le but d'illustrer cet effet. Une centaine d'essais de compres-

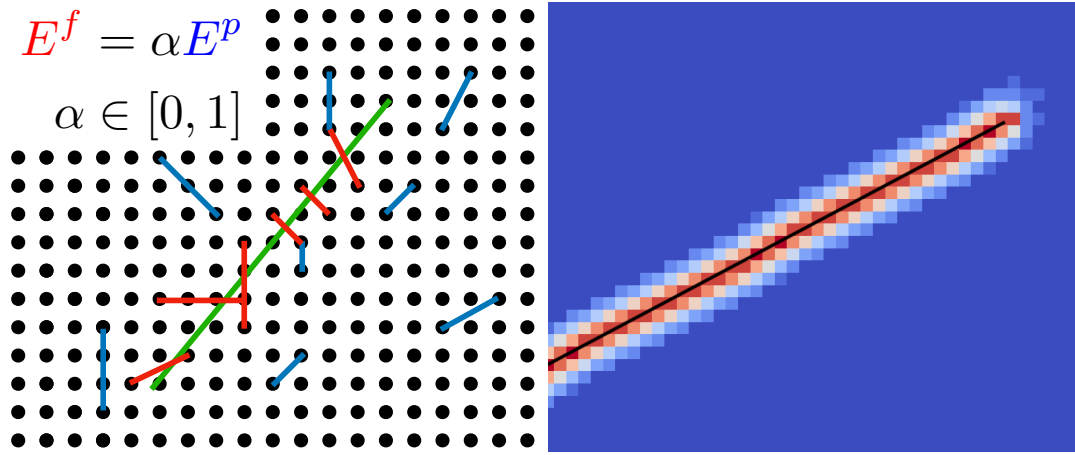


FIGURE 2.16. – Schéma de principe du fonctionnement d'un défaut. À gauche, une partie des liaisons affaiblies (en rouge) et laissées intactes (en bleu) par le défaut (en vert) sont représentées. À droite, nombre de liaisons sur chaque noeud modifiées par le défaut (en noir). L'échelle va du rouge (nombre maximum) au bleu (nombre minimum).

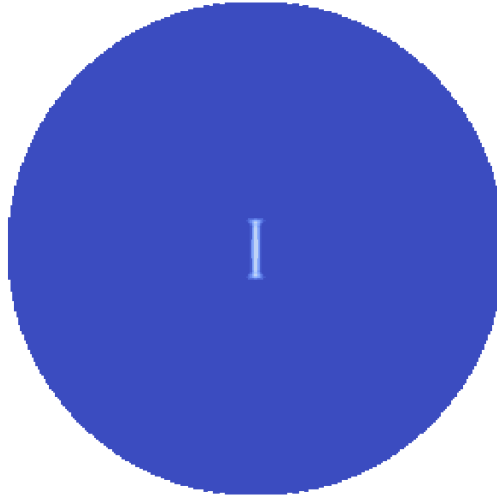


FIGURE 2.17. – Endommagement au niveau d'un défaut vertical introduit au centre d'un grain.

sion ont été réalisés pour différentes positions de la fissure. Dans chacun des cas, on a considéré la même fissure verticale avec, pour des raisons de symétrie, des fissures positionnées dans le quart supérieur droit de la particule.

La figure 2.19 représente, pour l'ensemble de ces essais, le niveau de la contrainte à la rupture σ_c normalisé par la contrainte à la rupture d'un disque sans défaut $\sigma_\emptyset$ (pour une résolution $N_x = 256$). La position des points donne les coordonnées du centre de la fissure. La couleur de ces points est rouge si la contrainte à la rupture est proche de celle sans défaut, et bleue si elle en est éloignée. En d'autres termes, ce diagramme donne le degré de fragilisation d'une particule en fonction de la position du défaut. Les cercles vides représentent l'emplacement de défauts qui ont produit une

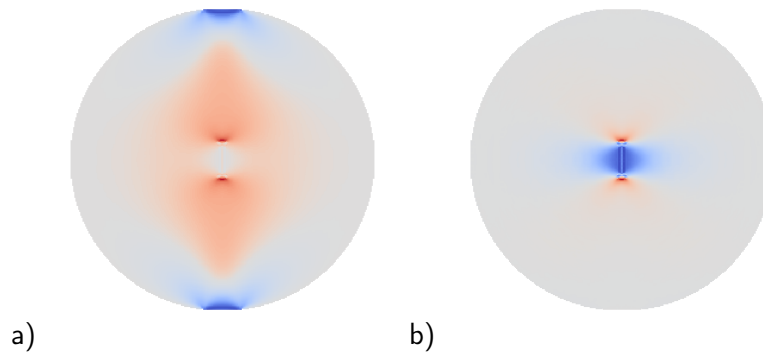


FIGURE 2.18. – Contrainte σ_{xx} a) et σ_{yy} b) au voisinage d'un clivage dans une particule soumise à une compression diamétrale. L'échelle de couleur va du bleu (contrainte maximale en compression) jusqu'au rouge (contrainte maximale en tension).

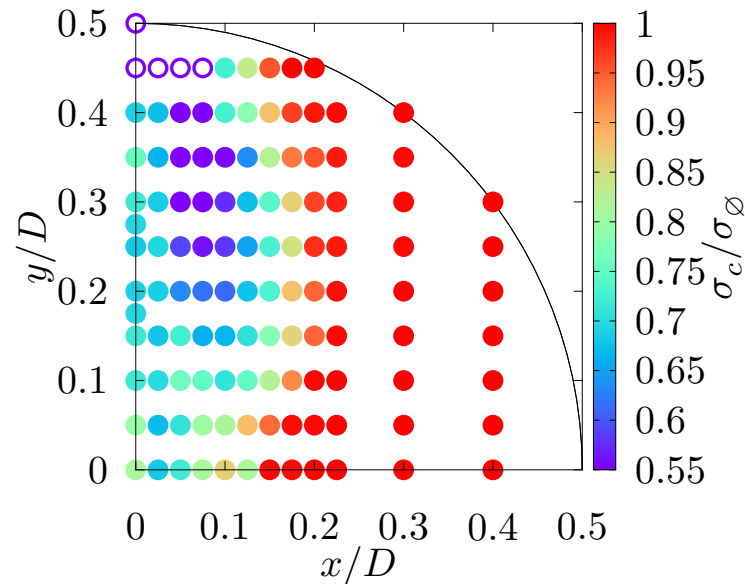


FIGURE 2.19. – Emplacement du centre d'un défaut (clivage vertical) par rapport au centre de la particule. Les couleurs représentent les contraintes à la rupture normalisées. Les cercles vides représentent des emplacements de défauts qui ont engendré un fort endommagement de la particule en surface sans créer une rupture complète de la particule.

rupture localisée proche de la particule sans engendrer de rupture totale. On remarque que le défaut a une influence maximale autour d'une zone située autour du point $(x/D = 0.075, y/D = 0.35)$. Au-delà d'une distance sur l'axe des x supérieure à $x/D = 0.2$, le défaut a une influence négligeable sur le seuil de rupture. Il est intéressant de remarquer que la zone critique n'est ni au centre de la particule ni sur l'axe de symétrie vertical.

La figure 2.20 représente l'évolution de la contrainte à la rupture normalisée déterminée au niveau de l'axe horizontal (figure 2.20a) et vertical (figure 2.20b). On remarque que l'effet de la position du défaut sur la fragilisation de la particule est complexe et non monotone en fonction de la distance au centre. Il est intéressant de noter également qu'il existe une zone importante pour laquelle la présence d'un défaut n'a pas de conséquence et que la position centrale n'est pas plus impactante.

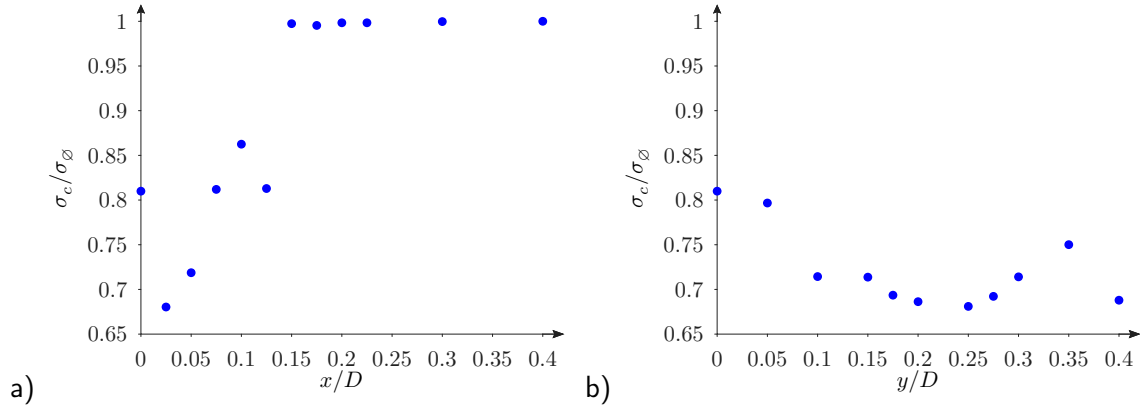


FIGURE 2.20. – Contrainte à la rupture normalisée en fonction de la position du défaut sur l'axe horizontal a) et vertical b).

Cas d'une population de défauts

On considère ici une population de défauts de densité moyenne $\bar{n}$ par unité de surface. Chaque défaut est inséré aléatoirement dans un domaine carré autour du grain (figure 2.21a). L'orientation est aléatoire et les longueurs ℓ suivent une distribution Gaussienne.

$$\ell \sim \mathcal{N}(\mu_\ell, \sigma_\ell) \quad (2.11)$$

La figure 2.21b montre la composante σ_{XX} du champ de contrainte pour la particule soumise à une légère compression. La population de défaut a entraîné des concentrations de contraintes réparties aléatoirement dans la particule. Contrairement à la particule parfaite, ces concentrations de contraintes ont pour conséquence une propagation de fissures plus localisée avec un endommagement plus faible au centre de la particule (figure 2.22).

La figure 2.23 donne trois exemples de courbes contrainte-déformation pour un cas sans défaut, avec un défaut et avec une population de défauts. On remarque que l'augmentation du nombre de défauts a pour conséquence majeure de réduire le seuil de rupture. Les pentes des trois courbes sont proches mais pas identiques, ce qui montre que les propriétés élastiques de la particule sont affectées par l'ajout des défauts. Comme on l'a vu à la section 2.2.2 ces propriétés élastiques sont sensibles au maillage. Pour préciser les effets de la discrétisation, les mêmes tests que précédemment ont été réalisés (section 2.2.2). Sur la figure 2.24 la rigidité K^* est tracée en fonction de N_x pour une particule sans et avec la population de défauts introduite précédemment. Comme dans le cas sans défaut, la convergence au maillage avec défauts est linéaire. En extrapolant la valeur pour un maillage infiniment résolu on obtient $K^{\infty'}/K^\infty \simeq 0.8$.

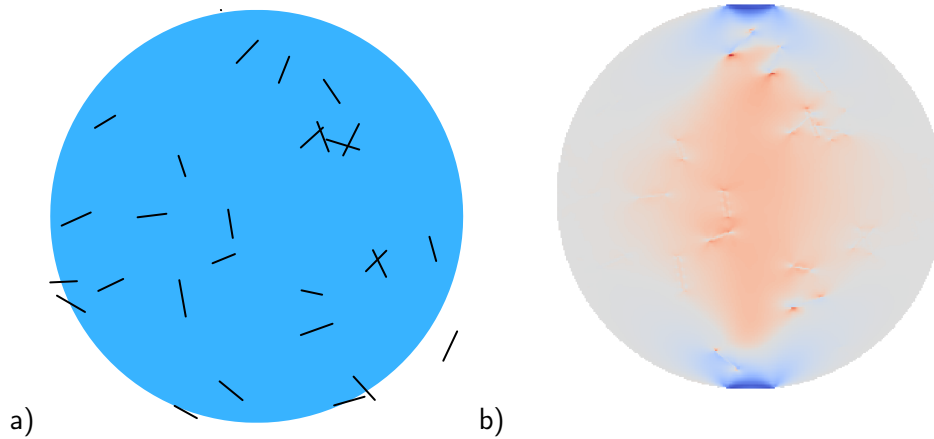


FIGURE 2.21. – Cas d'une particule possédant une distribution de défauts. a) emplacement des défauts dans la particule b) composante σ_{XX} du champ de contrainte.

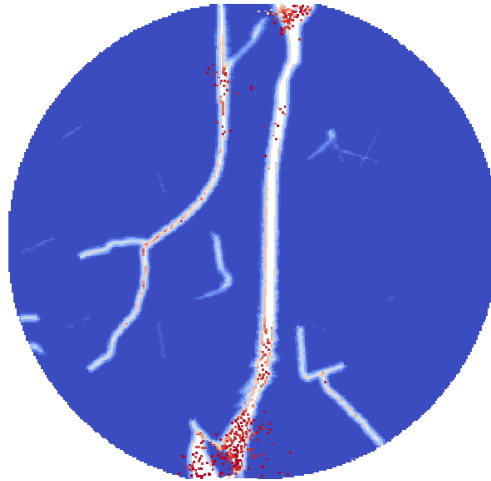


FIGURE 2.22. – Champ d'endommagement final dans une particule possédant une distribution de défauts

2.2.4. Identification des fragments

Le réseau de fissures peut conduire à la formation de fragments. Le lien entre la production de fragments, la microstructure initiale de la particule et la sollicitation mécanique reste mal compris et peu étudié dans la littérature.

Pour préciser ce lien, on cherche à identifier ces fragments en utilisant un algorithme de peinture [133] ou "Floodfill" en anglais. Cet algorithme permet de déterminer les zones connexes par percolation. Dans notre cas on considère le champ d'endommagement. Celui-ci est formé de zones non endommagées délimitées par le bord de la particule et par des zones endommagées représentant les fissures.

Une première étape consiste à fixer une valeur seuil T d'endommagement au-delà de laquelle

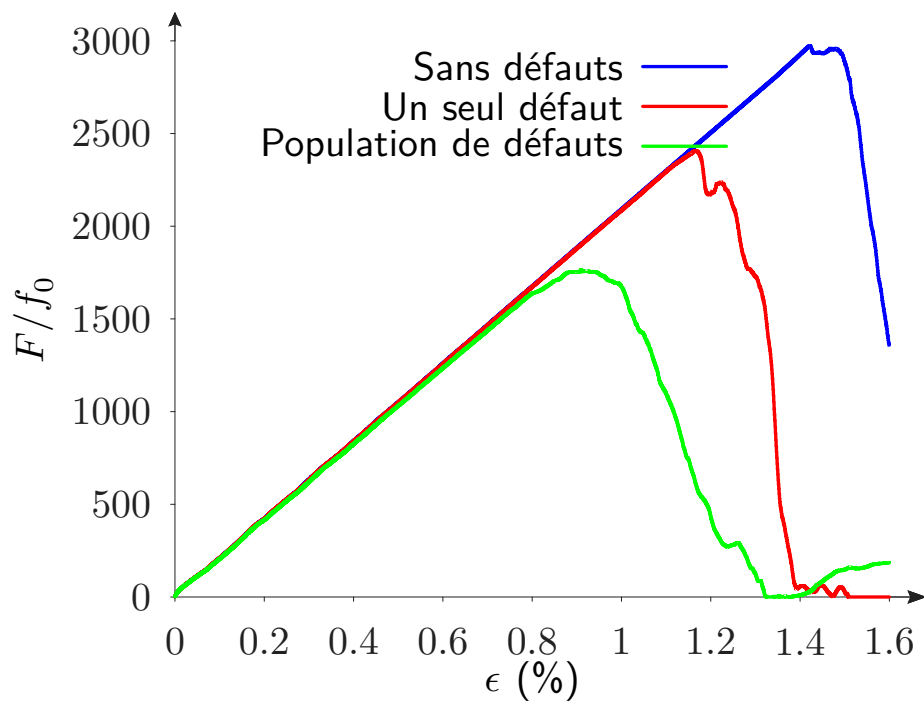


FIGURE 2.23. – Force normalisée par la force f_0 pour briser un lien en fonction de la déformation de la particule sur l'axe de chargement.

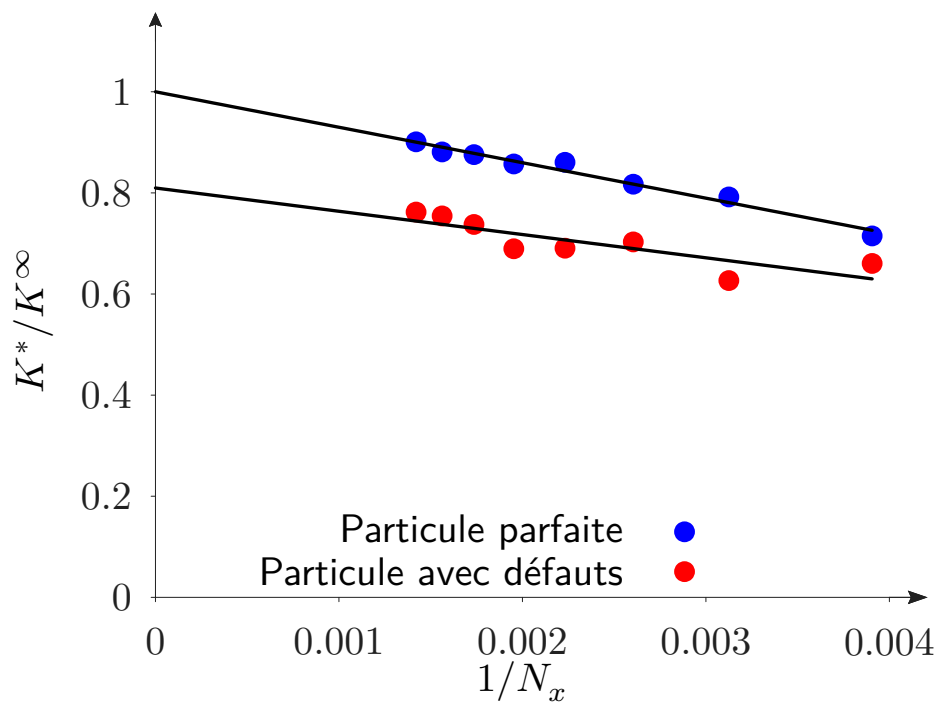


FIGURE 2.24. – Évolution du module K^* en fonction de $1/N_x$ avec et sans défauts.

on considère qu'il y a une rupture. Les noeuds du domaine peuvent alors avoir deux états intègres ou rompus.

Sur la figure 2.25a on peut voir le champ d'endommagement de la particule ainsi que l'état binarisé intègre/rompu (figure 2.25b). Les zones blanches correspondent aux noeuds dont la valeur d'endommagement est supérieure à T , et les noires celles pour laquelle le niveau d'endommagement est inférieur au seuil. En parcourant tous les noeuds "intègres", l'algorithme attribue ensuite à chaque pixel, de proche en proche, un identifiant commun qui correspond à un fragment délimité par des pixels du bord de la particule ou rompus. La figure 2.25c illustre cette détection des fragments en représentant par une couleur différente l'identifiant associé aux pixels de chaque fragment. A titre d'exemple, la structure de l'algorithme est donnée figure 2.26 pour une implémentation récursive à 4 directions (c'est-à-dire que l'algorithme ne considère comme "voisin" que les pixels connectés par une face). Dans nos études, nous utilisons une version non-récursive plus complexe mais beaucoup plus rapide et moins consommatrice de mémoire. Enfin, on notera que cette procédure permet de calculer facilement le nombre de pixels par fragment ou le nombre de pixels en contact avec une fissure, et permet ainsi de calculer le volume (surface en 2D) des fragments et leur surface spécifique.

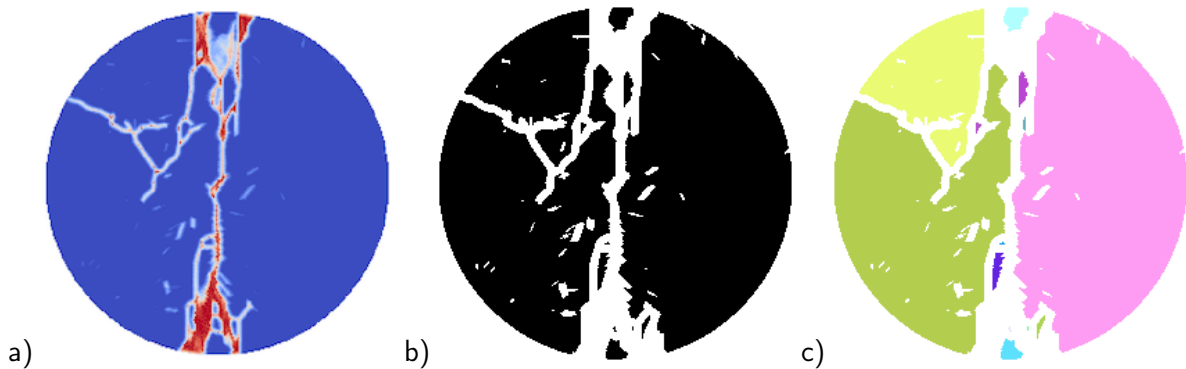


FIGURE 2.25. – a) Champ d'endommagement d'une particule après fracture; b) binarisation de l'endommagement pour une valeur seuil de $T=1\%$; c) résultat de l'algorithme de peinture.

```
Flood_Fill(pixel,T,newColor){
  if (pixel.damage <= T) {
    pixel.color=newColor
    Flood_Fill(pixel.x++,T,newColor)
    Flood_Fill(pixel.x--,T,newColor)
    Flood_Fill(pixel.y++,T,newColor)
    Flood_Fill(pixel.y--,T,newColor)
  }
}
```

FIGURE 2.26. – Exemple d'algorithme de peinture récursif.

2.2.5. Effet du seuillage sur le nombre de fragments

Comme l'endommagement atteint une valeur maximum au milieu de la fissure, en faisant varier la valeur du seuil d'endommagement T , on fait varier l'épaisseur des fissures. Pour des valeurs importantes de T , il est possible que certains fragments ne soient plus considérés comme

indépendants. La figure 2.27 illustre ce phénomène pour trois valeurs de T . La figure 2.28 donne le nombre de fragments identifiés dans la particule en fonction de T . Pour des valeurs de T supérieures à 80%, de très petits fragments dispersés dans les zones fortement endommagées apparaissent et font alors augmenter le nombre total de fragments. Comme on l'a vu plus haut (section 2.1.3), si l'on procède à une coupure de toutes les liaisons entre deux noeuds, le niveau d'endommagement sera d'environ 40% sur chaque noeud. Ceci explique que pour les valeurs de $T \in [0, 0.4]$ le nombre de fragments est bien déterminé. Par ailleurs, une valeur faible de T a tendance à créer des fissures occupant un volume de matière important. Pour ces raisons, nous avons choisi $T = 0.3$ qui apparaît être un bon compromis et donne des fissures de faible épaisseur.

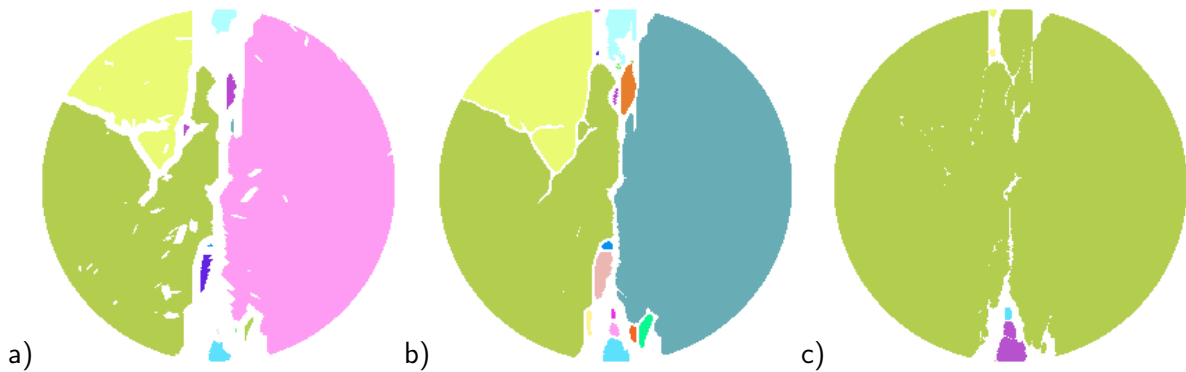


FIGURE 2.27. – Effet du seuil sur la détection des fragments par l'algorithme de peinture a) $T=1\%$; b) $T=30\%$; et c) $T=70\%$.

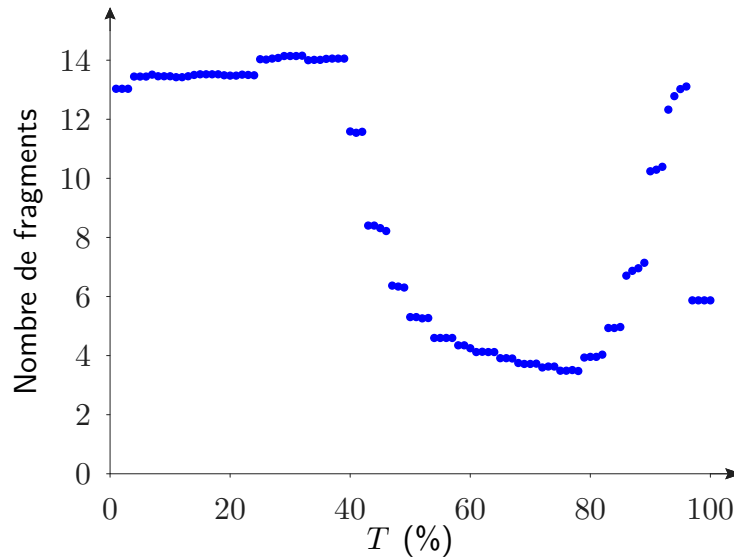


FIGURE 2.28. – Nombre moyen de fragments pour 100 particules en fonction de la valeur seuil d'endommagement.

2.3. Effet de la taille des particules sur la fragmentation

Il n'est pas rare que la rupture de matériaux hétérogènes soit sensible aux effets échelles. Par exemple, il a été montré que la contrainte à la rupture de poutres en béton dépend directement de leur taille [134]. Pour les roches de surface, la contrainte à la rupture est en général d'autant plus petite que la taille du bloc considéré est grande [45]. Ce phénomène peut être attribué à deux mécanismes qui peuvent être présents conjointement : 1) la probabilité de contenir un défaut critique augmente avec le volume de matière et 2) dans les processus de comminution, les fractures passent de façon privilégiée à travers les défauts, rendant les particules de plus en plus résistantes du fait de la consommation de défauts par les fissures.

Dans cette partie, on s'intéresse à l'étude de la fragmentation en fonction de la taille des particules. Seul le premier point sera considéré pour des diamètres de grain variant sur environ 2 décades.

2.3.1. Paramètres de l'étude paramétrique

On considère une configuration de référence pour laquelle une particule de taille D_0 (figure 3.2) est découpée dans un domaine carré contenant des défauts. Ces défauts sont aléatoirement distribués avec un nombre moyen égal à $\bar{n}_0 = 100$ par unité de surface, soit environ $\bar{n}_0 \times \frac{4}{\pi} \simeq 78$ défauts inclus dans le disque. Leur taille moyenne est choisie égale à $\mu_{\ell 0} \simeq D_0/30$ avec un écart-type $\sigma_{\ell 0} \simeq D_0/200$.

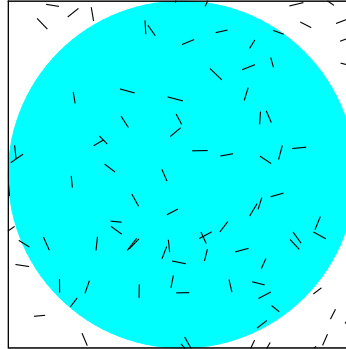


FIGURE 2.29. – Découpage d'un grain de diamètre D_0 dans une zone carrée contenant une population de défauts de référence.

Pour étudier l'influence de la taille des particules, on utilise la même procédure que précédemment en changeant le diamètre D . Tout se passe comme si l'on découpait des échantillons de différents diamètres en conservant la distribution et la taille des défauts définis précédemment. Les paramètres des distributions de défauts doivent être mis à l'échelle en fonction de D_0/D de la manière suivante :

$$\mu_{\ell} = \frac{D_0}{D} \mu_{\ell 0} \quad (2.12)$$

$$\sigma_{\ell} = \frac{D_0}{D} \sigma_{\ell 0} \quad (2.13)$$

$$n = \left(\frac{D}{D_0} \right)^2 n_0 \quad (2.14)$$

La figure 2.30 illustre 3 configurations pour des tailles de particules différentes. Plus la particule est petite, plus la taille relative des défauts par rapport au diamètre est grande et moins le nombre de défauts est important. Le tableau 2.1 consigne les 11 valeurs de D/D_0 utilisées ainsi que le nombre moyen de défauts et la moyenne et l'écart-type des longueurs de défauts.

D/D_0	$\bar{n}$	μ_ℓ	σ_ℓ
0.05	0.25	0.7	0.1
0.1	1	0.35	0.05
0.2	4	0.175	0.025
0.5	25	0.07	0.01
1	100	0.035	0.005
1.5	223	0.023	0.0033
2	400	0.0175	0.0025
2.5	625	0.014	0.002
2.85	816	0.01225	0.00175
4	1600	0.00875	0.00125
10	10000	0.0035	0.0005

TABLE 2.1. – Tailles de particules choisies, nombre de défauts et moyenne et écarts-type des longueurs de défauts.

Pour le calcul péricodynamique, ces particules sont maillées avec la même résolution de 256 noeuds sur le diamètre. Pour obtenir une statistique suffisante, on réalisera 100 générations aléatoires de défauts pour chaque diamètre, soit plus de 1000 essais de compression jusqu'à rupture des grains.

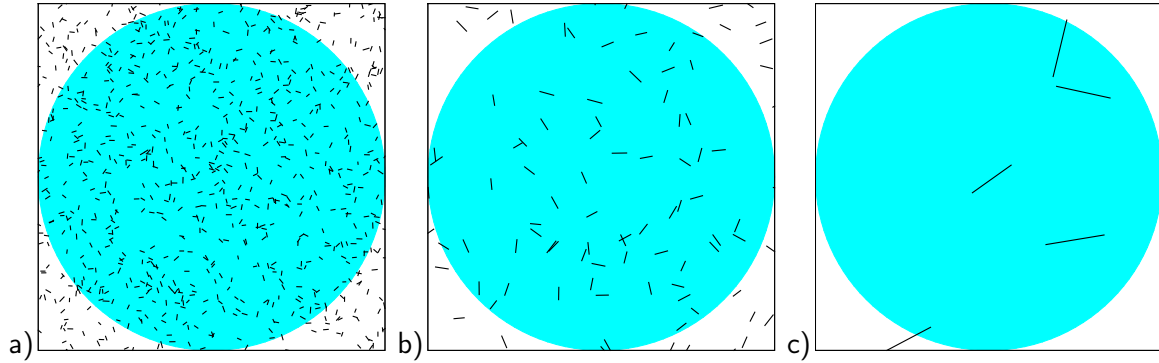


FIGURE 2.30. – Particules de différents diamètres a) $D/D_0=2.85$, b) $D/D_0=1$ et c) $D/D_0=0.2$.

2.3.2. Fracturation des plus petites particules

Les particules de plus petits diamètres ($D/D_0 = 0.05$, $D/D_0 = 0.1$ et $D/D_0 = 0.2$) possèdent très peu, voire pas du tout de défauts, comme on peut l'observer sur les exemples de la figure 2.31.

Or, avec des défauts placés hors de la zone critique de la particule (cf. section 2.2.3), la rupture ne peut pas s'initier en pointe de fissure et le comportement a un caractère pathologique présentant les mêmes caractéristiques que celui des particules sans défauts. La figure 2.32 montre un exemple de ce phénomène pour une particule de diamètre $D/D_0 = 0.2$. On peut noter que du fait du seuillage effectué, les plus petits fragments ne sont pas identifiables par l'algorithme de peinture. Ce sont

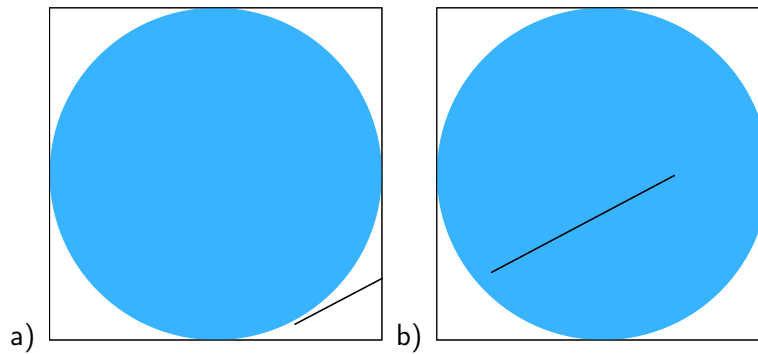


FIGURE 2.31. – Exemples de défauts dans des particules de diamètres $D/D_0 = 0.05$.

ces fragments, en très grand nombre, qui composent les zones fortement endommagées (en blanc sur la figure) et qui ne peuvent pas être comptabilisés.

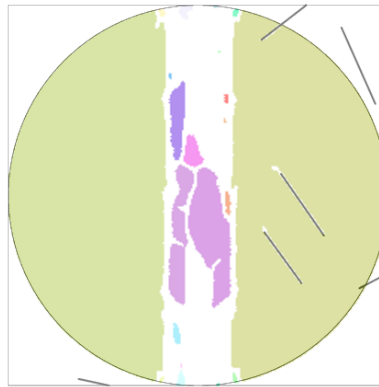


FIGURE 2.32. – Exemple de fracturation d'une particule de diamètre $D/D_0 = 0.2$

La figure 2.33 représente l'endommagement moyen des particules en fonction de leur diamètre 1) en considérant toutes les particules, 2) en retirant celles qui n'ont pas de défauts, 3) puis celles qui se cassent pour une force équivalente à une particule parfaite.

On constate sur cette figure que le niveau d'endommagement décroît fortement jusqu'à un diamètre $D/D_0 = 0.5$ puis reste relativement constant. Pour les plus petits diamètres, le filtrage des particules sans défaut fait baisser l'endommagement global d'environ 10% (points verts). Si l'on retire les particules ayant une force à la rupture équivalente à celle sans défaut (points bleu) l'endommagement baisse encore d'environ 10%. Ceci montre que beaucoup de particules contiennent des défauts placés en position "non critique". On notera également que même dans le cas où la force à la rupture est inférieure à celle d'une particule sans défaut, le niveau d'endommagement est grand. Les concentrations de contraintes dans les particules semblent être insuffisantes pour éviter des zones endommagées de large extension (partie 2.2.2).

La fracturation particulière de ces petites particules est donc à prendre en compte lors de l'analyse des résultats. Ces particules assez petites pour ne contenir presque plus de défauts conduisent à des ruptures peu réalistes pour des matériaux où une plastification en front de fissure intervient en général (chapitre 1.2.3).

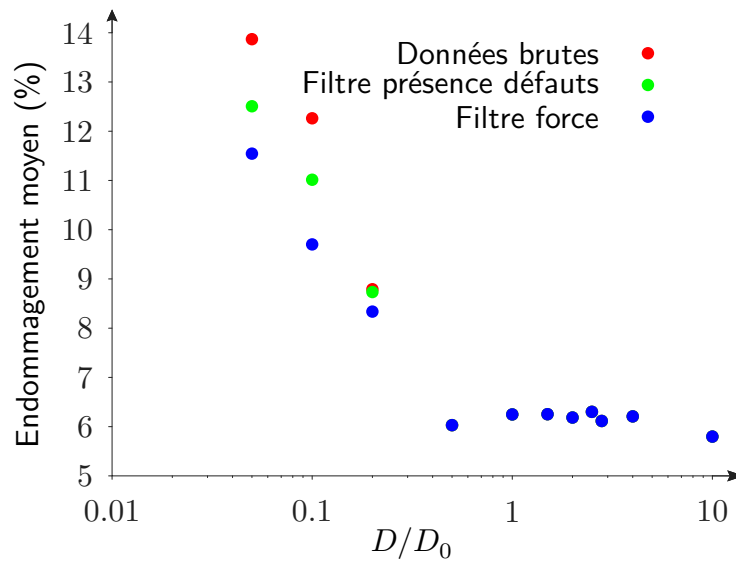


FIGURE 2.33. – Endommagement moyen des particules en fonction du diamètre ; rouge, données brutes ; vert, en éliminant les particules sans défaut ; bleu, en retirant celles dont la force à la rupture est équivalente à celle d'une particule parfaite.

2.3.3. Distribution de tailles de fragments

La figure 2.34a montre le volume moyen A_f (surface en 2D) des fragments adimensionnalisé par leur volume total A_f^{tot} . Avec l'augmentation du diamètre de la particule, le volume moyen des fragments augmente, jusqu'à un diamètre égal à 0.5, puis diminue. Pour les plus petites particules, comme on a pu le voir précédemment, seuls les plus gros fragments sont comptabilisés, les zones fortement endommagées correspondant à des tailles de fragments insuffisamment résolus. Pour les particules de tailles supérieures à 0.5, on remarque que A_f décroît avec la taille de la particule. L'augmentation du nombre de défauts dans la particule crée des chemins plus directs pour la fissure et réduit les circonvolutions à l'origine de la création de fragments.

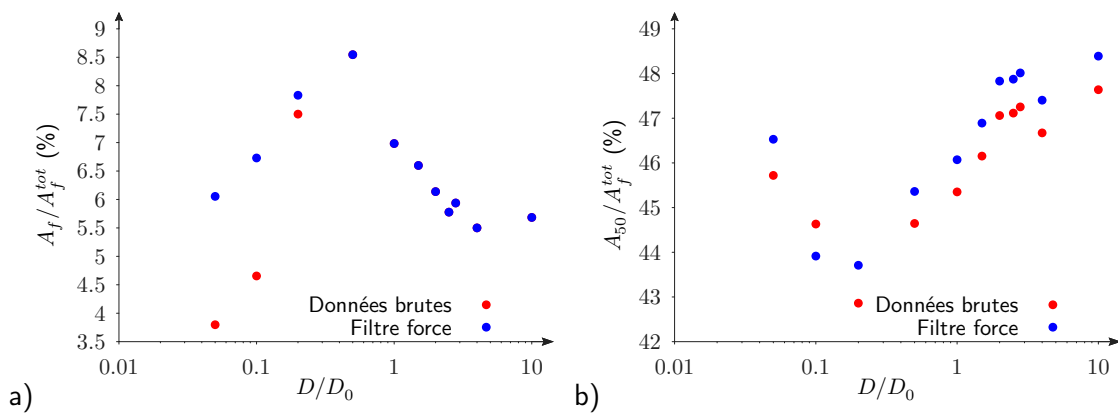


FIGURE 2.34. – a) Aire des fragments normalisée par l'aire totale de fragments. b) Aire médiane de fragments normalisée par l'aire totale de fragments.

La figure 2.34b montre la médiane des surfaces de fragments obtenus normalisée par l'aire totale

des fragments. Les valeurs sont comprises entre 43 et 48.5% de l'aire totale des fragments, ce qui indique que la population de fragments est constituée essentiellement de moitiés de particules. Ici aussi, on note que ceci est d'autant plus vrai que le diamètre de la particule est grand et que celle-ci incorpore un nombre important de défauts.

2.3.4. Longueurs de fissures

Il est possible d'identifier les fissures de la même manière que l'on identifie les fragments. La figure 2.35a montre un exemple de détection de l'ensemble des fissures d'une particule. L'algorithme permet de les distinguer et d'isoler celles qui ne sont pas à l'origine de fragment (figure 2.35b). Le faciès de rupture est généralement constitué d'une fissure centrale créant les deux gros fragments principaux ainsi que quelques petits. Dans certains cas, des fissures secondaires, peuvent également apparaître, créant des fragments de taille moyenne.

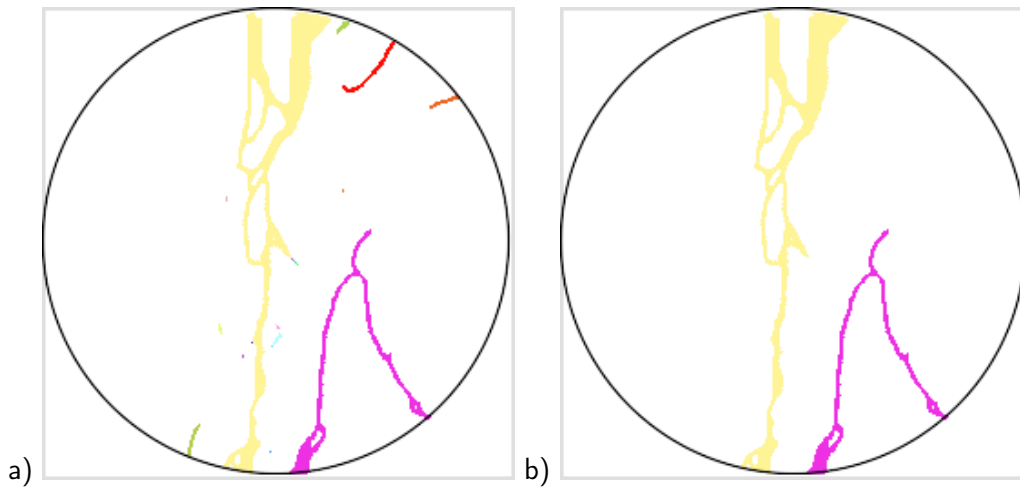


FIGURE 2.35. – Identification des fissures dans un disque de diamètre D_0 : a) toutes les fissures ; b) uniquement celles à l'origine de fragments.

La figure 2.36 représente le nombre moyen de fissures générant des fragments en fonction du diamètre de la particule. Ce nombre de fissure est proche de 1, ce qui confirme que la fracturation intervient de façon privilégiée au centre de la particule. Le nombre de fissures générant des fragments augmente ensuite en fonction du diamètre. On constate également que la suppression des particules dont le seuil de rupture est proche de celui d'une particule parfaite ("filtrée") est proche du cas des données brutes.

2.3.5. Probabilité de survie d'une particule

Dans cette section, on s'intéresse à la statistique des seuils de rupture. En supposant que la rupture est obtenue pour la contrainte maximale en tension au centre de la particule, on peut relier la force à la rupture à cette contrainte (voir section 2.2.2) en utilisant l'équation :

$$\sigma_c = \frac{2F_t}{\pi D} \quad (2.15)$$

où F_t est la force maximum avant rupture et D le diamètre de la particule.

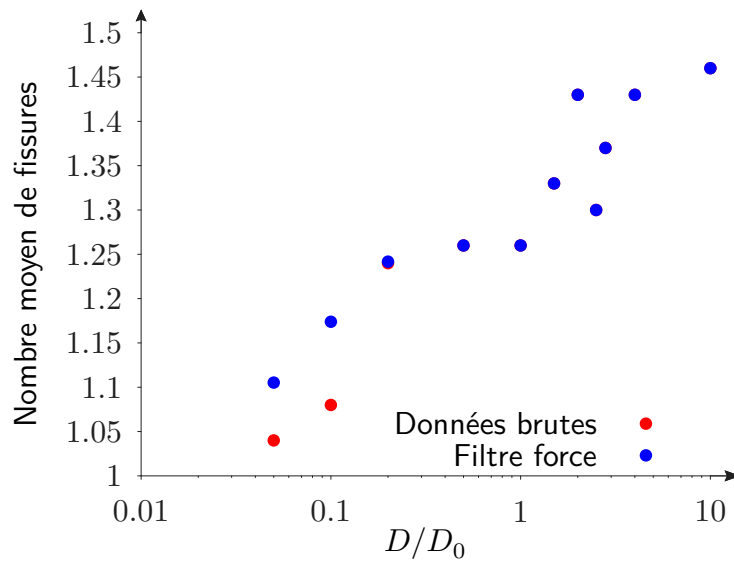


FIGURE 2.36. – Nombre moyen de fissures créant des fragments en fonction de D/D_0 .

Ici, on utilise le diamètre utilisé dans la simulation, c'est-à-dire $D = 1$. Dans le but d'étudier la dispersion des valeurs de contraintes à la ruptures, nous considérons la probabilité de survie d'une particule pour une contrainte donnée. Pour N particules, les particules sont classées par contraintes à la rupture croissante et la probabilité de survie de la i^{me} particule est déterminée par :

$$P_S(i) = 1 - \frac{i - 1/2}{N} \quad (2.16)$$

On note par ailleurs que si de la i^{eme} particule à la $(i + k)^{eme}$ particule les disques possèdent la même contrainte à la rupture, alors on affecte à toutes ces particules la probabilité de survie de la $(i + k)^{eme}$ particule. Dans la suite, on a choisi d'interpoler les données à partir de la distribution classique de Weibull [38] :

$$P_S = \exp \left[- \left(\frac{\sigma_c}{\sigma_w} \right)^m \right] \quad (2.17)$$

où σ_w correspond à la contrainte à laquelle 63% des particules sont rompues et m est le module de Weibull qui caractérise la largeur de la distribution. La figure 2.37 montre les distributions de Weibull des diamètres 0.5 à 10 dans les axes $\ln(\ln(1/P_S))$ en fonction de $\ln(\sigma_c/\sigma_\emptyset)$. Si les données suivent une seule et même droite alors la pente de cette droite est égale au module de Weibull. On peut noter qu'une valeur nulle sur l'abscisse correspond à une contrainte égale à $\sigma_\emptyset$ correspondante à celle du matériau sans défaut.

Il est intéressant de noter que mis à part pour les plus petits diamètres (entre 0.05 et 0.2), les distributions suivent bien une distribution de Weibull. Les données des calculs permettent de définir un module même si des écarts existent pour les plus faibles et les plus grandes contraintes.

La figure 2.38 représente l'évolution de ce module en fonction de D/D_0 . Sauf pour les plus petits diamètres, le module de Weibull augmente avec la taille de particule et varie d'une décade ($m = 4.4$ à $m = 42$). On constate que plus la particule est grande (et plus elle contient de défauts) plus la distribution des contraintes à la rupture est resserrée. En d'autres termes, les particules ont tendance à casser pour des valeurs de contraintes très proches, ce qui se traduit par un module m élevé.

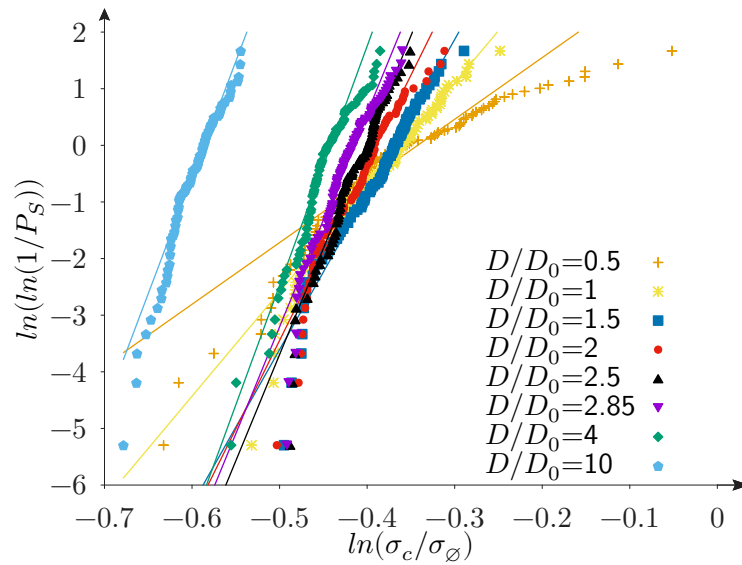


FIGURE 2.37. – Probabilité de survie des particules en fonction de la contrainte appliquée normalisée par la contrainte à la rupture du matériau pour différents diamètres. Les droites représentent les interpolations par des distributions de Weibull.

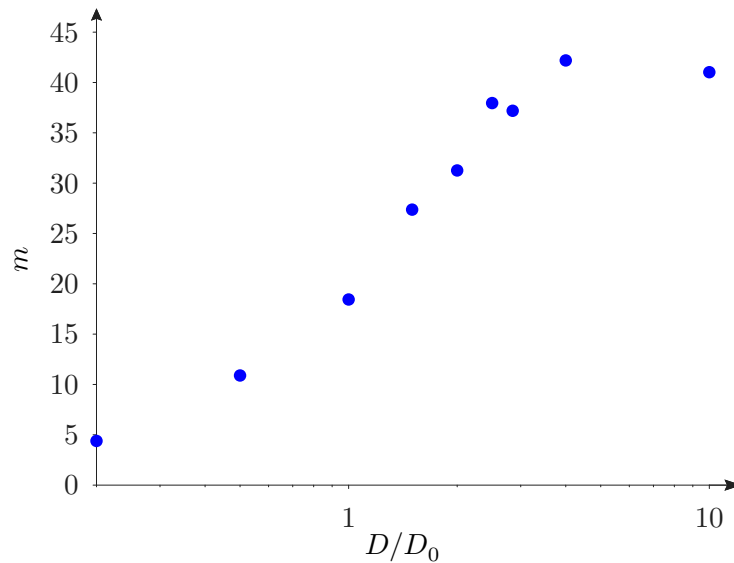


FIGURE 2.38. – Module de Weibull en fonction du diamètre de la particule

Au contraire, en dessous de $D/D_0 = 0.2$ les distributions ne peuvent pas être décrites par des distributions de Weibull. Comme on l'a vu dans la partie 2.3.2 certaines des plus petites particules possèdent peu voire pas du tout de défauts. Un grand nombre de particules se brisent alors sous une contrainte égale ou très proche d'une particule parfaite. On peut voir sur la figure 2.39 les distributions qui tendent à être verticales à cause de l'influence de ces nombreuses particules aux contraintes les plus élevées.

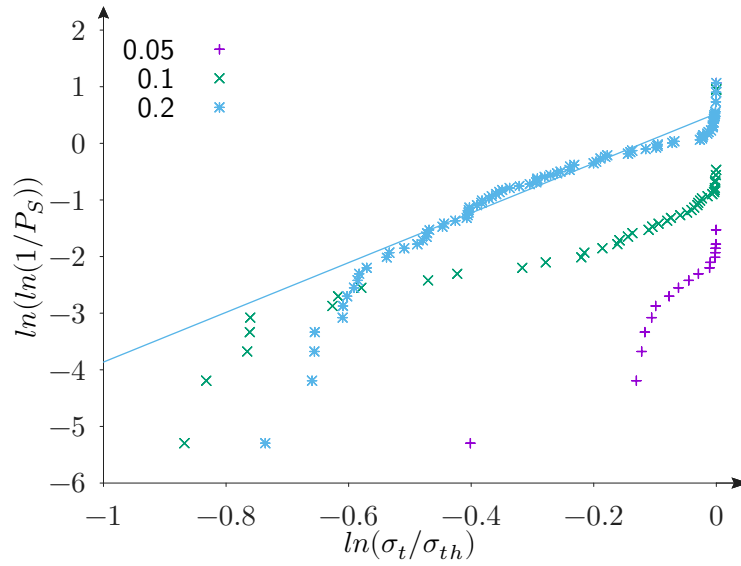


FIGURE 2.39. – Probabilité de survie des particules en fonction de la contrainte appliquée normalisée par la contrainte à la rupture du matériau pour les plus petits diamètres. Les droites représentent les interpolations par des distributions de Weibull.

2.3.6. Contrainte à la rupture

La distribution de Weibull s'écrit également de la manière suivante :

$$P_S = \exp \left[-\frac{V}{V_0} \left(\frac{\sigma_c}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (2.18)$$

avec V le volume de la particule et V_0 le volume de référence d'une particule. σ_0 est donc la contrainte à laquelle 63% des particules de volumes V_0 sont brisées et on a :

$$\sigma_w(V) = \left(\frac{\sigma_0 V_0}{V} \right)^{1/m} \quad (2.19)$$

On a donc $\sigma_w \propto D^{-3/m}$ avec D le diamètre de la particule de volume V .

De plus, σ_w est lié à la contrainte à la rupture moyenne $\bar{\sigma}_c$ [39] suivant la relation suivante :

$$\bar{\sigma}_c = \sigma_w \Gamma(1 + 1/m) \quad (2.20)$$

Donc $\bar{\sigma}_c \propto D^{-3/m}$. Dans le cas 2D, en remplaçant V/V_0 par A/A_0 on obtient alors $\bar{\sigma}_c \propto D^{-2/m}$.

Dans la figure 2.40, la contrainte à la rupture normalisée par la contrainte à la rupture d'une particule sans défauts ($\sigma_\emptyset$) est tracée en fonction de D/D_0 . On peut voir que la résistance à la traction diminue avec l'augmentation du diamètre de la particule et suit une loi de puissance avec un exposant égal à -0.105 pour les données brutes et -0.089 pour les données filtrées.

Ce comportement en loi de puissance est en accord avec l'évolution de la contrainte à la rupture prédite par Weibull et devrait donner un module de Weibull unique quelque soit le diamètre de la particule et égale à $m = 2/0.105 = 19$. Néanmoins ici, le module de Weibull n'est pas constant et cette égalité n'est pas vérifiée.

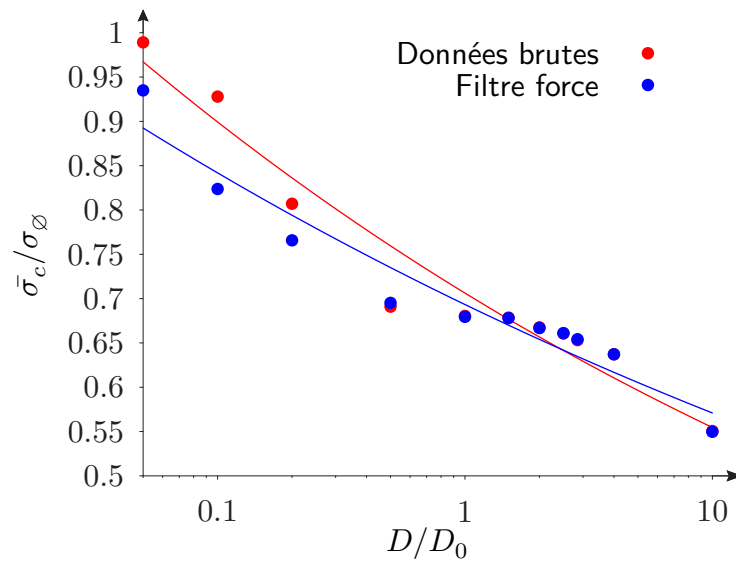


FIGURE 2.40. – Contrainte moyenne en tension normalisée par la contrainte à la rupture du matériau en fonction du diamètre normalisé.

Conclusion

Cette étude sur la modélisation numérique de la fragmentation d'un grain en 2D nous a permis de développer une méthodologie basée sur la méthode *bond-based* de la périodynamique avec laquelle nous avons pu caractériser la fracturation de plus de 1000 particules.

Dans le cas d'une particule sans défauts, la convergence au maillage des propriétés élastiques a été analysée ainsi que l'effet de la taille de maille sur le seuil de rupture. La fragilisation d'une particule par la présence d'un défaut a été étudiée et une étude paramétrique a permis de montrer l'importance de la position du défaut dans la particule.

Une étude paramétrique sur plus de 1000 particules a permis d'étudier les effets d'échelles pour différentes tailles de grains et populations de défauts. La probabilité de survie des particules a pu être caractérisée par une distribution de Weibull dont le module change avec le diamètre des disques. Nous avons pu observer que, bien que l'évolution de la contrainte à la rupture diminue avec l'augmentation du diamètre en suivant une loi de puissance, celle-ci n'est pas en accord avec la *weakest link theory* qui est à l'origine de la normalisation par V/V_0 proposée par Weibull.

Enfin, des outils d'analyse d'image ont également été développés. Ils permettent d'identifier les fragments, de déterminer les tailles de fragments obtenus et d'analyser les faciès de rupture.

3. Fracturation par impact

Sommaire

Introduction	82
3.1. Fracturation par impact de disques	82
3.1.1. Description de l'essai	82
3.1.2. Variation de l'énergie de l'impacteur	83
3.1.3. Variation de la vitesse de l'impacteur à énergie constante	90
3.2. Effet de la forme des particules	95
3.2.1. Géométrie des particules	96
3.2.2. Description de l'essai	96
3.2.3. Résultats	97
Conclusion	102

Introduction

Dans ce chapitre on présente quelques résultats, parfois exploratoires, obtenus en utilisant le modèle périodynamique présenté dans le chapitre précédent. Contrairement au chapitre précédent où l'on a cherché à se placer dans des conditions quasi-statiques, on s'intéresse ici à l'effet de l'énergie d'impact, phénomène important à prendre en compte pour l'étude des broyeurs. Deux cas sont étudiés : celui de la fracturation dynamique d'un disque, et celui de l'effet de la forme des particules sur la rupture dynamique. On s'intéressera particulièrement à l'interaction avec l'impacteur et à la distribution des fragments générés.

3.1. Fracturation par impact de disques

3.1.1. Description de l'essai

Les particules fracturées ici, sous la forme de disques 2D de diamètre $D_0 = 1$, sont construites de la même manière qu'au chapitre précédent. Elles sont discrétisées à l'aide d'un maillage carré régulier rectilinéaire avec $N_x = 256$ et un horizon $h/\delta x = 3$. Dans cette étude nous avons choisi de fragmenter la particule par double impact (voir partie 1.2.4) pour essayer de se rapprocher de la configuration des broyeurs à media broyant utilisés dans les chapitres 4 et 5. Le disque est donc impacté par le dessus par un plateau de masse M_p et de vitesse initiale V_p (figure 3.1).

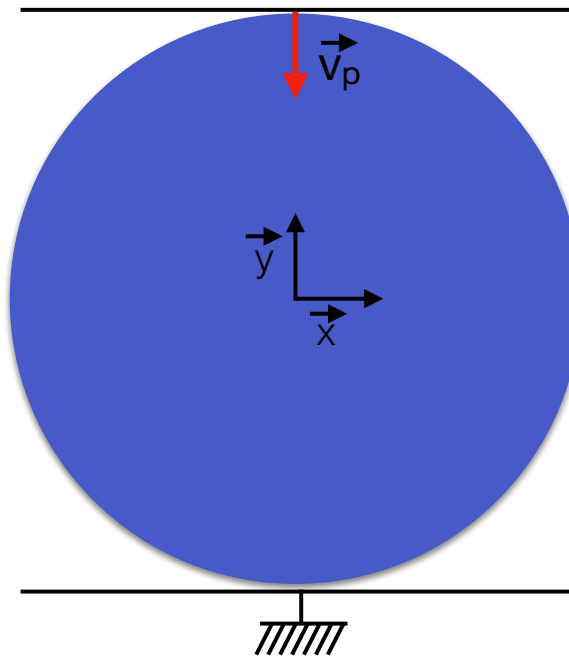


FIGURE 3.1. – Schéma d'une particule et du plateau supérieur avant impact.

Le contact entre la particule et les plateaux est modélisé de la même manière qu'au chapitre précédent en ajoutant des forces normales et tangentielles au niveau des noeuds à l'interface entre la particule et les plateaux. La force normale, appliquée à tout point matériel ayant pénétré à l'intérieur d'un des plateaux, est calculée en supposant un comportement linéaire élastique (force proportionnelle à l'overlap). Le frottement est modélisé par une loi de Coulomb régularisée de coefficient de frottement 0.5.

Une population de défauts similaire à celle décrite dans le chapitre précédent (section 2.2.3) est considérée avec $n_0 = 100$ défauts par unité de surface. Leur taille moyenne est choisie égale à $\mu_0 \simeq D_0/30$ avec un écart-type $\sigma_{\ell_0} \simeq D_0/200$ (figure 3.2a).

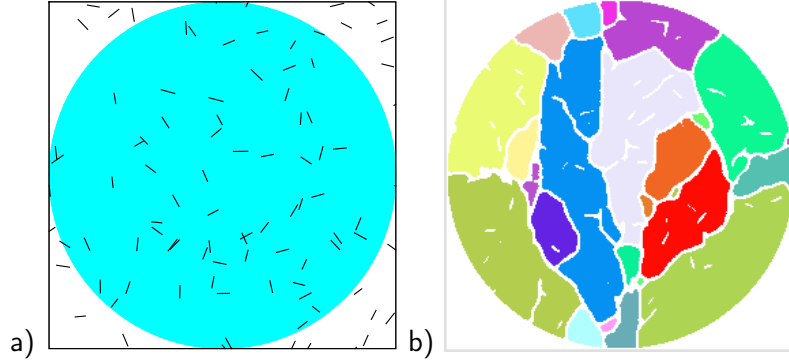


FIGURE 3.2. – a) Exemple de découpage d'un grain de taille D_0 dans un matériau de population de défauts $n_0 = 100$; b) Identification des fragments après une rupture par impact.

Pour observer les effets de la propagation dynamique des ondes élastiques dans la particule, aucune viscosité globale n'est appliquée ici, contrairement au chapitre précédent. La durée de simulation est fixée à 1.5s pour laisser le temps aux fissures de se propager. La même méthode que dans la section 2.2.4 est ensuite utilisée pour identifier les fragments et les fissures créés par l'impact sur la particule. La figure 3.2b présente un exemple de cette identification.

3.1.2. Variation de l'énergie de l'impacteur

Paramètres de l'étude

L'influence de l'énergie cinétique de l'impacteur est étudiée ici. Plusieurs impacts sont réalisés à 10 vitesses d'impacteur V_p différentes. Pour chacune de ces vitesses, on réalise 20 essais sur des particules générées aléatoirement (pour la population de défauts définie précédemment). Pour chacun des essais, la masse M_p de l'impacteur est gardée constante.

Le tableau 3.1 résume l'ensemble des énergies cinétiques initiales du plateau $\mathcal{E}_p^i$ utilisées, normalisées par l'énergie théorique $\mathcal{E}_0$ nécessaire pour briser en deux une particule sans défauts de même diamètre :

$$\mathcal{E}_0 = 2D_0 \frac{K_I^2}{E} \quad (3.1)$$

avec D_0 son diamètre et respectivement E et K_I le module d'Young et la ténacité en mode I du matériau composant la particule. Sont également présentées dans ce tableau les vitesses d'impacteur utilisées, normalisées par la célérité c_ℓ d'une onde élastique longitudinale se propageant dans la particule (cf. équation 2.10).

$\mathcal{E}_p^i/\mathcal{E}_0$	1.11	3.09	4.44	6.05	6.94	7.90	10	12.35	27.78	49.38
V_p/c_ℓ	0.0123	0.0204	0.0246	0.0285	0.0306	0.0327	0.0366	0.0408	0.0612	0.0816

TABLE 3.1. – Energies cinétiques et vitesses de l'impacteur normalisées respectivement par l'énergie théorique nécessaire pour briser en deux une particule et par la célérité de l'onde élastique.

Sur la figure 3.3 la mesure de la durée effective de parcours de l'onde élastique à travers la particule est représentée. On peut voir que la durée qui sépare le début de l'impact sur le plateau supérieur à celui du plateau inférieur est d'à peu près $0.97t_1$, avec $t_1 = D_0/c_\ell$ la durée théorique. La valeur mesurée est donc très proche de la valeur théorique.

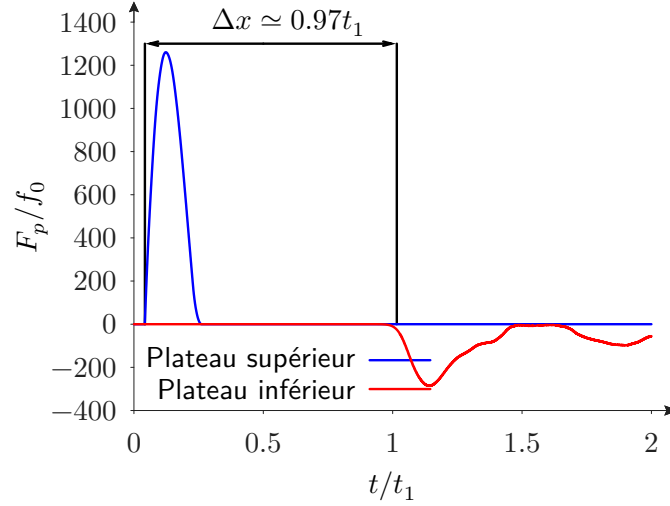


FIGURE 3.3. – Evolution temporelle des forces exercées sur le plateau supérieur et inférieur normalisées par la force nécessaire pour rompre un lien en traction.

Comportement de l'impacteur

Lorsque l'impacteur rentre en contact avec la particule, son énergie cinétique est progressivement convertie en énergie élastique par déformation de la particule jusqu'à ce que l'impacteur soit à l'arrêt. Puis, l'impacteur rebondit et l'énergie élastique de la particule est en partie restituée à l'impacteur sous forme d'énergie cinétique. Un exemple d'évolution de l'énergie cinétique $\mathcal{E}_p$ du plateau est présenté sur la figure 3.4. Cette énergie est tracée en fonction du temps t normalisé par le temps t_1 .

Une partie de l'énergie cinétique de l'impacteur a été cédée à la particule pendant l'impact. Cette énergie est déterminée en faisant la différence entre l'énergie cinétique initiale du plateau $\mathcal{E}_p^i$ et l'énergie cinétique du plateau une fois qu'il a rebondi et qu'il s'est détaché de la particule $\mathcal{E}_p^f$. On définit alors le coefficient de transmission Tr comme le rapport entre l'énergie élastique transmise à la particule $\mathcal{E}_t$ et l'énergie cinétique initiale du plateau :

$$Tr = \frac{\mathcal{E}_t}{\mathcal{E}_p^i} = \frac{\mathcal{E}_p^f - \mathcal{E}_p^i}{\mathcal{E}_p^i} \quad (3.2)$$

Dans cette expression, nous n'avons pas considéré l'énergie perdue en dissipation plastique due au frottement de Coulomb au niveau des contacts avec les plateaux. Cette énergie est négligeable par rapport celle nécessaire pour propager les fissures.

La figure 3.5 montre l'évolution du coefficient de transmission en fonction de la vitesse normalisée de l'impacteur. On note que le coefficient de transmission augmente faiblement avec l'augmentation de l'énergie cinétique en restant compris entre 0.75 et 0.77.

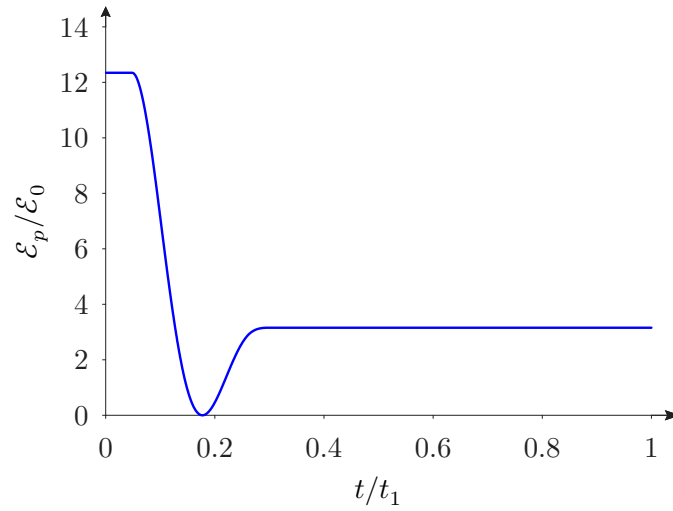


FIGURE 3.4. – Exemple d'évolution de l'énergie cinétique de l'impacteur en fonction du temps normalisé.

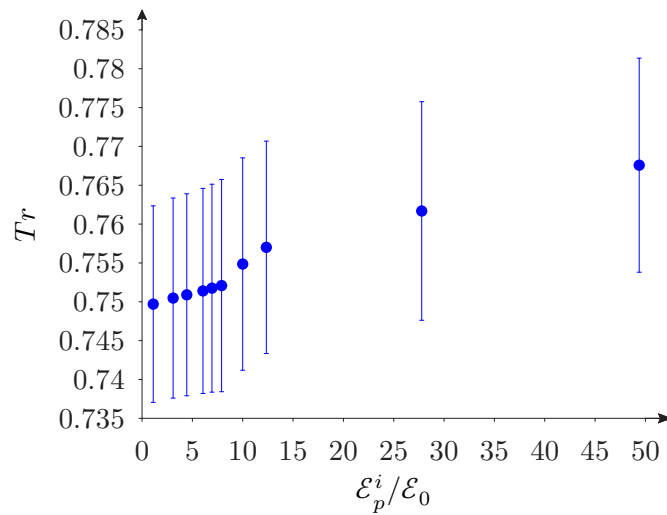


FIGURE 3.5. – Évolution du coefficient de transmission en fonction de l'énergie cinétique initiale de l'impacteur. Les barres d'erreurs représentent l'écart-type des données pour 20 générations de particules.

Décomposition de l'énergie transmise

L'énergie transmise par l'impacteur est utilisée dans la particule pour propager des fissures, mettre en mouvement la particule ou ses fragments et se trouve partiellement stockée sous forme d'énergie élastique. On définit un coefficient $\chi_r = \frac{\mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_t}$ où $\mathcal{E}_r$ est l'énergie restante dans la particule à la fin de la simulation. On peut décomposer χ_r en deux contributions liées à l'énergie élastique $\chi_e = \frac{\mathcal{E}_e}{\mathcal{E}_t}$ et cinétique $\chi_c = \frac{\mathcal{E}_c}{\mathcal{E}_t}$:

$$\chi_r = \chi_e + \chi_c \quad (3.3)$$

Dans cette expression χ_e est calculé à partir de l'énergie potentielle élastique stockée dans l'ensemble des liaisons alors que χ_c est déterminé à partir de la somme des énergie cinétiques de chacun

des noeuds. On peut noter que le calcul est réalisé dans le repère global, et que par conséquent χ_c représente l'énergie cinétique de "vibration" (liée aux ondes élastiques convertibles en énergie potentielle) mais aussi l'énergie cinétique liée au mouvement barycentrique des fragments.

La figure 3.6 présente l'évolution de ces coefficients en fonction de l'énergie $\mathcal{E}_t$ transmise à la particule. On constate qu'aux faibles valeurs de $\mathcal{E}_t$, $\chi_c \simeq \chi_e$ ce qui montre que le mouvement

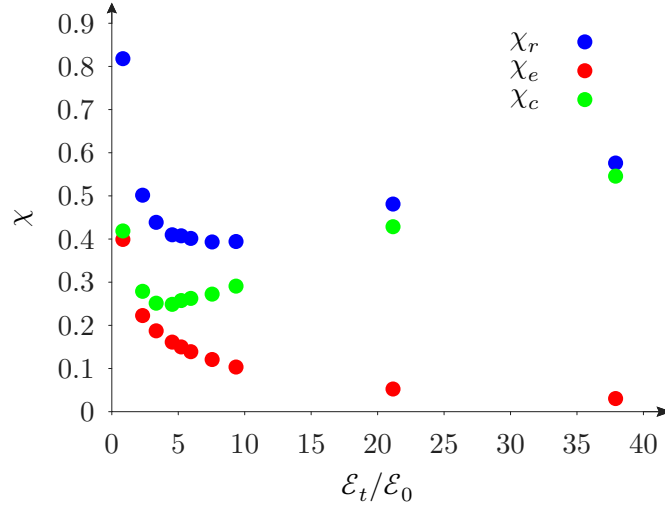


FIGURE 3.6. – Évolution des coefficients χ en fonction de l'énergie transmise à la particule.

d'ensemble des fragments est faible. La plus grande partie de l'énergie restante est donc conservée sous forme d'ondes élastiques dans la particule. Dans cette phase les fragments détachés sont mis en résonance. Ce n'est plus le cas pour des valeurs de $\mathcal{E}_t$ plus grandes, où les fragments sont éjectés violemment après rupture. Dans ce cas χ_c devient plus grand que χ_e . Sur ces courbes, on voit également que χ_e décroît avec $\mathcal{E}_t$, ce qui traduit la perte d'énergie liée à la rupture des liaisons.

L'énergie $\mathcal{E}_f$ utilisée pour fracturer la particule peut également être déduite de l'énergie restante. On peut calculer le ratio η d'énergie utilisée pour fracturer par rapport à l'énergie transmise, traduisant l'efficacité énergétique de la fracturation :

$$\eta = \frac{\mathcal{E}_f}{\mathcal{E}_t} = \frac{\mathcal{E}_t - \mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_t} = 1 - \chi_t \quad (3.4)$$

Mais, comme on l'a vu précédemment, le plateau impacteur ne transfère qu'une partie de son énergie à la particule. L'efficacité énergétique de l'opération de fracturation est donc plus faible que celle mesurée par η . On peut alors définir un nouveau ratio η' :

$$\eta' = \eta Tr = (1 - \chi_t) Tr \quad (3.5)$$

On note que si η' est inférieur à η , l'énergie impliquée dans le procédé doit être supérieure à celle nécessaire pour broyer. Néanmoins, dans un procédé réel, l'énergie résiduelle stockée sous forme d'énergie cinétique dans l'impacteur n'est pas forcément totalement perdue.

Sur la figure 3.7 l'évolution de ces coefficients est tracée en fonction de l'énergie transmise à la particule. Étant donné que Tr est quasiment constant ici, η et η' présentent la même évolution en fonction de $\mathcal{E}_t$ avec respectivement un maximum à 0.61 et 0.46 pour $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 7.6$. L'efficacité diminue par la suite.

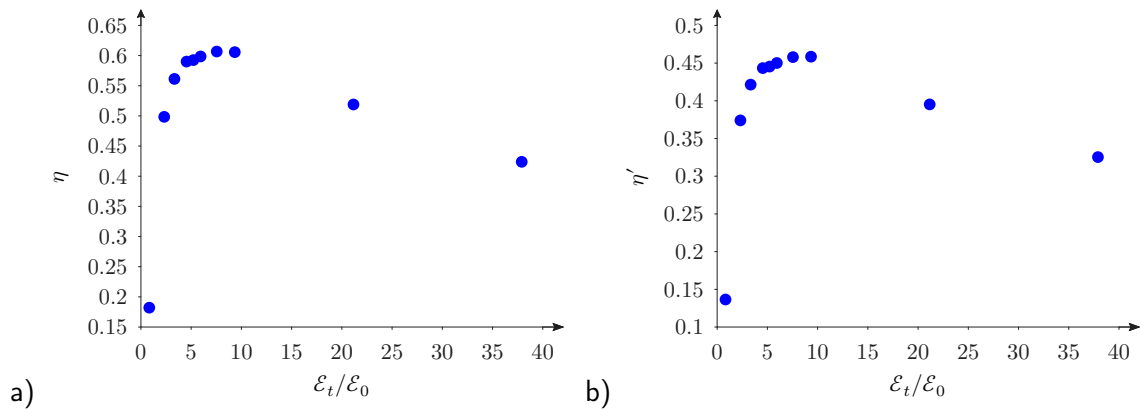


FIGURE 3.7. – Évolution de η (a) et η' (b) en fonction de l'énergie transmise à la particule.

L'endommagement des particules augmente avec l'énergie de l'impacteur, comme on peut le voir sur la figure 3.8, mais la diminution de l'efficacité de fracturation pour les hautes énergies ralentit son augmentation.

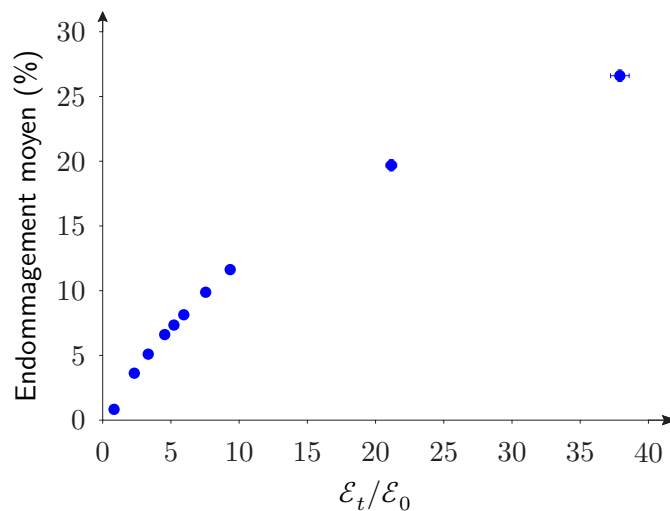


FIGURE 3.8. – Endommagement moyen des particules en fonction de l'énergie élastique transmise.

Granulométrie des fragments créés

Pour les plus faibles énergies d'impacteurs, la particule n'est pas ou peu fracturée. Très peu de fissures se sont propagées, mais des micro-fissures peuvent apparaître à l'emplacement des défauts (figure 3.9a).

Le nombre de fragments augmente avec l'énergie en se localisant de façon privilégiée au niveau de la zone d'impact (figure 3.9b). Cette zone va continuer à concentrer l'endommagement au fur et à mesure que l'on augmente l'énergie, en créant de nombreux petits fragments au niveau des deux contacts avec les plateaux (figure 3.9c). Pour les fortes énergies d'impact (figure 3.9d) la périphérie se fracture fortement et un gradient de taille de fragment semble apparaître de la périphérie vers le centre.

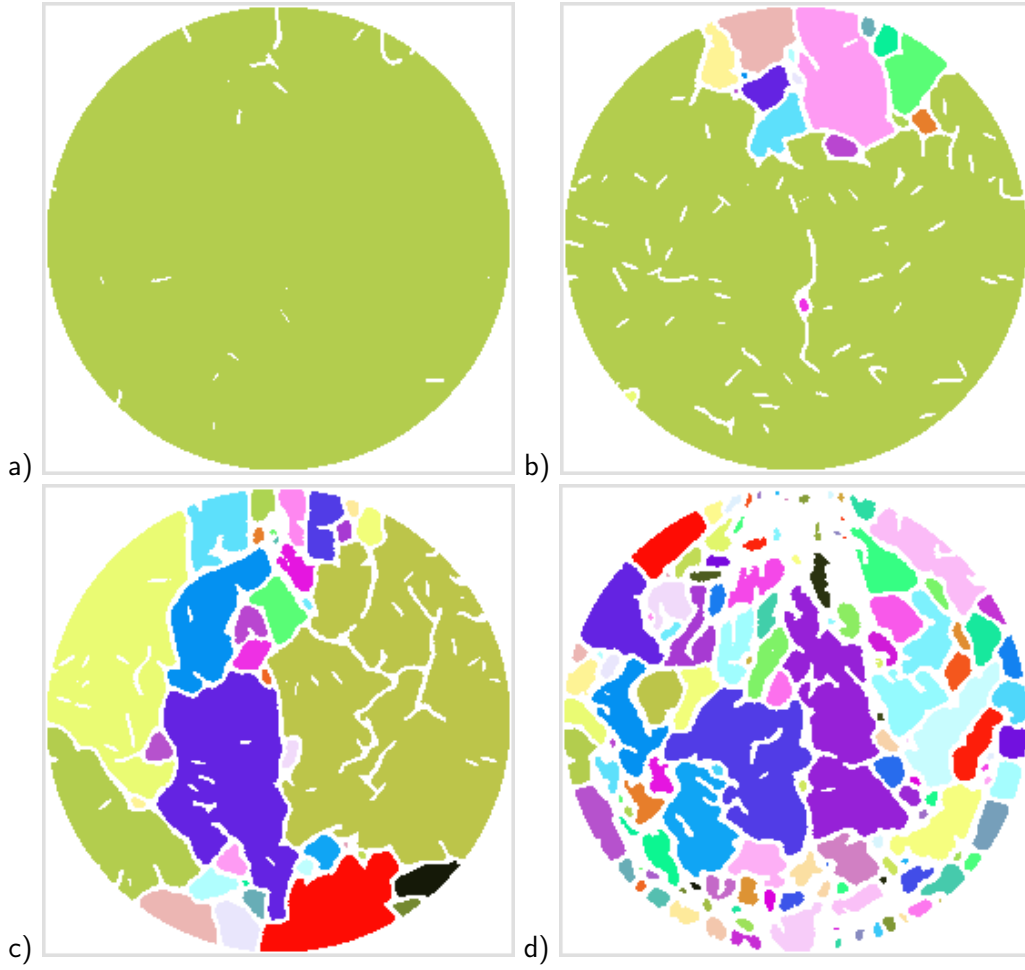


FIGURE 3.9. – Exemples de fragments après fracturation d'une particule pour différentes énergies élastiques transmises. a) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 0.83$, b) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 3.34$ c) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 7.55$ d) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 37.91$

La figure 3.10a montre le nombre moyen de fragments générés en fonction de l'énergie. On voit que ce nombre évolue linéairement avec l'énergie transmise sauf pour les deux derniers points. On peut noter que pour ces deux valeurs, les effets dus à l'épaisseur de la fracture peuvent se faire ressentir et limiter le nombre de fragments. La figure 3.10b représente la surface moyenne des fragments $\bar{s}$ en fonction de l'énergie transmise. On note que cette surface décroît rapidement avec l'énergie en suivant une loi de puissance dont l'exposant est égal à -1.17.

Pour représenter la distribution en taille des fragments, la représentation cumulée est la plus adaptée. En effet, à cause du nombre relativement faible de fragments obtenus au total, la représentation cumulée permet de "lisser" la distribution. On peut alors exprimer cette distribution cumulée $N(s)$ de fragments ayant une taille supérieure ou égale à s de la manière suivante [135] :

$$N(s) = \frac{1}{s} \int_s^\infty n(s') ds' \quad (3.6)$$

avec $n(s')$ la quantité de fragments de taille s' . Dans ce cas si $n(s) \propto s^{-\tau}$ alors $N(s)$ suit également une loi de puissance possédant le même exposant τ .

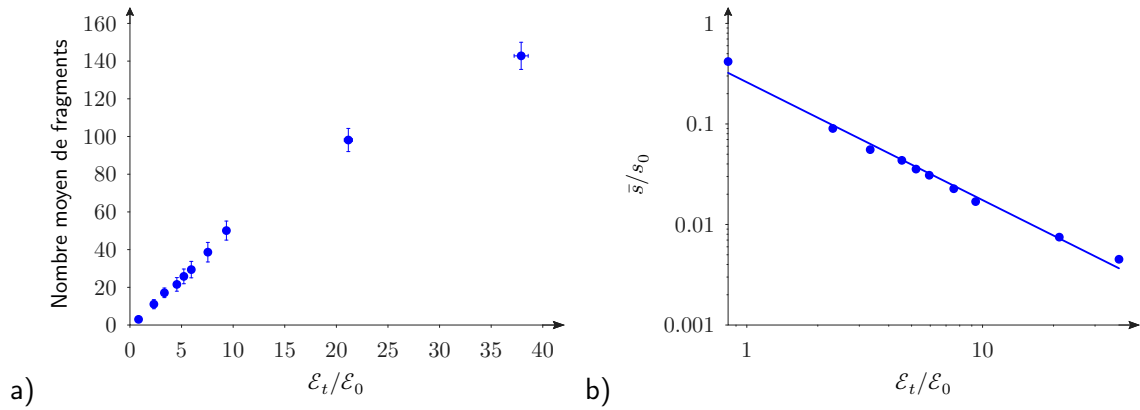


FIGURE 3.10. – a) Nombre moyen de fragments en fonction de l'énergie cinétique de l'impacteur. b) Taille moyenne des fragments normalisée par la surface de la particule $\bar{s}_0$.

Pour une énergie cinétique $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0$ inférieure à 0.83, la distribution $N(s)$ n'est pas assez bien définie pour pouvoir être exploitée à cause du très faible nombre de fragments. Au delà, $N(s)$ suit une loi de puissance dès que la surface des fragments est supérieure à 30 noeuds. Cette transition apparaît comme une rupture de pente sur la figure 3.11 qui représente la distribution de fragments en fonction de l'aire pour une vitesse d'impact donnée. Cette taille minimale de fragments de 30

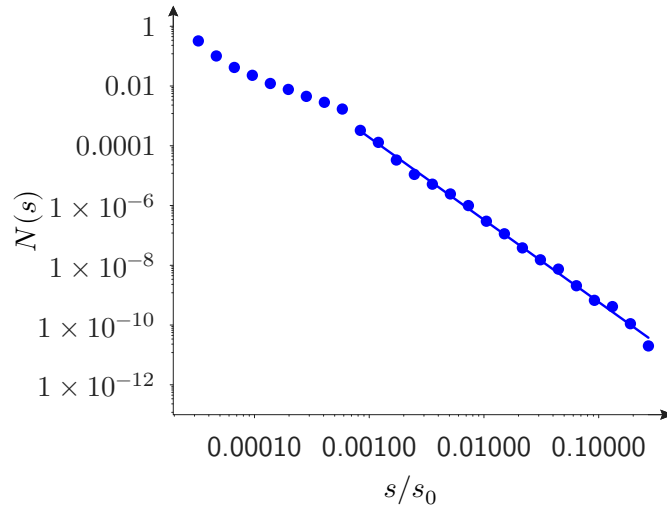


FIGURE 3.11. – Distribution cumulée de taille de fragments N en fonction de la taille normalisée par la taille du disque pour $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 0.39$.

noeuds est de l'ordre de grandeur de la taille de l'horizon utilisée ici qui est de 28 noeuds. Les fragments possédant une aire en dessous de ce nombre ne sont pas assez résolus. Il est intéressant de noter que cette distribution en taille suit une loi de puissance, comme cela a déjà été observé dans plusieurs article expérimentaux [136, 137, 138].

L'exposant τ de cette loi de puissance croît avec la vitesse de l'impacteur en suivant une loi logarithmique de la forme $\tau = a \ln(V_p) + b$ comme on peut le voir sur la figure 3.12. Cette augmentation traduit un resserrement de la distribution, en l'occurrence ici un resserrement vers les plus petits fragments. Ici le paramètre a de la loi logarithmique est égal à 0.85, ce qui est proche

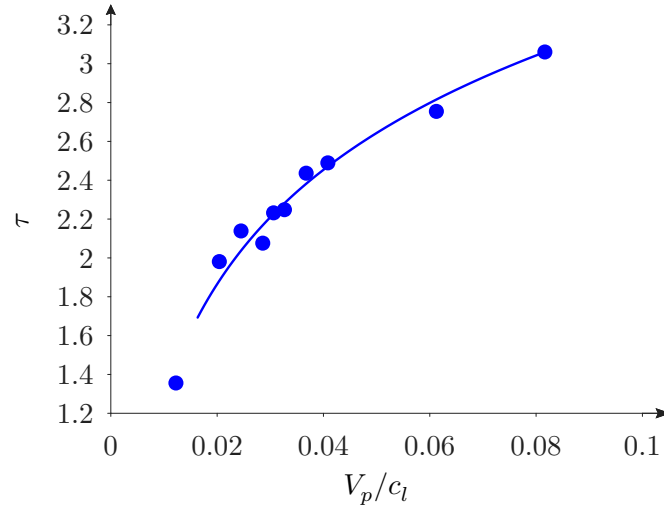


FIGURE 3.12. – Évolution de l'exposant τ de la loi de puissance de la distribution N en fonction de la vitesse de l'impacteur.

de la valeur de 0.7 obtenue par Sator *et al.* [62] pour des solides cristallins sans défaut composés des molécules interagissant via un potentiel de type Lennard-Jones.

3.1.3. Variation de la vitesse de l'impacteur à énergie constante

Paramètres de l'étude

L'influence de la vitesse de déformation imposée par le plateau est étudiée ici. Plusieurs impacts sont réalisés sur les mêmes 20 particules à 13 vitesses initiales d'impacteur V_p différentes. À chaque fois, l'énergie cinétique initiale de l'impacteur $\mathcal{E}_p^i/\mathcal{E}_0 = 12.35$ est gardée constante en modifiant sa masse M_p de la manière suivante :

$$M_p = \frac{2\mathcal{E}_p^i}{V_p^2} \quad (3.7)$$

Les différentes vitesses initiales du plateau V_p normalisées par la célérité des ondes élastiques longitudinales c_ℓ sont récapitulées dans le tableau 3.2. c_ℓ est de 250 à 12 fois plus rapide que la vitesse de l'impacteur utilisée ce qui permet de passer d'un régime proche du quasi-statique à un régime plus dynamique.

V_p/c_ℓ	0.082	0.073	0.065	0.058	0.049	0.041	0.029	0.024	0.02	0.014	0.011	0.008	0.004
--------------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	------	-------	-------	-------	-------

TABLE 3.2. – Vitesses de l'impacteur normalisées par la célérité de l'onde élastique.

Transmission de l'énergie

La figure 3.13 montre la variation de Tr en fonction de la vitesse de l'impacteur. L'énergie transmise à la particule est maximale pour une vitesse normalisée du plateau comprise entre 0.02 et 0.029. Ce comportement est très différent de la partie précédente où dans le cas où l'énergie cinétique de l'impacteur augmentait mais où la masse restait constante, Tr était quasi constant (égal 0.76 ± 0.01). On peut noter que pour les plus grandes valeurs de la masse, la vitesse est très faible

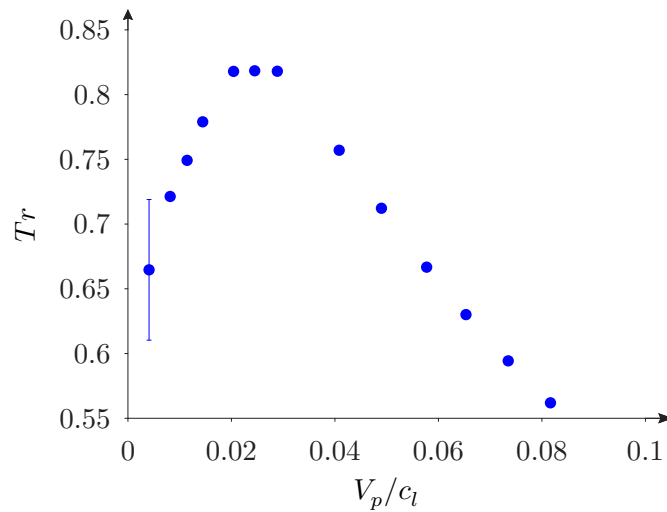


FIGURE 3.13. – Évolution du coefficient de transmission en fonction de la vitesse de l'impacteur.

et l'effet dynamique est moins marqué. On verra par la suite (figure 3.17b) que l'endommagement est faible dans ce cas. On notera également que pour cette valeur la sensibilité à la position des défauts devient importante ce qui explique la valeur élevée de l'écart-type en ce point ; pour les autres valeurs des vitesses cet écart-type est négligeable.

Décomposition de l'énergie transmise

L'énergie restante dans la particule à la fin de la fracturation est représentée sur la figure 3.14a. L'énergie restante décroît avec la vitesse, ce qui montre que l'on dissipe de plus en plus d'énergie

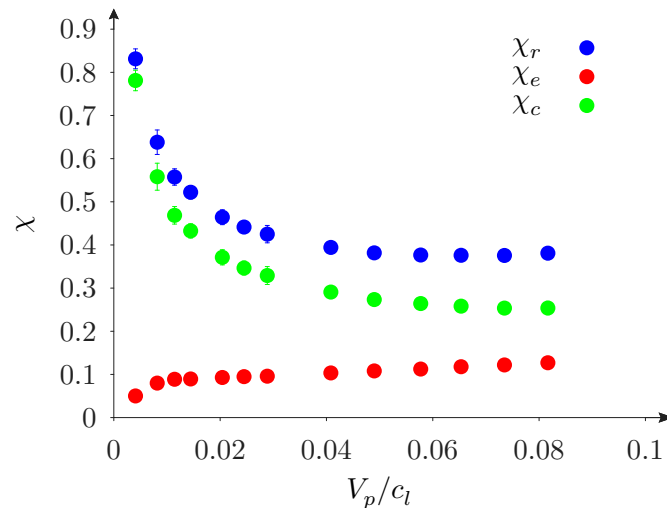


FIGURE 3.14. – Évolution des coefficients χ en fonction de la vitesse de l'impacteur.

dans la rupture. Aux faibles valeurs de la vitesse, χ_c est grand devant χ_e . Ceci peut paraître contre-intuitif au premier abord mais est dû au fait que, comme dans l'essai quasi-statique, la particule stocke l'énergie élastique et la restitue brutalement lors de la rupture en éjectant les fragments.

Au contraire dans un essai très dynamique, l'énergie semble être consommée directement dans la fissuration qui pulvérise le grain.

Les évolutions du rendement η en fonction de l'énergie transmise à la particule et de la vitesse du plateau sont représentées respectivement sur les figures 3.15a et b. On peut voir que pour une même énergie transmise, le rendement peut être différent si la vitesse d'impacteur est différente (figure 3.15a). Ce rendement semble saturer pour les grandes vitesses V_p vers une valeur d'environ 0.61 (figure 3.15b).

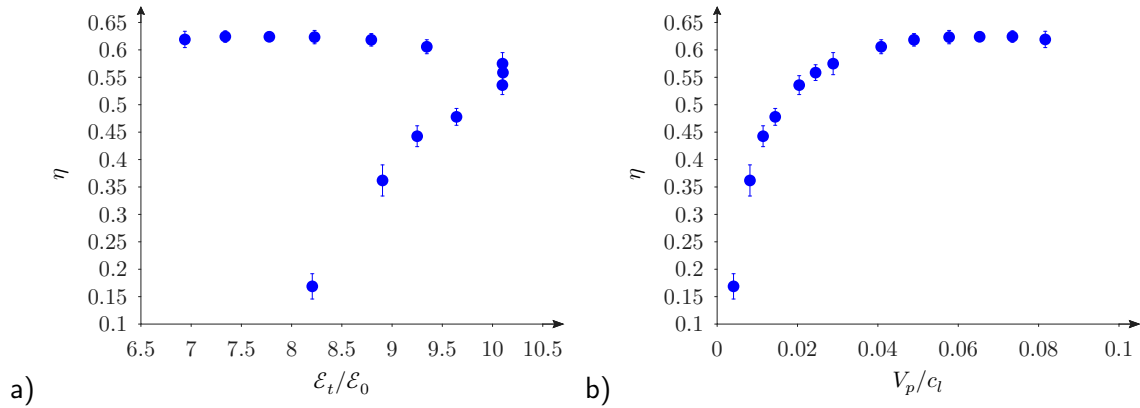


FIGURE 3.15. – Évolution de η en fonction de l'énergie transmise (a) et de la vitesse de l'impacteur (b).

Le rendement de l'opération de fracturation η' (figure 3.16) est lui aussi dépendant de la vitesse de l'impacteur et combine à la fois l'efficacité avec laquelle l'énergie est transmise et l'effet de la vitesse sur la fracturation de la particule. Ce rendement est maximum pour une vitesse $V_p/c_l = 0.029$.

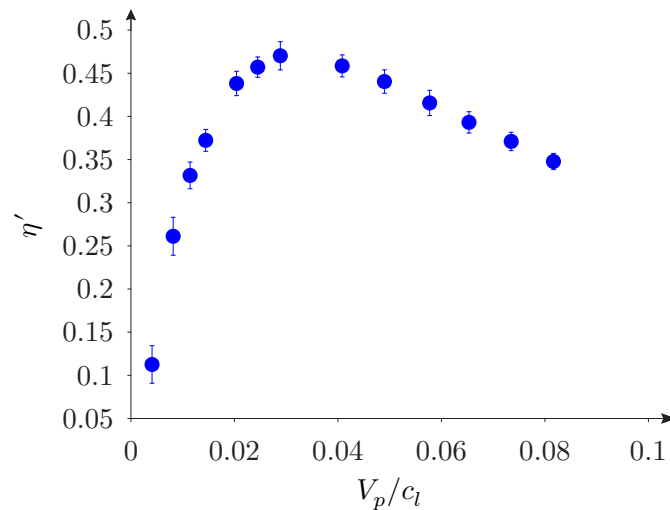


FIGURE 3.16. – Évolution de η' en fonction de la vitesse de l'impacteur.

Fragmentation des particules

L'énergie transmise est utilisée pour propager des fissures à l'intérieur de la particule. Sur la figure 3.17a l'endommagement total de la particule est tracé en fonction de l'énergie transmise. De

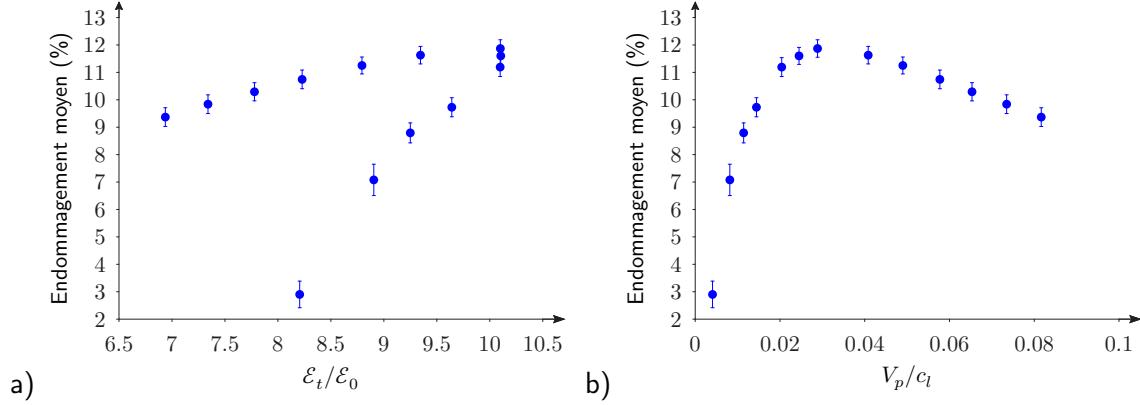


FIGURE 3.17. – Évolution de l'endommagement des particules en fonction de l'énergie transmise à la particule (a) et en fonction de la vitesse de l'impacteur (b).

même que précédemment, la vitesse de l'impacteur joue un rôle prépondérant sur l'endommagement (figure 3.17b) qui est maximum pour une vitesse donnée ($V_p/c_l = 0.029$).

La figure 3.18 présente, pour une particule, des exemples de fracturation en fonction de la vitesse. Pour la vitesse la plus faible, le faciès de rupture est similaire au cas quasi-statique (section 2.2.3) avec une fissure principale centrale créant les deux plus gros fragments. Le reste des fragments se situe au niveau des contacts avec les plateaux. En augmentant la vitesse jusqu'à une certaine valeur, le nombre de fragments augmente; la répartition des fragments se faisant à peu près uniformément dans la particule. Puis l'augmentation de vitesse entraîne une localisation de petits fragments près de la zone d'impact.

Sur la figure 3.19a l'évolution du nombre moyen de fragments est tracée en fonction du coefficient de transmission. Pour des vitesses inférieures à $V_p/c_l = 0.041$ (figure 3.19b) le nombre moyen de fragments dans la particule croît avec la vitesse. Ceci peut se voir également avec l'évolution de la taille moyenne de fragments (figure 3.20) qui après avoir diminué, augmente légèrement pour $V_p/c_l > 0.041$.

De même que dans le cas où l'énergie d'impact change (section 3.1.2) on a tracé les exposants τ des distributions en taille des fragments (figure 3.21). Comme dans le cas précédent, τ augmente avec la vitesse de l'impacteur en retirant la vitesse la plus faible dont la courbe granulométrique n'était pas assez bien définie. Le coefficient a de l'interpolation logarithmique change par rapport à la section 3.1.2 en prenant la valeur de 0.31.

En conclusion, dans cette étude nous avons abordé les effets de la dynamique sur la rupture de particules. Ces effets peuvent être très présents dans les broyeurs et joue un rôle important, et encore mal compris, sur l'efficacité du procédé.

On a remarqué, dans le cas d'un impact unique, que l'augmentation de l'énergie d'impact influence fortement la granulométrie des fragments. Plus l'énergie augmente, plus la taille des fragments diminue et la distribution de fragments s'homogénéise.

La vitesse d'application des contraintes est responsable de la différence observable entre une fracturation dynamique et une fracturation statique. Comme on a pu le voir, la fracturation dynamique peut localiser les fragments près de la zone d'impact à cause de la concentration de contrainte

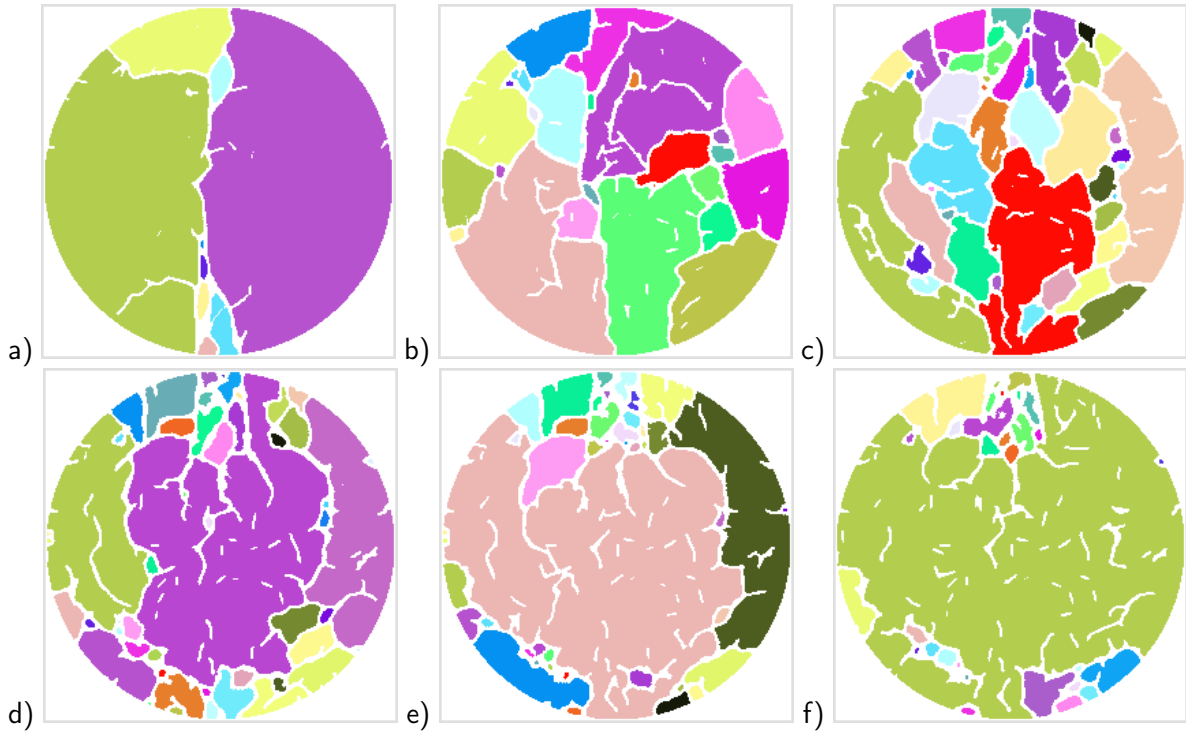


FIGURE 3.18. – Exemple de fragments après fracturation d'une particule pour différentes vitesses d'impacteur. a) $V_p/c_l = 0.004$, b) $V_p/c_l = 0.011$ c) $V_p/c_l = 0.024$ d) $V_p/c_l = 0.041$ e) $V_p/c_l = 0.058$ f) $V_p/c_l = 0.082$

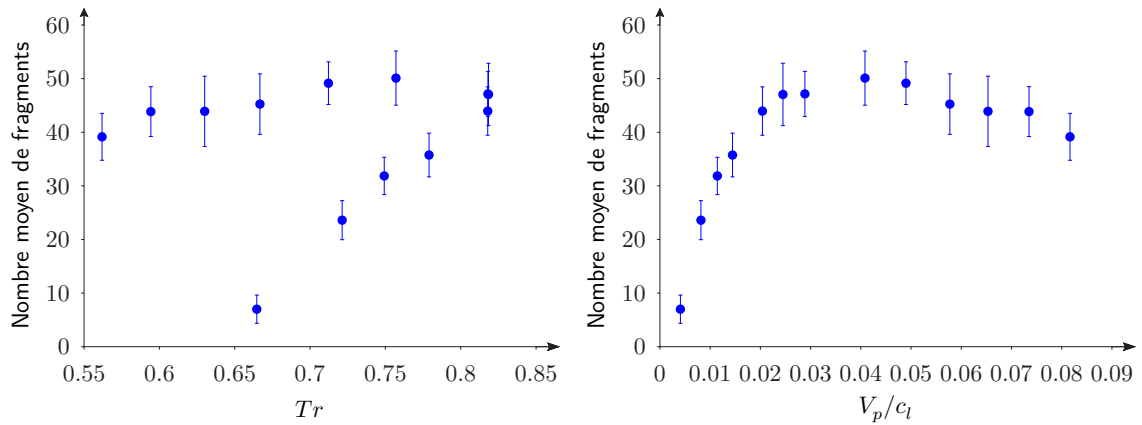


FIGURE 3.19. – Nombre moyen de fragments en fonction du coefficient de transmission (à gauche) et de la vitesse de l'impacteur (à droite).

à cet endroit. Au contraire avec une vitesse faible, la particule est sollicitée dans son ensemble ce qui conduit à une fracturation en deux fragments.

La granulométrie des fragments suit une loi de puissance dont l'exposant augmente avec la vitesse de l'impacteur en suivant une loi logarithmique. Cette loi logarithmique n'a pas le même exposant si l'on fixe la masse de l'impacteur ou son énergie cinétique.

Ces premières investigations pourraient être approfondies pour mieux comprendre les phéno-

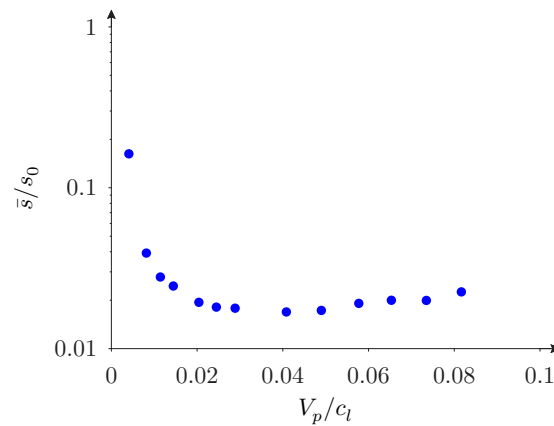


FIGURE 3.20. – Surface moyenne des fragments normalisée par la surface de la particule.

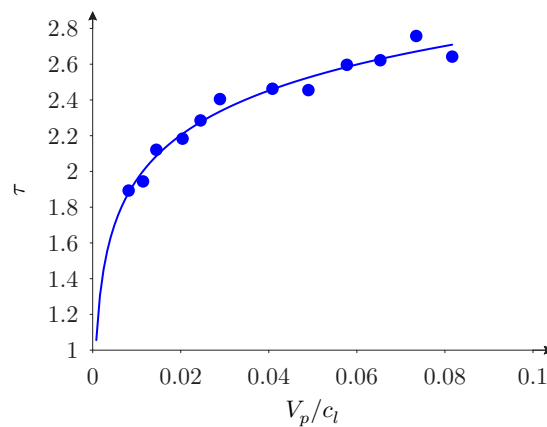


FIGURE 3.21. – Évolution de l'exposant τ de la loi de puissance de la distribution N en fonction de la vitesse de l'impacteur.

mènes de fracturations dynamiques à l'oeuvre lors de l'impact d'une particule. Il serait intéressant de changer les propriétés mécaniques du matériau ainsi que la distribution de défauts pour observer leur effets sur la granulométrie des fragments. De plus, l'effet du frottement entre les fragments pourrait être investigué. Enfin, il serait également possible d'observer l'évolution de l'endommagement dans une particule soumise à des impacts successifs.

3.2. Effet de la forme des particules

Jusqu'ici, les simulations numériques n'ont été appliquées qu'à des disques. Dans la réalité les particules possèdent des formes très diverses. L'effet de la forme des particules sur la fracturation reste mal comprise. Il est clair que la transmission des contraintes est différente dans ces particules par rapport à des disques ; rendant les modèles théoriques de la section 1.2.3 difficilement transposables.

Cette partie présente des travaux préliminaires, réalisés sur la fracturation par impact de particules aux formes aléatoires. L'objectif est d'observer dans quelle mesure la forme de la particule influence la fracturation et la distribution des fragments.

3.2.1. Géométrie des particules

Dans cette section, on présente le protocole de génération aléatoire de particules de forme complexe. Ce protocole s'inspire de celui utilisé dans Saint-Cyr *et al.* [101] qui consiste à générer des particules avec un écart à la sphéricité maximum contrôlé. Dans notre cas, les particules sont générées aléatoirement en déterminant leurs sommets p_i comme présenté à la figure 3.22. Les coordonnées polaires (R_i, θ_i) de ces sommets sont choisies de telle sorte que $R_i \in [R_{min}, R_{max}]$ et $\theta_i \in [\theta_{min}, \theta_{max}]$ avec R_{min} , R_{max} , θ_{min} et θ_{max} fixés préalablement.

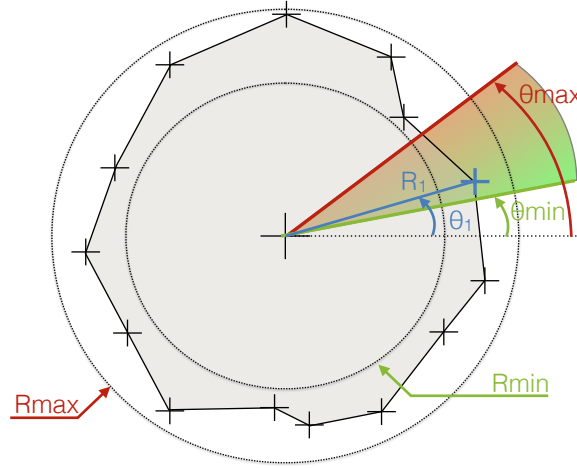


FIGURE 3.22. – Schéma du principe de construction des particules.

La particule doit être ensuite positionnée sur un plateau. Pour éviter des configurations non stables, on utilise un algorithme dynamique de type DEM et on laisse la particule trouver sa position d'équilibre dans le champ de pesanteur. Elle est ensuite discrétisée sur un maillage régulier avec un horizon $h/\delta x = 4$.

3.2.2. Description de l'essai

Contrairement à ce qui a été fait précédemment et décrit dans la section 2.2.3 on n'introduira pas ici de défauts sous la forme d'inclusions 1D. Dans le cas présent, on a choisi une distribution d'élongation critique des liens du maillage (on notera que comme on utilise une loi linéaire élastique pour les liaisons, un changement d'élongation critique est équivalent à changer la contrainte critique). Une loi de Weibull est choisie pour modéliser cette population de défauts qui peut être ajustée facilement à travers le module de la distribution. Historiquement, ce mode d'introduction des défauts a été implémenté avant le modèle de défauts sous forme d'inclusion utilisé dans le chapitre 2 et dans la section 3.1. Même s'il permet d'introduire un désordre suffisant pour obtenir une variabilité des contraintes à la rupture des grains, il a été abandonné car il ne permet pas de concentrer les contraintes comme le ferait une micro-fissure. Les ruptures obtenues, notamment aux faibles énergies d'impact (proche du quasi-statique) présentent des artéfacts similaires à ceux rencontrés à la section 2.2.2.

Les particules sont impactées par un plateau de masse M_p et de vitesse initiale V_p . Le contact entre la particule et les plateaux est modélisé de la même manière que dans la section précédente (section 3.1.2). Ici l'impacteur ne rebondit pas forcément et il peut y avoir plusieurs chocs consé-

cutifs. Pour éviter cela, sa vitesse est annulée lorsque la force sur le plateau est inférieure à 15% du maximum atteint lors du premier impact (figure 3.23).

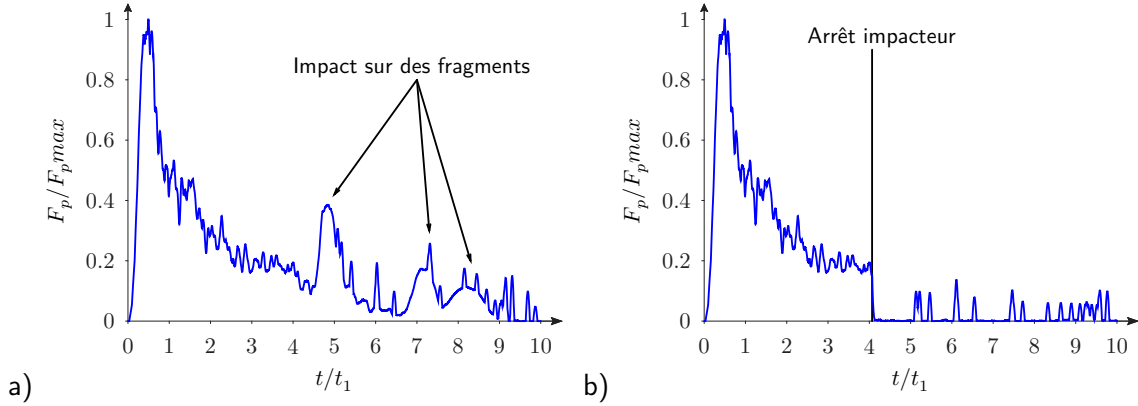


FIGURE 3.23. – Évolution de la force subie par le plateau supérieur au cours du temps sans arrêt (a) et avec arrêt du plateau.

La durée de simulation est fixée à $10 t_1$ où t_1 est le temps nécessaire pour que l'onde élastique parcoure la hauteur de la particule (section 3.1.2). Cette durée permet de laisser le temps aux fissures de se propager complètement. Pour observer les effets de la propagation dynamique des ondes élastiques dans la particule, aucune viscosité globale n'est appliquée. La même méthode que dans le chapitre précédent (section 2.2.4) est ensuite utilisée pour identifier les fragments et les fissures créés par l'impact de la particule.

Paramètres de l'étude

On s'intéresse à l'effet de la variation de l'énergie initiale de l'impacteur. Pour chaque valeur d'énergie, plusieurs impacts sont réalisés sur 30 particules différentes générées à l'aide de la méthode décrite dans la section 3.2.1 en prenant comme paramètres : $R_{max} = 1$, $R_{min} = 0.6$, $\theta_{min} = \pi/10$ et $\theta_{max} = 2\pi/10$. Des exemples de profils de particules générées sont visibles sur la figure 3.24.

Vingt vitesses d'impacteur V_p différentes sont utilisées en gardant M_p fixe. L'énergie cinétique initiale $\mathcal{E}_p^i$ de l'impacteur varie de $\mathcal{E}_p^i/\mathcal{E}_0 = 2$ à $\mathcal{E}_p^i/\mathcal{E}_0 = 3360$ et la vitesse initiale V_p de l'impacteur varie de $V_p/c_\ell = 0.0025$ à $V_p/c_\ell = 0.1$ avec $\mathcal{E}_0$ l'énergie pour fractionner en deux un disque de diamètre unitaire et c_ℓ la célérité des ondes élastiques dans le milieu (cf. section 3.1.2).

3.2.3. Résultats

Énergie d'impact

L'énergie transmise par l'impacteur est obtenue en faisant la différence entre l'énergie initiale $\mathcal{E}_p^i$ du plateau et son énergie juste avant son arrêt. Tout comme dans la partie précédente, on définit le coefficient de transmission comme le rapport entre l'énergie cinétique transmise à la particule et l'énergie initiale du plateau. Sur la figure 3.25 on peut voir l'évolution de ce coefficient en fonction de l'énergie initiale de l'impacteur. On constate qu'il augmente rapidement puis sature vers une valeur égale à 0.9.

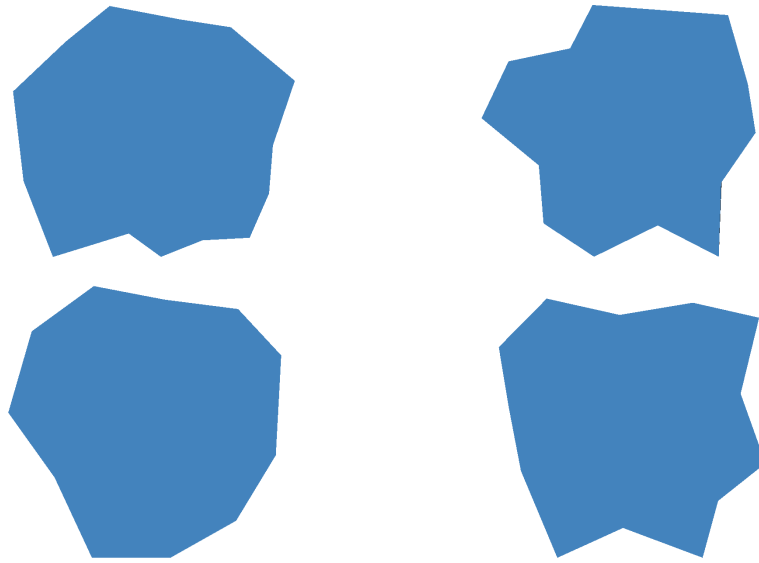


FIGURE 3.24. – Exemple de particules utilisées.

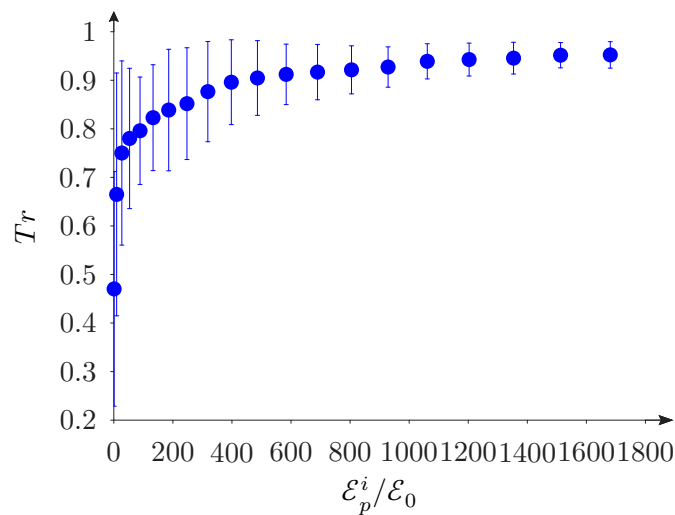


FIGURE 3.25. – Évolution du coefficient de transmission en fonction de l'énergie cinétique initiale de l'impacteur.

Endommagement des particules

La figure 3.26a montre l'évolution de l'endommagement des particules en fin de simulation en fonction de l'énergie transmise. L'endommagement augmente fortement avec la vitesse de l'impacteur puis sature vers une valeur moyenne de 35%. À partir d'un certain seuil, l'énergie de l'impacteur semble devenir inefficace pour créer plus de fissures. On peut voir sur la figure 3.26b que deux groupes semblent se distinguer au fur et à mesure que l'énergie augmente : des particules avec un endommagement final plus faible qui continue à augmenter et des particules avec un fort endommagement qui sature.

Ce phénomène peut s'expliquer par les différences de formes entre les particules et plus particu-

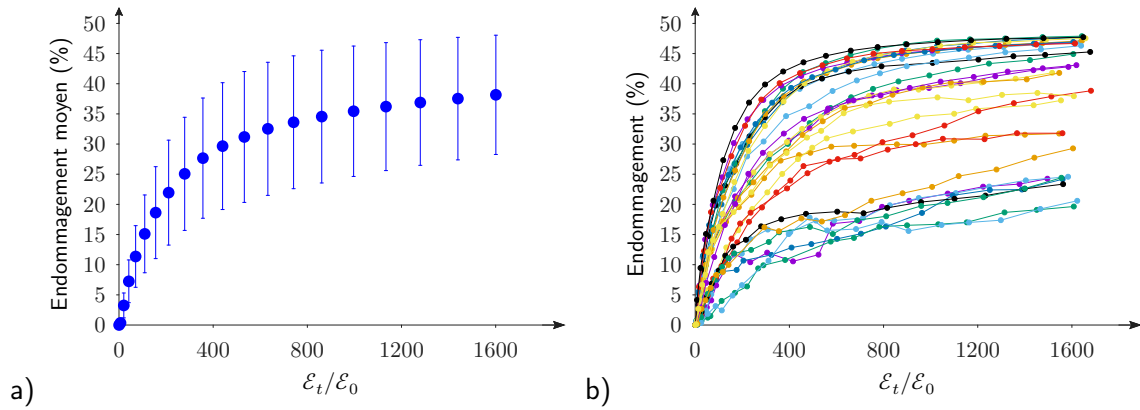


FIGURE 3.26. – Endommagement moyen (a) et pour chacune des particules (b) en fonction de l'énergie transmise par l'impacteur.

lièrement par le profil de la particule au niveau du contact avec le plateau impacteur. Les particules présentant le plus fort endommagement sont celles qui ont un profil "plat" offrant une grande surface de contact avec l'impacteur tandis que les particules qui ont l'endommagement le plus faible ont une forme "en pointe".

Pour préciser l'effet des singularités géométriques, on peut mesurer la hauteur h qui sépare le sommet de la particule au deuxième point voisin le plus haut situé directement. Une hauteur faible signifie que la particule est plutôt plate au niveau du contact et une hauteur élevée montre qu'elle est pointue. Sur la figure 3.27 on peut observer l'endommagement des particules en fonction de leur hauteur h pour une vitesse d'impacteur donnée. La tendance globale est claire et montre que plus h

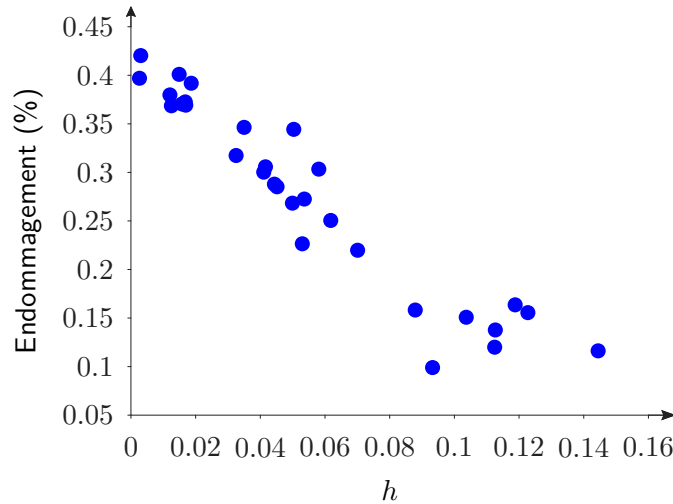


FIGURE 3.27. – Évolution de l'endommagement des particules en fonction de la hauteur h pour une vitesse d'impacteur donnée.

est faible et plus l'endommagement est important, confirmant les observations faites visuellement (figure 3.28). On note néanmoins une certaine dispersion des données. Ils correspondent souvent à des cas où le deuxième point le plus haut se trouve très éloigné sur l'axe horizontale du sommet de la particule. Cet éloignement provoque un aplatissement de la pointe bien que h peut être grand.

Ce critère décrivant le caractère "pointue" d'une particule pourrait être amélioré pour palier à ce problème.

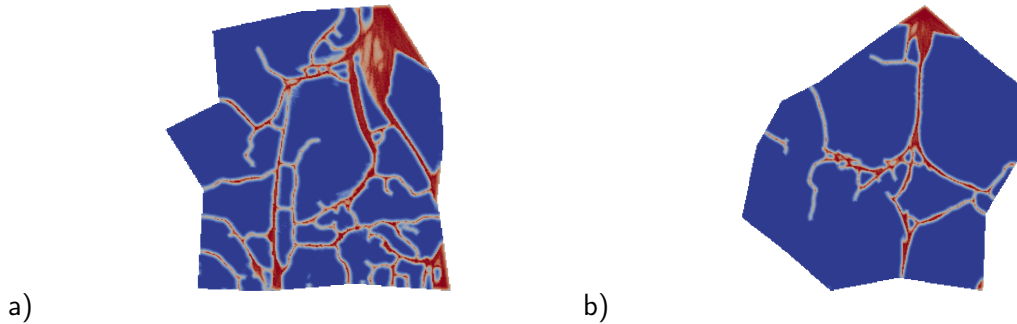


FIGURE 3.28. – Champ d'endommagement pour une particule présentant une face (a) et une pointe (b) à l'impacteur.

Aux énergies d'impact importantes, les pointes des particules semblent jouer un rôle de "fusible" en encaissant la majeure partie de l'endommagement et en protégeant le reste de la particule.

Taille des fragments

La figure 3.29a montre que le nombre moyen de fragments dans les particules augmente avec l'énergie transmise puis se stabilise pour une valeur de l'ordre de 80 fragments. Cette stabilisation se retrouve également dans la taille moyenne des fragments (figure 3.30a) et s'explique par la saturation de l'endommagement (voir section précédente).

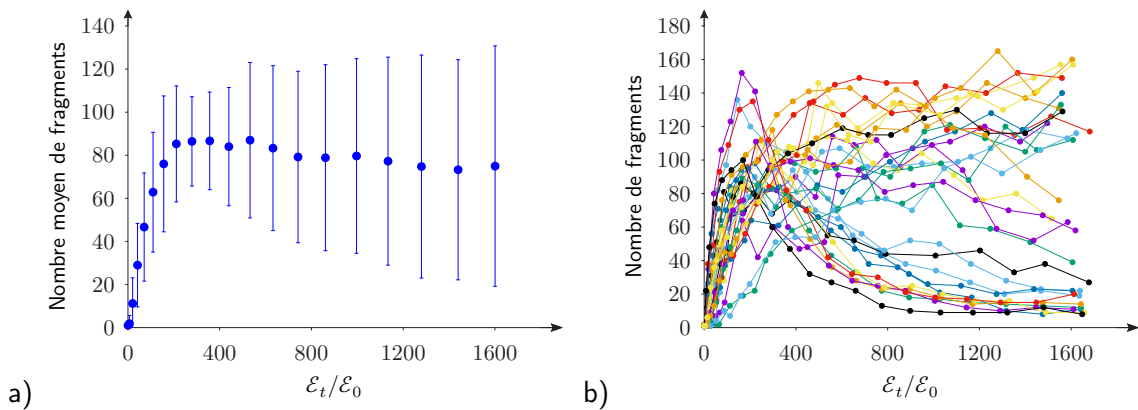


FIGURE 3.29. – Nombre de fragments moyen (a) et par particules (b) pour les différentes énergies transmises par l'impacteur.

Néanmoins tout comme pour l'évolution de l'endommagement, une distinction peut être faite entre les particules présentant une face et celle présentant un sommet à l'impacteur. Sur la figure 3.29b on peut observer distinctement des particules qui voient leur nombre de fragments diminuer fortement et se stabiliser à une vingtaine de fragments. Ces particules correspondent à celles présentant une face à l'impacteur. Étant fortement endommagée, une grande partie des noeuds possède un endommagement supérieur à la valeur seuil de l'algorithme de peinture utilisé pour identifier les fragments. De nombreux fragments disparaissent alors. Ceci montre qu'à partir d'une

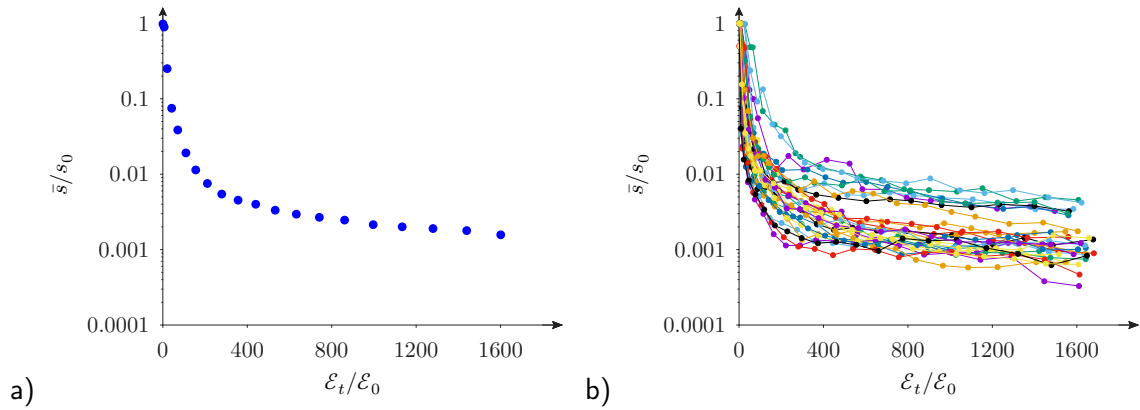


FIGURE 3.30. – Taille de fragments moyenne (a) et par particule (b) pour les différentes énergies transmises par l'impacteur.

certaine valeur d'endommagement, l'identification des fragments n'est plus possible. Des études complémentaires devront être faites pour déterminer si une augmentation de la résolution peut pallier ce problème.

La taille moyenne des fragments des particules "plates" est plus grande pour des énergies élevées (figure 3.30b). Cet artéfact, plus marqué aux fortes énergies, est imputable au fait que dans ce cas de nombreux fragments sont sous le seuil de détection de l'algorithme de peinture.

La figure 3.31 montre, pour toutes les simulations, la variation de la taille moyenne des fragments en fonction de l'endommagement moyen des particules. Cette courbe présente deux pentes et on constate que l'évolution de la taille moyenne des fragments ne semble dépendre que de l'endommagement.

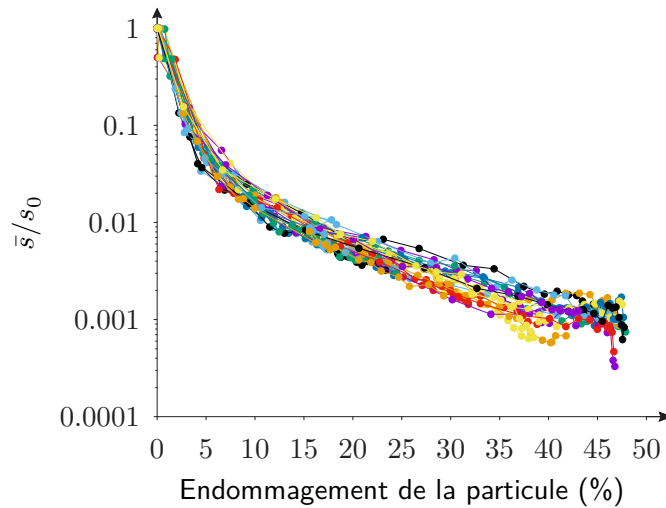


FIGURE 3.31. – Taille moyenne des fragments en fonction de l'endommagement de la particule.

En conclusion, cette étude nous a permis d'observer l'effet de la forme des particules sur l'endommagement créé par l'impact. Les particules qui présentent une pointe à l'impacteur sont moins endommagées que les autres. La pointe joue alors un rôle de fusible en protégeant le reste de la particule. La moyenne et le nombre de fragments s'en trouvent alors modifiés. Néanmoins, il

semble que la taille moyenne des fragments soit plus liée à l'endommagement de la particule qu'à sa forme initiale. L'effet fusible des pointes observé ici est à rapprocher des modes de fracturations par "écaillage" observés dans les broyeurs ou des effets d'usure par attrition.

Dans des travaux futurs, il est envisagé de modifier les paramètres de l'algorithme générant les particules pour tester des formes plus diverses. De plus, la fracturation des fragments nouvellement créés permettrait d'étudier l'évolution de la forme de particules au cours d'impacts successifs.

Conclusion

Les deux études présentées dans ce chapitre nous ont permis d'observer différents effets liés à la dynamique sur la fracturation des particules. Tout d'abord nous avons vu que l'endommagement de la particule croît avec l'énergie de l'impact tandis que la taille des fragments décroît. La vitesse de l'impact joue également un rôle important dans la transition statique/dynamique et influe fortement sur la granulométrie des fragments créés. De plus, des résultats expérimentaux et numériques de la littérature semblent en bon accord avec nos résultats concernant la distribution de fragments en loi de puissance.

Par ailleurs, l'effet de la forme des particules sur la rupture a été précisé pour des énergies d'impact variées. Un effet de "fusible" de la rupture des pointes a été mis en évidence, limitant dans certains cas le niveau d'endommagement. Néanmoins, nous n'avons pas pu observer d'effet direct de la forme des particules sur la distribution des fragments après impact.

Bien que relativement préliminaires, ces résultats illustrent bien les potentialités (et les limites) de la méthode numérique présentée ici. De futurs travaux pourront, par exemple, porter sur les paramètres influençant l'exposant de la distribution granulométrique de fragments ou sur une étude plus poussée de la fracturation de particules aux formes complexes; notamment en intégrant le modèle de défaut sous forme de micro-fissures. Un point à étudier pourrait aussi être l'effet de l'orientation de la sollicitation d'impact. Ceci permettrait peut-être de mieux mettre en évidence des modes de rupture souvent observés dans des broyeurs tels que l'écaillage, l'attrition. . . Finalement, il serait intéressant de faire un lien avec la théorie des bilans de population classiquement utilisée dans l'étude du broyage. Ceci pourrait être fait par exemple en étudiant la rupture successive de fragments créés à chaque impact.

4. Cinétiques de broyage du quartz dans un broyeur à impact

Sommaire

Introduction	104
4.1. Matériel & Méthodes	104
4.1.1. Matière première	104
4.1.2. Protocole de broyage	104
4.1.3. Caractérisation de la granulométrie	106
4.1.4. Mesure de la surface spécifique par BET	108
4.1.5. Bilan Energétique	108
4.2. Cinétiques de broyage	109
4.2.1. Evolution de la granulométrie	110
4.2.2. Evolution de la surface spécifique	111
4.2.3. Concordance avec les modèles de Kick, Bond et Rittinger	114
4.2.4. Modification du modèle Rittinger	115
4.3. Effet de l'agglomération sur le broyage	118
4.3.1. Mise en évidence de l'agglomération	118
4.3.2. Effet de colmatage du broyeur	119
Conclusion	121

Introduction

Le broyage d'une matière première met en jeu l'utilisation d'un broyeur qui sollicite mécaniquement les grains afin de les fracturer. Les caractéristiques des poudres produites dépendent à la fois des contraintes mécaniques générées dans le broyeur, des énergies mises en jeux et des propriétés physiques du matériau.

Dans la plupart des broyeurs, les sollicitations sont multiples et hétérogènes (cf. section 1.4) et cela reste hors de portée d'établir une prédiction directe et générale de l'évolution de la cinétique de broyage à partir de la connaissance des sollicitations à l'échelle locale, des énergies et des propriétés du matériau. Néanmoins, il reste particulièrement intéressant de préciser le comportement au broyage pour des broyeurs "simples", mettant en jeu des sollicitations relativement bien identifiées. C'est le cas du broyeur vibrant MM400 à impact que l'on va utiliser dans les études qui vont suivre.

Dans ce chapitre, on étudie l'effet d'une sollicitation mécanique isolée, l'impact frontal, sur un lit de matière première quasi-homogène – le quartz – et de granulométrie initiale quasi-monomodale. On cherche à identifier les différents phénomènes mis en jeu et à étudier leurs effets. Dans cette étude, nous avons fait varier l'intensité énergétique des impacts et nous avons étudié son effet sur le broyage en suivant l'évolution des populations de tailles de grains, l'augmentation de la finesse du produit et son agglomération. Le lien entre l'énergie des impacts et l'augmentation de la surface a également été investigué en testant son adéquation avec les principales lois énergétiques de broyage à savoir les lois de Bond, Kick et Rittinger (cf. section 1.3.3).

4.1. Matériel & Méthodes

Dans cette section Matériel & Méthodes on donne quelques éléments concernant la composition de la matière première utilisée, et on explicite le protocole de broyage ainsi que les mesures effectuées. Ces mesures visent à établir un lien entre l'évolution de la surface spécifique et l'énergie consommée pour broyer.

4.1.1. Matière première

La matière première sélectionnée pour cette étude est du sable composé à 98.60% de silice (fourni par Euromortier) destiné à diverses applications comme le sablage ou la filtration. Son indice de Mohs compris entre 6 et 7 (sur un maximum de 10) en fait un matériau considéré comme ayant une dureté importante qui peut user de manière significative les cuves et parties mobiles de broyeurs ou les média broyant. Sa masse volumique apparente est comprise entre 1400 et 1600 kg.m⁻³ (donnée fournisseur). La densité vraie mesurée au pycnomètre à hélium est de 2710±5 kg m⁻³. La composition chimique, donnée par le fournisseur, est détaillée dans le tableau 4.1.

La granulométrie initiale du sable fourni est comprise entre 0.5 et 1.4 mm. Dans le but de mettre en lumière les nouvelles populations de particules créées durant le broyage, la granulométrie a été centrée (resserrée) sur la fraction comprise entre 0.8 et 1 mm par tamisage grâce à une tamiseuse rotative Rotex. Cette fraction a ensuite été séchée à l'étuve à 65 °C pendant 24 heures pour éliminer toute eau résiduelle.

4.1.2. Protocole de broyage

Le broyeur choisi pour cette étude est un broyeur vibrant MM400 commercialisé par Retsch®. Il est composé de deux bols (figure 4.1) au sein desquels est introduit une bille en acier en contact

Elément	Fraction massique
Fe ₂ O ₃	0.04%
TiO ₂	0.05%
CaO	0.10%
K ₂ O	0.03%
SiO ₂	98.60%
Al ₂ O ₃	0.07%

TABLE 4.1. – Composition chimique du sable utilisé.

Masse de produit (g)	Durée de broyage (min)									
6	0.5	1.5	2.5	4	6	12	16	20	25	29
13	1.5	2.5	5	8	10	14	22	31	43	65
17	1.5	4	6	12	20	30	42	60	74	89
20	2	6	12	16	30	48	60	74	93	111

TABLE 4.2. – Durée de chaque broyage en minutes pour une fréquence de 20 Hz.

direct avec le produit à broyer. Les bols sont mis en mouvement, par une translation horizontale des bras porteurs à une fréquence choisie.

Pour chaque bol, les paramètres influençant le broyage sont la fréquence de vibration, l'amplitude du mouvement de la bille (liée au taux de remplissage en produit des bols), la masse de bille et la durée du broyage¹. La plage de variation des fréquences est comprise entre 3 et 30 Hz. Pour les faibles fréquences, la bille roule sur le produit et pour les fréquences plus élevées elle impacte le produit aux deux extrémités du bol [139].

Dans notre étude la plage de fréquence investiguée est comprise entre 15 et 25 Hz et nous ferons l'hypothèse que la fréquence est assez élevée pour que la bille soit en régime d'impact. Les bols utilisés ont une contenance de 50 mL. Le media broyant consiste en une seule bille en acier de 25 mm afin de maximiser l'énergie d'impact et de diminuer l'influence du cisaillement entre la bille et la paroi du bol.

Deux paramètres ont été étudiés de manière indépendante : le taux de remplissage et la fréquence de vibration du broyeur. Une première série de broyages a été réalisée à 20 Hz pour différentes masses (de 6 à 20 g) (tableau 4.2) et une seconde série avec un taux de remplissage fixé (masse fixée à 13 g) pour 2 fréquences (15 et 25 Hz) (tableau 4.3).

Pour chaque couple fréquence/masse de produit (f, M) des broyages de différentes durées ont été réalisés afin de balayer une large plage d'énergie totale apportée au produit. Les broyages sont ensuite arrêtés lorsqu'il ne semble plus y avoir de variation de diminution en taille du produit lors des mesures réalisées au granulomètre laser (voir partie 4.1.3).

Fréquence (Hz)	Durée de broyage (min)									
15	2.5	8	13	21	31	52	73	103	129	154
25	1	3	5	7.5	11	19	26	37	46	56

TABLE 4.3. – Durée de chaque broyage en minutes pour une masse de 13 g.

1. On notera qu'il est également possible d'utiliser plusieurs billes de petites tailles.

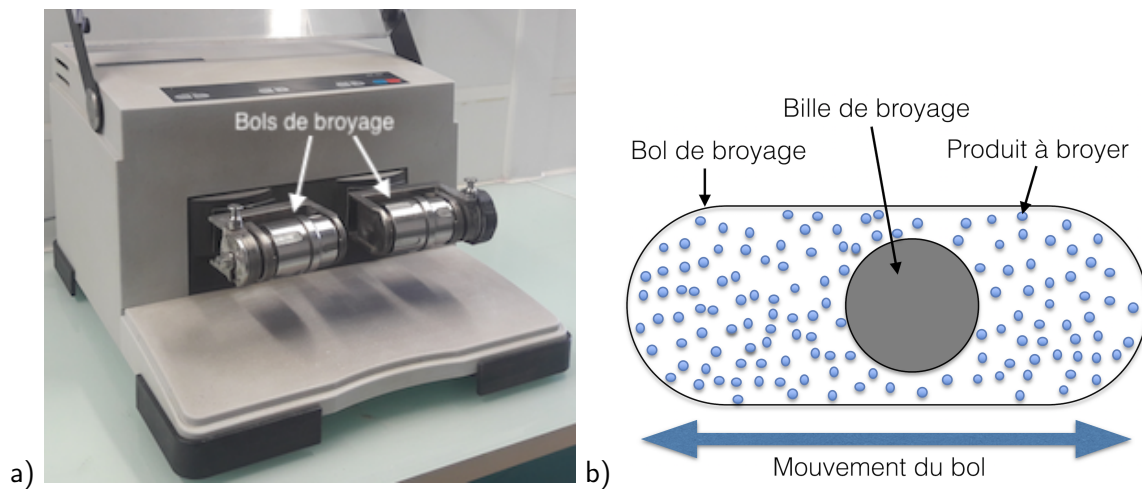


FIGURE 4.1. – Photographie du broyeur MM400 de Retsch® (a) et schéma de l'ensemble bol+bille+produit (b).

4.1.3. Caractérisation de la granulométrie

La distribution granulométrique ou "particle size distribution (PSD)" a été déterminée par diffraction laser en utilisant le granulomètre laser Hydro 2000S² en voie liquide avec de l'éthanol comme solvant. Les indices optiques du quartz étant connus, la méthode de Mie est la plus adaptée, car plus précise que la méthode de Fraunhofer, particulièrement pour les plus fines particules (voir section 1.1.2). La mesure granulométrique en voie liquide permet d'utiliser une plus petite quantité d'échantillon par mesure ce qui limite la perte de volume de poudre en cas de prélèvements successifs au cours du broyage. Ici chaque point de la cinétique correspond à un broyage différent mais dans le chapitre 5 ce ne sera pas forcément le cas et la mesure granulométrique en voie liquide permet alors de garder une masse de produit relativement constante au cours du broyage.

En plus de la distribution granulométrique, la surface spécifique a également été déterminée à l'aide du granulomètre laser. Celle-ci permet de caractériser la finesse de la poudre d'une manière plus globale qu'à partir des percentiles de la PSD en intégrant l'ensemble de la distribution granulométrique. Ceci sera particulièrement utile lors de la comparaison avec le modèle de Rittinger basé sur l'hypothèse que l'énergie de broyage est directement proportionnelle à la surface créée (voir section 1.3.3).

La surface spécifique S_m (exprimée en $\text{m}^2 \text{kg}^{-1}$) est déduite de la PSD suivant l'équation suivante :

$$S_m = \frac{1}{\rho} \sum_i \frac{3\alpha_i}{R_i} \quad (4.1)$$

avec ρ la densité du matériau, i les index des classes divisant l'échelle granulométrique (entre 0.02 et 2000 μm), α_i et R_i respectivement la fraction volumique et le rayon de la particule de la $i^{\text{ème}}$ classe.

En voie liquide, il est possible d'appliquer des ultrasons dans le solvant pour désagglomérer la poudre. Afin de déterminer la durée optimale du traitement par ultrasons, des mesures ont été effectuées avec des durées croissantes (de 0 à 10 min). Les résultats sur un échantillon de sable broyé sont présentés sur la figure 4.2.

2. Malvern Instruments Ltd., United Kingdom

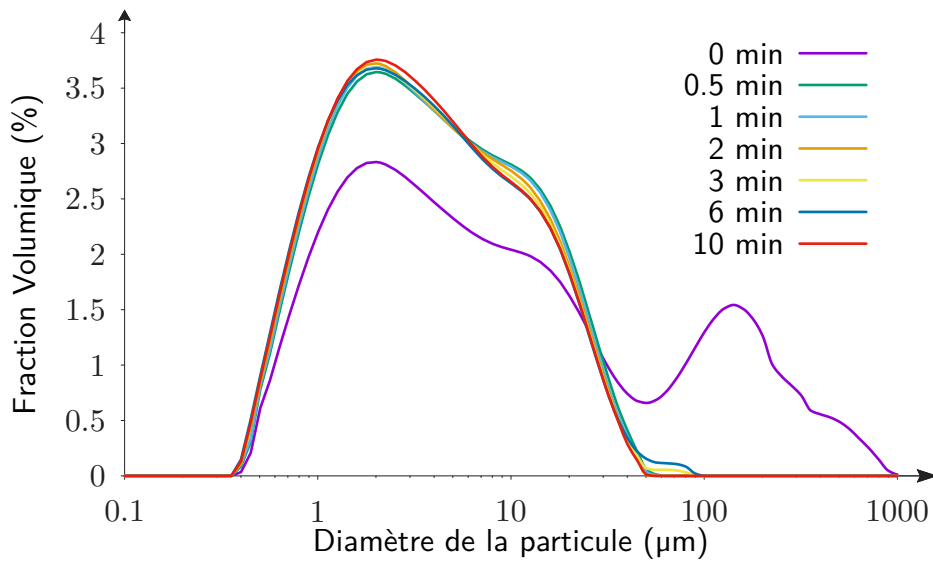


FIGURE 4.2. – Evolution des PSD avec augmentation de la durée d'utilisation des ultrasons.

Lorsque aucun traitement ultrason n'est appliqué, la poudre forme des agglomérats compris entre 100 μm et 1 mm qui disparaissent dès 30 s d'ultrasons. Par la suite, l'augmentation de la durée des ultrasons fait diminuer la population centrée autour de 10 μm au profit du mode de la population centrée autour de 2 μm . Néanmoins dès 30 s d'ultrasons les distributions présentent des percentiles quasi constants (cf. tableau 4.4), la diminution observée pour les valeurs de d_{90} , d_{50} et d_{10} entre un traitement de 30 s et 10 min d'ultrasons, étant respectivement de 7.4, 8.7 et 4.3%.

Durée d'ultrasons (min)	d_{10}	d_{50}	d_{90}
0	1.05	6.24	162.47
0.5	0.93	3.61	17.70
1	0.92	3.51	17.17
2	0.90	3.40	16.72
3	0.89	3.38	16.75
6	0.89	3.36	16.99
10	0.89	3.32	16.39

TABLE 4.4. – Percentiles en fonction de la durée des ultrasons.

Cependant, les plus fines particules jouent un rôle important dans la détermination de la surface spécifique, entraînant une plus grande sensibilité de ce paramètre au traitement par les ultrasons. La figure 4.3 présente l'évolution de la surface spécifique S_m en fonction de la durée des ultrasons. La valeur de la surface spécifique n'évolue quasiment plus au-delà de 3 min.

Par la suite, la voie humide avec application d'ultrasons pendant 3 min est choisie pour mesurer la PSD et la surface spécifique des différentes poudre broyées. La mesure est effectuée après 5 minutes d'attente pour permettre aux éventuelles bulles d'air générées par les ultrasons de s'échapper. Pour chaque échantillon, trois mesures ont été réalisées et les écarts-types de la mesure ont été calculés.

L'agglomération de la poudre a été estimée en mesurant la surface spécifique libérée par l'utilisation des ultrasons. En pratique, avant d'appliquer des ultrasons, une première mesure est

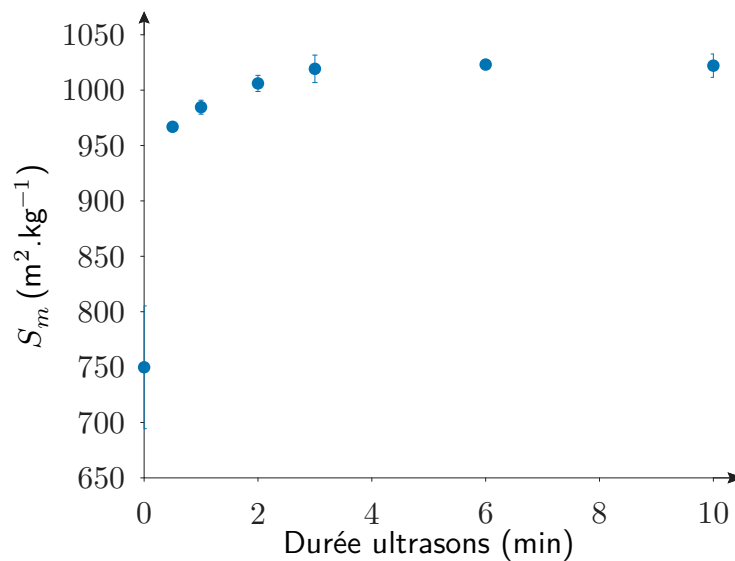


FIGURE 4.3. – Evolution de la surface spécifique en fonction de la durée des ultrasons.

effectuée. Un taux d'agglomération dans le granulomètre est ensuite calculé suivant l'équation :

$$A_g = \frac{S_m - S_{ms}}{S_m} \quad (4.2)$$

avec S_m la surface spécifique avec ultrasons et S_{ms} celle sans.

4.1.4. Mesure de la surface spécifique par BET

La surface spécifique BET des échantillons broyés à 20 Hz a été mesurée par absorption d'azote à l'aide de l'analyseur de porosité et de surface ASAP 2460 de Micrometrics®. Le dégazage a été réalisé à 250°C pendant 48 h à l'aide d'un VacPrep 061 de Micrometrics®, et les échantillons sont refroidis à l'azote liquide pendant la mesure.

La surface spécifique mesurée par BET est habituellement plus élevée que celle mesurée par diffraction laser. En effet, la surface BET prend en compte la forme réelle des particules, leur rugosité et leur porosité de surface³, alors que la détermination de la surface spécifique à partir des mesures du granulomètre laser repose sur l'hypothèse que les particules sont sphériques et lisses.

4.1.5. Bilan Energétique

Mesure de température et de puissance électrique

Pour l'ensemble des broyages réalisés, on effectue une mesure de température du bol et une mesure de puissance électrique consommée.

La température de surface du bol pendant le broyage est déterminée à l'aide d'un thermomètre infrarouge Optris® CT LT20 centré sur le milieu du bol.

La puissance électrique consommée par le MM400 est mesurée à l'aide d'un wattmètre Meteix® PX 120 branché directement sur la source de courant du broyeur. L'énergie électrique consommée par le broyeur est déterminée en multipliant la puissance électrique par le temps de broyage.

3. Cette porosité de surface doit bien évidemment être connectée avec l'extérieur de la particule. En d'autres termes, les pores occluses ne sont pas considérées.

Détermination de l'énergie utile

L'énergie électrique fournie au broyeur est consommée par :

1. La mise en mouvement du bol, de la bille et du produit, ainsi que le frottement éventuel de la bille contre la paroi
2. Les mécanismes physiques liés à la comminution de la poudre :
 - Fracture des grains
 - Fracture des agglomérats
 - Collisions entre grains, frottement entre eux et avec la bille
3. Les dissipations internes au broyeur :
 - Dissipation par effet Joule dans les circuits électriques
 - Dissipation par frottements des pièces mécaniques du broyeur

On définit l'énergie utile comme l'énergie transmise à la poudre pouvant conduire à la rupture de la matière première. Dans le cas du MM400, l'énergie utile est égale à l'énergie cinétique transmise par le broyeur à la bille transmise ensuite au produit.

La trajectoire du bol a été suivie à l'aide d'un capteur de position. Celle-ci s'est avérée suivre une sinusoïde :

$$x_{bol}(t) = A \sin(2\pi ft) \quad (4.3)$$

avec A l'amplitude de mouvement du bol ($7.2 \text{ mm} \pm 50 \mu\text{m}$ mesuré), f la fréquence de broyage et t le temps.

En s'appuyant sur le travail de Karinkanta *et al.* [140], nous avons fait l'hypothèse que le mouvement d'ensemble du bol est rectiligne et que les dissipations d'énergies entre la bille et le bol sont négligeables. Ainsi, la vitesse de la bille avant impact est égale à la vitesse maximale du bol :

$$v_b = 2A\pi f \quad (4.4)$$

et l'énergie cinétique de la bille peut être déterminée :

$$Ec_b = 2m_b(A\pi f)^2 \quad (4.5)$$

avec m_b la masse de la bille.

Si l'on considère que le bol possède une vitesse égale et opposée à la bille au moment de l'impact, alors l'énergie cinétique de l'impact Ec_i est égale à 4 fois celle de la bille. En la divisant par la masse de produit, l'énergie spécifique d'impact Ec_{im} peut être déterminée et est égale à :

$$Ec_{im} = \frac{8m_b}{M}(A\pi f)^2 \quad (4.6)$$

avec M la masse de produit.

L'énergie spécifique de broyage E_m est ensuite calculée en multipliant l'énergie spécifique d'impact par le nombre d'impact pour une durée de broyage donnée :

$$E_m(t) = \frac{16m_b(A\pi)^2 f^3 t}{M} \quad (4.7)$$

4.2. Cinétiques de broyage

Cette section présente les principaux résultats de l'étude. Les cinétiques de broyages sont décrites ainsi que l'évolution de la surface spécifique en cours d'essais. Des modèles phénoménologiques de comminution sont testés et les écarts avec l'expérimentation discutés.

4.2.1. Evolution de la granulométrie

La figure 4.4 présente un exemple d'évolution de la PSD du broyage du sable pour une masse de remplissage de 13 g et une fréquence de 20 Hz. Trois populations apparaissent clairement, respectivement centrées autour de 500, 10 et 1 μm . Il est intéressant de noter que la population des plus fines particules (entre 0.2 et 3 μm) ne fait qu'augmenter avec le temps, alimentée notamment par la population la plus grossière dont la proportion diminue et pour laquelle le maximum se décale progressivement de 900 à 100 μm . Entre ces deux populations, une population intermédiaire assure une transition entre le début et la fin du broyage et fait passer le mode de la PSD (voir section 1.1.2) de 200 μm à 2 μm .

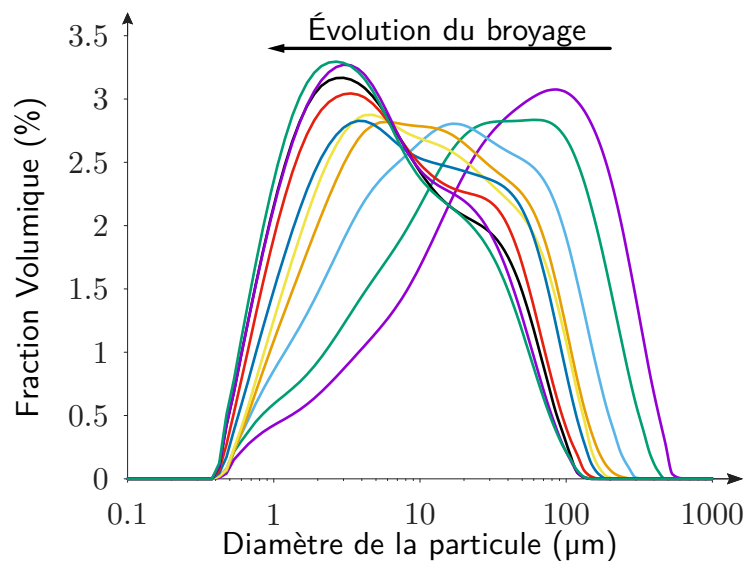
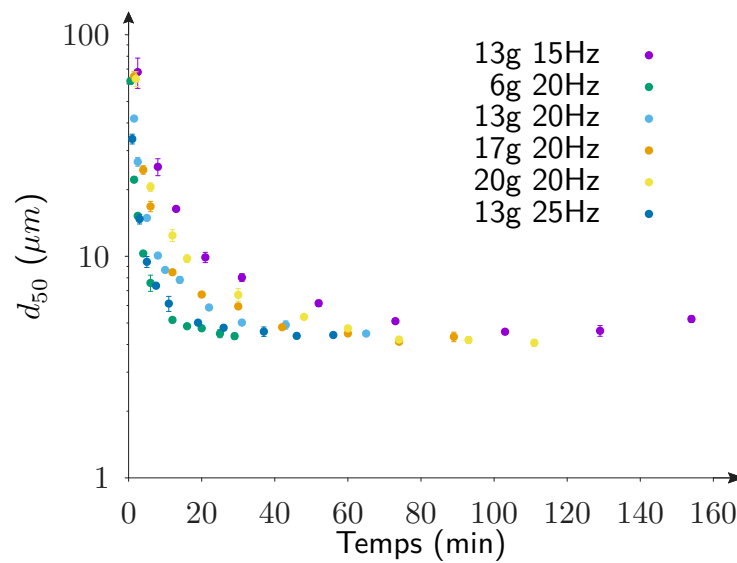
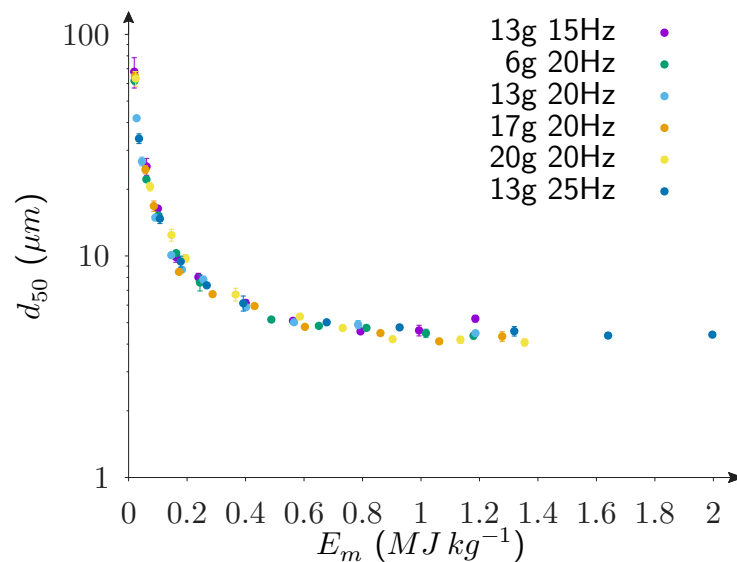


FIGURE 4.4. – Evolution de la PSD du broyage 13 g 20 Hz. La flèche marque le sens d'évolution du temps de broyage.

La figure 4.5 présente l'évolution du d_{50} en fonction du temps pour les différents couples (f, M) étudiés. Quelque soit les paramètres de broyages utilisés, le d_{50} se stabilise autour d'une valeur finale comprise entre 4 et 5 μm . On note cependant que la vitesse de cette diminution est fonction des paramètres de broyage. Plus le taux de remplissage en produit est important, plus la diminution est lente. Inversement, plus la fréquence est élevée, plus la diminution est rapide. En effet, une plus haute fréquence entraîne une énergie d'impact plus importante (cf. équation 4.5) ainsi qu'un nombre d'impact par seconde plus important, accélérant la cinétique de broyage. En outre, plus le taux de remplissage est important et plus l'énergie d'impact est distribuée dans une grande quantité de matière, diminuant ainsi la quantité d'énergie par grains de matière. Logiquement, la quantité de grains fracturés lors d'un impact diminue, ralentissant la vitesse de broyage.

Sur la figure 4.6 l'évolution du d_{50} est tracée en fonction de l'énergie spécifique de broyage E_m (cf. équation. 4.7). Quelque soit les paramètres, tous les points se rejoignent sur une seule et même courbe traduisant le fait que pour la gamme de fréquences étudiées, le broyage des particules de quartz est relié à l'énergie totale apportée lors du broyage et non pas à l'énergie d'un impact. Nous pouvons donc supposer que des mécanismes de broyage similaires sont à l'oeuvre. L'hypothèse de départ semble donc vérifiée : sur la plage de fréquence balayée (entre 15 et 25 Hz) la bille a un mouvement similaire dans les bols et elle ne roule pas sur le produit. En effet Chen *et al.* ont montré qu'un changement de régime du mouvement de la bille pouvait avoir une influence sur l'évolution

FIGURE 4.5. – Evolution du d_{50} en fonction du temps.FIGURE 4.6. – Evolution du d_{50} en fonction de l'énergie spécifique de broyage.

de la finesse du produit [139].

4.2.2. Evolution de la surface spécifique

La figure 4.7 présente l'évolution de la surface spécifique S_m en fonction de l'énergie spécifique de broyage. De même que pour l'évolution des percentiles, l'augmentation de la surface spécifique suit la même courbe quelque soit les paramètres choisis, et ce, malgré le fait que Ec_i varie d'un facteur 3, et Ec_{im} d'un facteur 4 entre les différents broyages.

L'augmentation de la surface ralentit jusqu'à atteindre un plateau situé à une surface spécifique d'environ $800 m^2 kg^{-1}$.

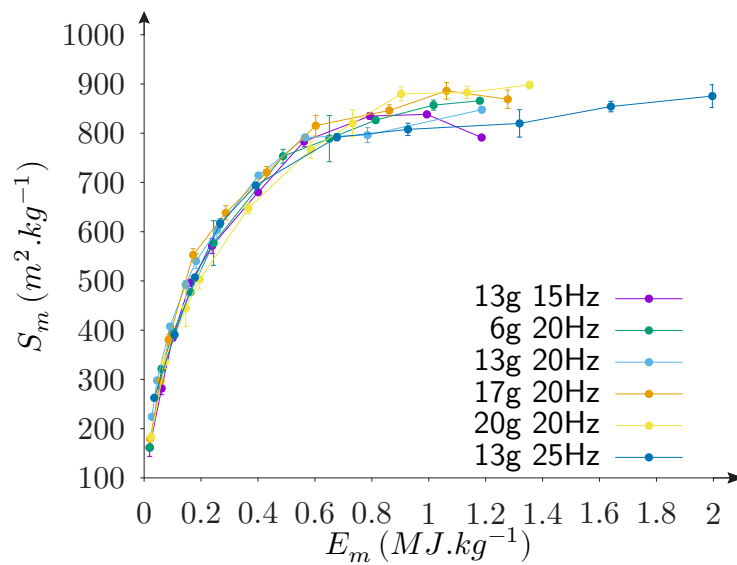


FIGURE 4.7. – Evolution de la surface spécifique en fonction l'énergie massique de broyage.

La surface spécifique S_{BET} mesurée par la méthode Brunauer, Emmett et Teller (BET) en fonction de l'énergie massique est présentée dans la figure 4.8. De même que pour la surface mesurée au granulomètre laser, sa vitesse diminue au cours du broyage et semble également atteindre un plateau, mais situé ici aux environs de 3200 $m^2 \cdot kg^{-1}$.

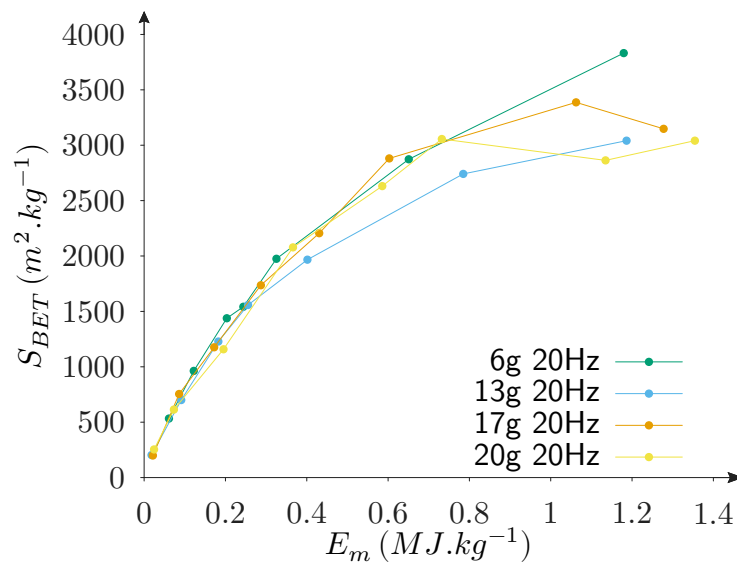


FIGURE 4.8. – Evolution de la surface spécifique BET en fonction de l'énergie massique de broyage.

La valeur de la surface spécifique BET est bien plus grande que celle obtenue par granulométrie laser. Ceci peut s'expliquer par la non-sphéricité des particules et par leur rugosité de surface comme l'illustre les images obtenues par microscopie électronique à balayage (MEB) de la figure 4.9.

L'écart entre la surface spécifique par granulométrie laser et par surface BET peut aussi s'expliquer par une dispersion incomplète de la poudre dans le granulomètre laser [141]. En effet, au



FIGURE 4.9. – Image MEB de grains de quartz après 30 secondes de broyages. On peut voir ici que les particules ne sont pas sphériques et possèdent une rugosité de surface.

fur et à mesure que la taille des particules diminue, les forces de cohésions augmentent et les ultrasons appliqués par le granulomètre laser ne permettent pas de disperser entièrement la poudre. Des agglomérats constitués de très fines particules sur de plus grosses, ou d'autres agglomérats constitués de plusieurs particules liés par un ciment de plus fines, peuvent être mesurés par le granulomètre laser comme étant une seule et même particule. En revanche la méthode par absorption d'azote permet de prendre en compte des tailles de pores pouvant aller jusqu'à 2 nm [142], et ainsi mesurer une grande partie de la surface des particules constituant un agglomérat. Des exemples de ces agglomérats sont visibles sur les images MEB de la figure 4.10 pour des temps de broyage de 29 min à 20 Hz et 6 g de matière.

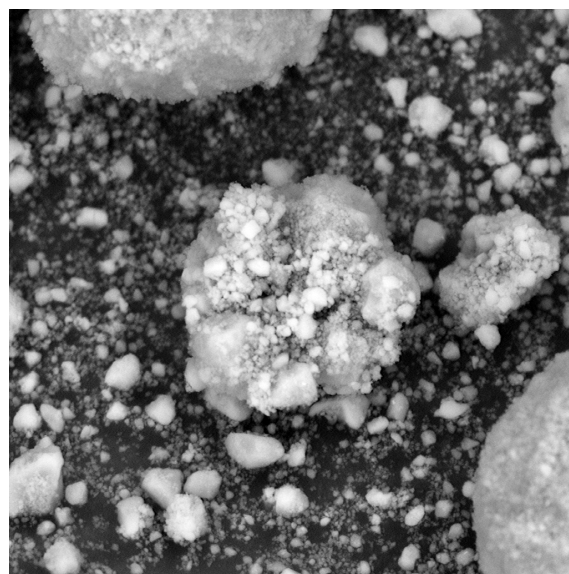
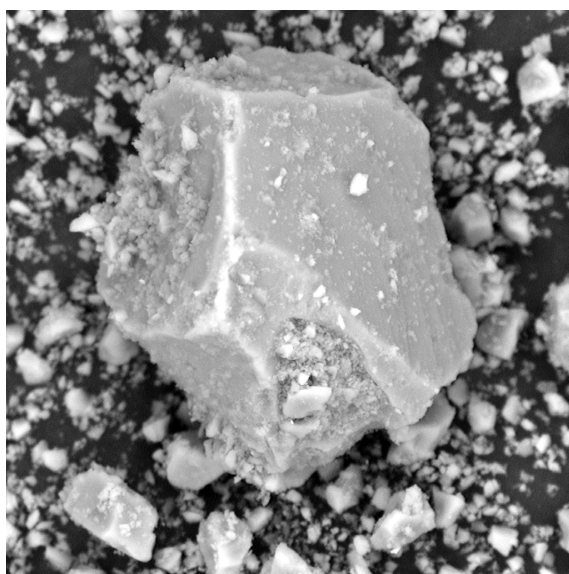


FIGURE 4.10. – Photos MEB de deux types d'agglomérats en fin de broyage (6 g, 20 Hz).

La figure 4.11 présente l'évolution de la surface BET en fonction de S_m . L'écart entre les deux surfaces augmente avec S_m traduisant probablement le fait que la dispersion dans le granulomètre laser est de moins en moins bonne.

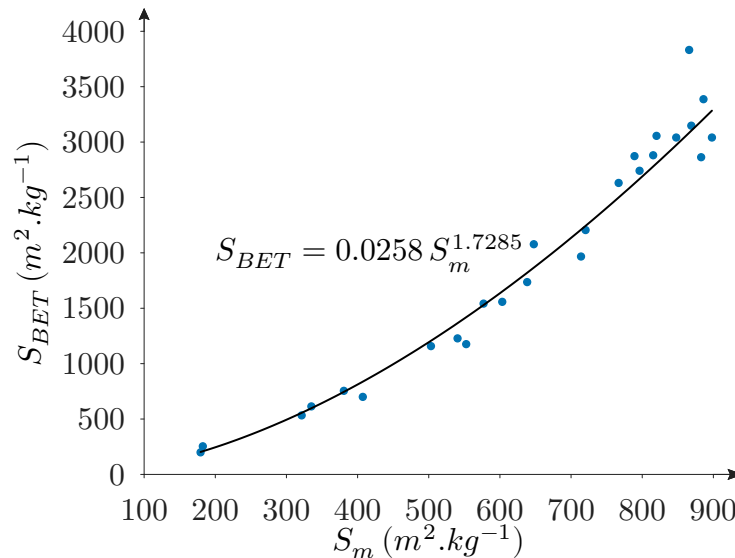


FIGURE 4.11. – Evolution de la surface spécifique BET en fonction de la surface spécifique mesurée au granulomètre laser.

La détermination de la surface spécifique par absorption de gaz nécessite des durées importantes de mesure (plus de 48 h par échantillon contre 15 min par granulométrie laser). Nous avons donc choisi de privilégier les mesures par diffraction laser. Néanmoins, il est possible de recalculer la surface de S_m à partir de la relation liant les deux surfaces (figure 4.11). A noter qu'à partir d'une valeur de $S_m = 1 m^2 g^{-1}$ (seuil de validité des mesures BET) la relation entre la surface BET et celle du granulomètre laser peut-être interpolée par une droite (avec un coefficient directeur égal à 6) comme cela a déjà été observé par Gomez *et al.* [143].

La figure 4.12 présente la surface recalculée S'_m en fonction de l'énergie massique de broyage. L'évolution est similaire à celle de la surface mesurée par granulométrie, avec un plateau atteint autour de $3000 m^2 kg^{-1}$.

4.2.3. Concordance avec les modèles de Kick, Bond et Rittinger

La figure 4.13 compare l'évolution des d_{10} , d_{50} , d_{80} ou d_{90} avec les modèles de Rittinger, Bond ou Kick (cf. section 1.3.3). Aucun de ces modèles ne permet d'interpoler de manière précise l'évolution des différents percentiles. Le modèle de Rittinger usuellement utilisé pour décrire le broyage dans l'ultra-fin, est celui qui s'en approche le plus, mais la diminution des percentiles observée dans cette étude est plus rapide que celle prévue par le modèle.

De même, l'évolution de la surface S'_m en fonction de E_m s'éloigne du modèle de Rittinger (représenté par une droite sur la figure 4.13) à partir d'une surface spécifique de $1500 m^2 kg^{-1}$ ce qui correspond à un d_{50} d'approximativement $9 \mu m$.

Ainsi l'hypothèse, posée par Rittinger, selon laquelle l'énergie de broyage est uniquement proportionnelle à la surface créée ne semble pas s'appliquer dans le cas de cette étude. En effet, à partir d'une certaine taille, les phénomènes d'agglomération rentrent en jeu, et une partie de l'énergie

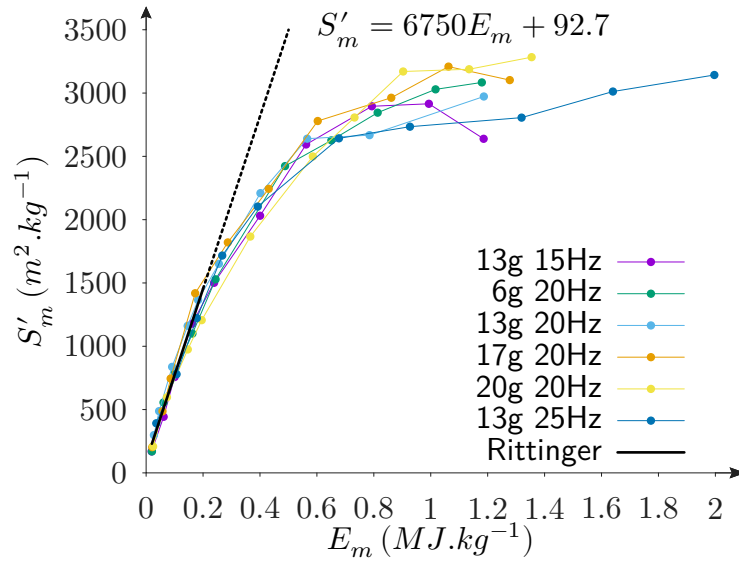


FIGURE 4.12. – Evolution de la surface spécifique BET calculée en fonction de l'énergie massique de broyage.

de broyage est alors utilisée à casser les agglomérats au lieu de casser les grains. Pour une même énergie, la création de surface est alors diminuée et la cinétique ralentit.

4.2.4. Modification du modèle Rittinger

Si la surface spécifique suivait le modèle de Rittinger, l'évolution de la surface spécifique pourrait s'écrire de la manière suivante :

$$\gamma \delta S'_m = K \delta E_m \quad (4.8)$$

avec γ l'énergie de surface des grains de quartz et K une constante représentant les différentes pertes énergétiques internes au broyeur et responsable de la diminution de l'efficacité du broyage. Ainsi $\frac{\gamma}{K}$ correspond à l'énergie utilisée dans le broyeur pour créer une unité de surface de quartz.

Cependant, comme nous l'avons montré dans la partie 4.2.1 ce modèle ne convient pas pour décrire ce broyage probablement à cause des phénomènes d'agglomération. Ainsi la vitesse d'évolution S'_m doit dépendre de sa propre valeur puisque l'agglomération augmente avec l'augmentation de la surface. K n'est donc plus une constante et dépend de S'_m . Nous pouvons donc écrire l'équation suivante :

$$K(S'_m) = K_1 - K_2 \frac{S'_m}{S_0} \quad (4.9)$$

En remplaçant l'expression de K dans l'équation 4.5 on obtient l'équation différentielle :

$$\frac{\delta S'_m}{\delta E_m} + \frac{K_2}{\gamma} \frac{S'_m}{S_0} - \frac{K_1}{\gamma} = 0 \quad (4.10)$$

La résolution de cette équation nous donne l'expression de S'_m en fonction de E_m :

$$S'_m(E_m) = S_0 \frac{K_1}{K_2} \left[1 - \left(1 - \frac{K_2}{K_1} \right) \exp \left(-\frac{K_2 E_m}{\gamma S_0} \right) \right] \quad (4.11)$$

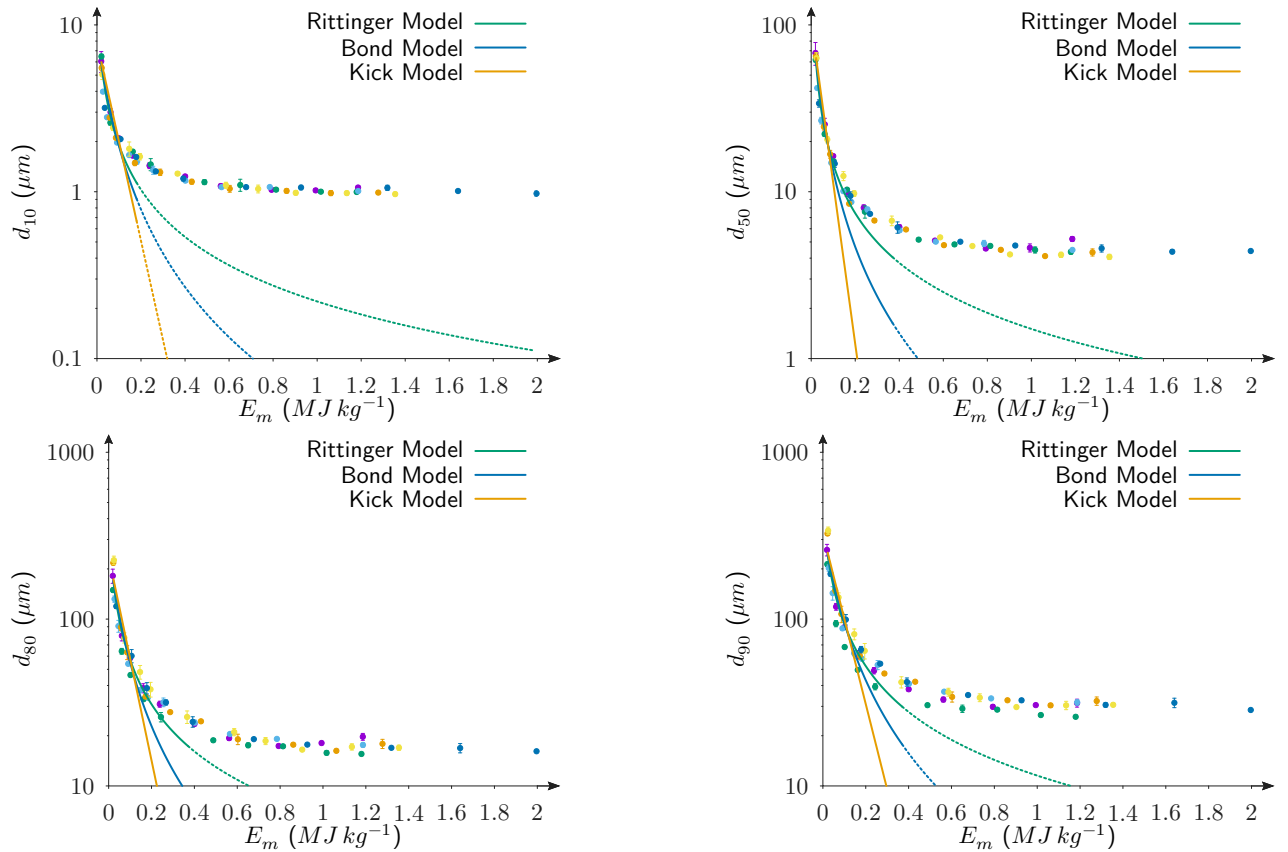


FIGURE 4.13. – Evolution du d_{10} , d_{50} , d_{80} et d_{90} en fonction de l'énergie massique. En trait plein, les modèles de Rittinger, Bond et Kick.

Cette expression a été utilisée pour interpoler l'évolution de S'_m en fonction de E_m à l'aide de la méthode des moindres carrés. Le résultat de l'interpolation est présenté dans la figure 4.14 (coefficient de détermination de 0.99) et la valeur des paramètres de la fonction sont récapitulés dans le tableau 4.5.

S_0 ($\text{m}^2 \text{kg}^{-1}$)	K_1	K_2
31.43	8980γ	89.8γ

TABLE 4.5. – Paramètres du modèle de Rittinger modifié après interpolation.

Pour $E_m = 0$, $S'_m = S_0 = 31.43 \text{ m}^2 \text{kg}^{-1}$. Or, en début de broyage, la surface spécifique estimée est de $S'_m = 2.5 \text{ m}^2 \text{kg}^{-1}$ (surface spécifique de grains d'une taille moyenne de 0.9 mm). La différence entre la valeur issue du modèle proposé et la valeur réelle met en évidence le fait que le début de broyage obéit à un autre mécanisme. En effet, il est connu que le modèle de Rittinger est adapté pour le broyage fin à ultra-fin. Pour des tailles de grains plus importantes le modèle de Bond ou de Kick est généralement privilégié (cf. section 1.3.3).

Avec le modèle utilisé dans cette étude, l'énergie de surface en début de broyage $\frac{\gamma}{K(S_0)} = \frac{\gamma}{K_1 - K_2}$ est égale à 112 J m^{-2} . Cette valeur est conforme avec celles de la littérature. Il a été reporté une valeur de $K = (107 \text{ J m}^{-2})$ en début de broyage pour le quartz au sein de broyeurs à boulets [144].

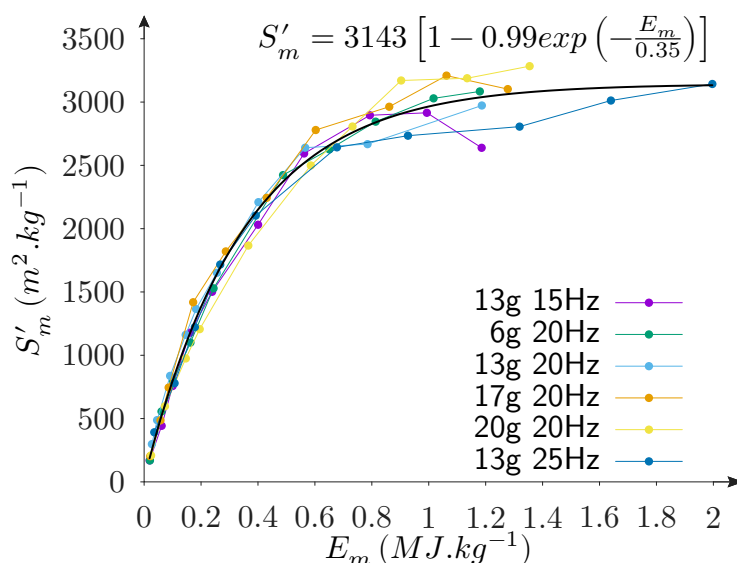


FIGURE 4.14. – Evolution de la surface spécifique BET calculée, en fonction de l'énergie massique de broyage. En trait plein, l'interpolation par le modèle de Rittinger modifié.

K_2 représente l'effet de l'augmentation de la surface spécifique sur la diminution de l'efficacité de broyage. Quatre phénomènes conjugués sont à l'origine de cet effet :

— **Augmentation de la cohésion de la poudre**

Comme on a pu le voir dans le chapitre bibliographique (cf. section 1.3.2) les forces cohésives augmentent avec la diminution de la taille des particules. Des agglomérats se forment et une partie de plus en plus grande de l'énergie de broyage est utilisée pour désagglomérer la poudre.

— **Diminution de la contrainte déviatorique sur un grain**

Du fait de l'augmentation du nombre de petites particules (et ce, dès le début du broyage, cf. section 4.2.1) le nombre de contacts sur les grosses particules augmente [145]. Ainsi, la contrainte déviatorique appliquée sur ces particules diminue. Même si ces particules concentrent de plus en plus les contraintes, elles se retrouvent en compression isotrope ce qui rend leur rupture plus difficile, réduisant alors une source potentielle de création de surface (cf. section 1.3.2).

— **Augmentation de la contrainte à la rupture des grains**

L'évolution de la microstructure en fonction de la taille de la particule augmente l'énergie spécifique nécessaire à leur fracturation car le nombre de défauts internes au sein des particules diminue (cf. section 1.2.3).

— **Augmentation de la quantité de particules ayant atteint une taille limite**

Comme l'a montré Kendall [47] et Hagan [48] il existe une taille limite à partir de laquelle il est impossible de briser des particules par compression. Pour le quartz, cette taille limite est de 1.1 μm pour le modèle de Hagan et de 3,6 μm pour le modèle de Kendall [146]. Ces tailles limites sont calculées en conditions de compression quasi-statique. Ainsi lors du broyage où les sollicitations sont multiples, des particules de tailles inférieures à ces limites peuvent être générées.

4.3. Effet de l'agglomération sur le broyage

Dans cette section on s'intéressera aux phénomènes d'agglomération et son lien avec le colmatage du broyeur.

4.3.1. Mise en évidence de l'agglomération

Dans cette section, l'agglomération entre les particules est évaluée. La figure 4.15 présente le taux d'agglomération A_g de la poudre dans le granulomètre en fonction de la surface spécifique S'_m .

Jusqu'à à peu près $1500 \text{ m}^2.\text{kg}^{-1}$, le taux d'agglomération A_g diminue lentement et la surface libérée par les ultrasons représente une proportion de plus en plus faible de la surface totale. Cependant, la surface libérée par les ultrasons reste à peu près constante durant cette première phase.

Durant la deuxième phase, une brusque augmentation de l'agglomération est observée. Ce changement de régime correspond également au moment où le modèle de Rittinger ne parvient plus à décrire le broyage. L'hypothèse selon laquelle le ralentissement de la cinétique de broyage est due à l'agglomération de la poudre paraît donc vérifié.

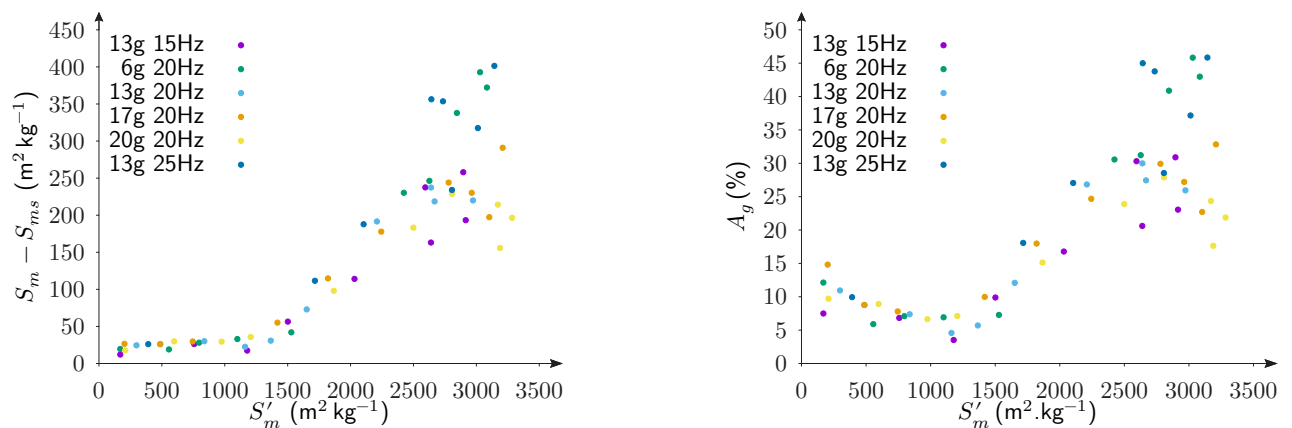


FIGURE 4.15. – Evolution du taux d'agglomération de la poudre et de la surface libérée par les ultrasons en fonction de la surface spécifique

En fin de broyage l'agglomération est plus élevée pour les broyages ayant l'énergie massique d'impact la plus importante (20 Hz, 6 g) et (25 Hz, 13 g) avec un taux d'agglomération atteignant 50% au lieu de 30% pour les autres broyages. Cela pourrait être attribué à une compaction plus importante de la poudre dans ces broyages à cause d'une énergie massique d'impact plus élevée. De plus, ce surplus d'énergie peut favoriser l'augmentation de température engendrant une plus forte agglomération.

Dans le but d'observer l'effet des plus fines particules, i.e. en dessous de $0.5 \mu\text{m}$, l'évolution de leur fraction volumique en fonction de la surface spécifique est tracée dans la figure 4.16. Il est intéressant de noter que la quantité de fines particules augmente également à partir d'une surface spécifique de $1500 \text{ m}^2.\text{kg}^{-1}$.

L'agglomération pourrait donc être reliée à cette population de très fines particules, et ne devient visible que lorsque la proportion de cette population devient significative par rapport aux autres populations. Néanmoins, ce n'est pas cette population qui est responsable de la valeur

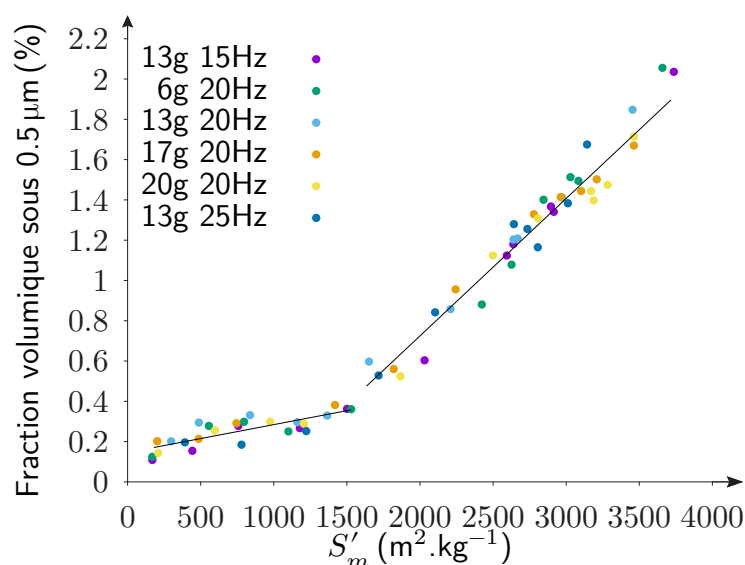


FIGURE 4.16. – Evolution de la fraction volumique sous 0,5 µm en fonction de la surface spécifique.

finale élevée du taux d'agglomération pour les broyages avec impact massiques plus élevés puisque qu'aucune différence n'est visible ici entre les différents broyages.

4.3.2. Effet de colmatage du broyeur

Sur la figure 4.17, l'évolution de la température externe du bol de broyage et de la puissance électrique consommée est tracée en fonction du temps pour le broyage (20 Hz, 20 g). Nous pouvons distinguer deux phases :

1. Augmentation de la température jusqu'à un pic pour une valeur constante de la puissance électrique (après une phase transitoire de diminution probablement due à une meilleure lubrification des parties mécaniques frottantes du broyeur avec leur échauffement).
2. Diminution soudaine de la température et de la puissance électrique à partir de 72 min de broyage.

Les mesures sur les autres couples (f, M) montrent des comportements similaire mais avec des pertes de puissance plus faibles quand la masse de produit diminue (tableau 4.6). Lorsque l'on augmente la fréquence la perte de puissance diminue également (tableau 4.7). La température ne baisse que pour (20 Hz, 20 g) et (20 Hz, 17 g). Cependant, pour le reste des expériences une baisse de la vitesse d'augmentation de la température est observée.

Mass (g)	Power loss (%)
6	1.8
13	3.5
17	17.5
20	33.8

TABLE 4.6. – Pourcentage de puissance perdue après la transition pour une fréquence de 20 Hz.

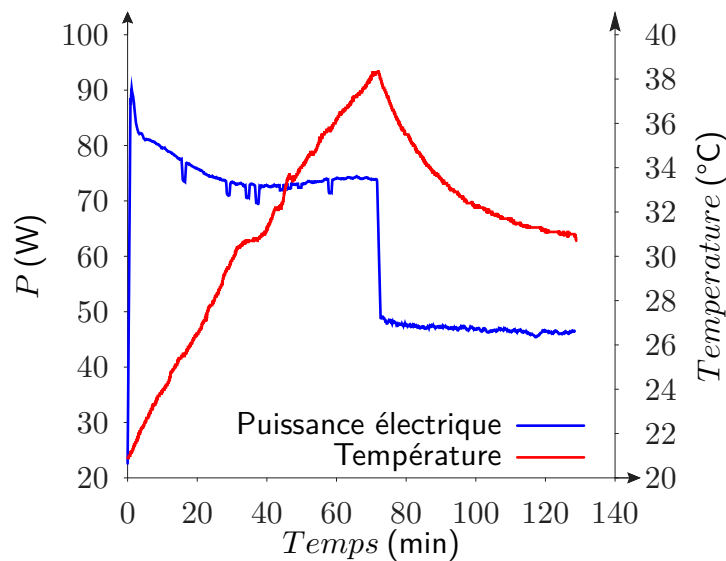


FIGURE 4.17. – Evolution de la puissance électrique et de la température en fonction du temps pour le broyage (20 g, 20 Hz).

Frequency (Hz)	Power loss (%)
15	9.3
20	3.5
25	3

TABLE 4.7. – Pourcentage de puissance perdue après la transition pour une masse de 13 g.

Pour toutes les expériences la transition entre les phases 1 et 2 apparaît aux alentours d'une surface spécifique $S_m' \simeq 2990 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$, ce qui correspond à peu près à la valeur vers laquelle tends le modèle ($S_0 K_1 / K_2 = 3143 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$).

Cette diminution de la température et de la puissance consommée par le broyeur traduit une diminution des pertes énergétiques internes au bol de broyage. Pour estimer la valeur de ces pertes énergétiques, la puissance électrique liée au mouvement du bol de broyage a été mesurée en remplissant le bol d'un matériau léger empêchant ainsi la bille et le produit de se déplacer dans le bol.

La puissance électrique P_0 représente la puissance nécessaire pour mettre en mouvement l'ensemble bol+bille+produit ainsi que les dissipations internes au broyeur. La figure 4.18 présente son évolution en fonction de la masse de produit. P_0 est quasi constant durant toute la durée de fonctionnement du broyeur et ne dépend que faiblement de la masse de produit. Ceci peut s'expliquer par la faible masse que représente le quartz (de 6 à 20 g) par rapport à l'ensemble des masses à mettre en mouvement.

Les valeurs de puissance électriques en condition de broyage avant (P_1) et après (P_2) la transition de la phase 1 à 2 sont également représentées sur le même graphique. Nous pouvons constater une augmentation linéaire de la puissance en fonction de la masse de produit au cours de la phase 1. Bien que cette masse soit faible, le fait qu'elle vienne s'opposer au mouvement du bol induit un effort supplémentaire pour le broyeur et augmente sa consommation électrique. De plus, la masse de poudre augmentant, l'énergie consommée par la fracturation et dissipée par frottements

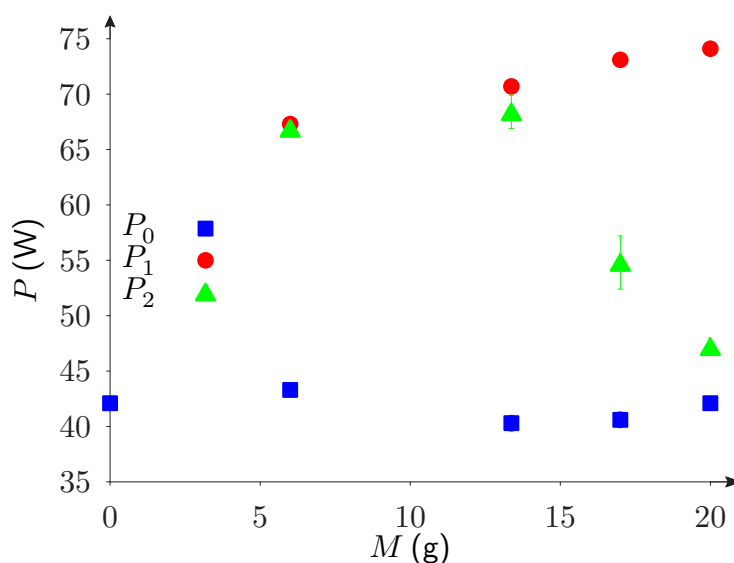


FIGURE 4.18. – Evolution de la puissance électrique en fonction de la masse de produit lorsque la bille et le produit sont fixes (carrés) et libres avant (ronds) et après la transition (triangles).

augmente également. Le broyeur doit donc dépenser plus d'énergie et voit sa puissance augmenter.

La différence de puissance électrique entre la phase 1 et 2 augmente avec la masse de produit et la puissance tend vers celle obtenue dans le cas où le produit et la bille sont fixes (P_2 tend vers P_0). Cela semble indiquer que la masse libre à l'intérieur du broyeur a diminué. La poudre s'est donc collée aux parois du bol de broyage, comme nous pouvons l'observer sur la figure 4.19 représentant l'intérieur d'un bol du MM400 ainsi que des agglomérats en fin de broyage.

De plus, avec le colmatage de la poudre sur les parois du bol et sur la bille, le débattement de la bille diminue. La différence de vitesse entre la bille et le bol au moment de l'impact diminue donc également. La bille s'oppose donc moins au mouvement du bol et la puissance diminue. Plus le débattement diminue, plus la puissance diminue. Or, avec une masse de poudre plus importante, la longueur de débattement est plus faible, et donc P_2 est plus proche de P_0 .

L'agglomération de la poudre va donc jusqu'à entraîner le colmatage de celle-ci dans le broyeur. Les pertes énergétiques sont diminuées, ce qui traduit ici un système bloqué. Il n'y a plus de mouvement de la poudre et le mouvement de la bille est entravé voir arrêté.

Une fois le système bloqué, au lieu de désagglomérer, la bille peut avoir l'effet inverse en la compactant. Il est d'ailleurs intéressant de voir que les broyages ayant la perte de puissance la plus faible sont également ceux qui ont le taux d'agglomération le plus élevé ((13 g, 25 Hz) et (6 g, 20 Hz)). En effet, ce sont ceux qui tout en bloquant la poudre laissent la plus grande liberté de mouvement à la bille. Celle-ci possèdera donc encore plus d'énergie pour compacter la poudre et donner un taux d'agglomération plus élevé.

Conclusion

Cette étude sur le broyage d'un sable de quartz dans le MM400 nous a permis de préciser différents points relatifs à l'utilisation de l'énergie au cours de l'opération de broyage. Tout d'abord nous avons pu mettre en évidence, dans les gammes d'énergies d'impact étudiées, qu'avant l'ap-

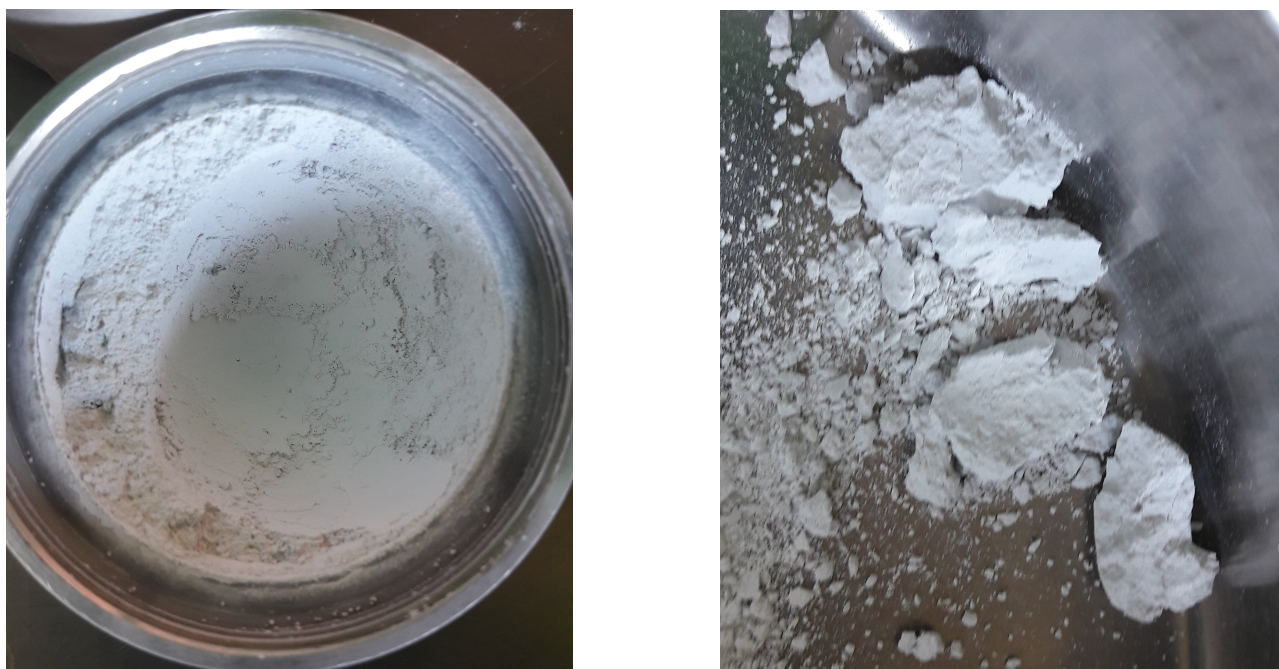


FIGURE 4.19. – Poudre colmatée sur les parois du bol (à gauche) (13 g, 25 Hz) et agglomérats du colmatage (à droite) en fin de broyage (13 g, 20 Hz).

parition des phénomènes d'agglomération et de colmatage, l'énergie d'un impact n'a pas d'effets sur la création de surface et que seule l'énergie totale dépensée influence la taille des particules produites.

Nous avons également vu que bien que le modèle de Rittinger soit le plus adapté (en comparaison de ceux de Bond et Kick) pour décrire l'évolution de la surface spécifique au cours du broyage, il montre rapidement ses limites dès que l'agglomération de la poudre se manifeste, à partir de $1500 \text{ m}^2 \text{ kg}^{-1}$. L'augmentation de l'agglomération semble provenir de l'apparition d'une population de particules inférieures à $0.5 \mu\text{m}$.

Lorsque l'agglomération devient très importante, le mouvement de la bille au sein du broyeur ne permet plus de disperser la poudre et un phénomène de colmatage apparaît. Celui-ci engendre une diminution des pertes énergétiques (diminution de l'échauffement et de la puissance électrique consommée par le broyeur).

Le modèle d'évolution de la surface spécifique de la poudre en fonction de l'énergie massique de broyage développé dans cette étude sera utilisé dans la suite de cette thèse pour comparer les différents broyeurs et matières premières utilisées. Les différents paramètres du modèle serviront de base pour comparer les broyeurs entre eux, discuter de la broyabilité des différentes matières premières et de leur capacité d'agglomération.

5. Comparaison de broyeurs à l'échelle du procédé

Sommaire

Introduction	124
5.1. Matériel & Méthodes	124
5.1.1. Matières premières	124
5.1.2. Caractérisation des matières premières	125
5.1.3. Technologies de broyage utilisées	129
5.1.4. Caractérisation des poudres broyées par granulométrie laser	132
5.2. Broyages des matériaux purs	135
5.2.1. Comparaison des différents matériaux	136
5.2.2. Comparaison entre les différents broyeurs	140
5.3. Cobroyages	143
5.3.1. Cobroyage dans la littérature	143
5.3.2. Cobroyage Minéral/Paille	145
5.3.3. Production d'une poudre cobroyée	152
5.3.4. Adjuvant de broyage	155
Conclusion	157

Introduction

Au sein de ce chapitre nous étendrons l'étude précédente à 2 autres broyeurs à média broyant et 3 matières premières : deux matières minérales et une matière végétale. L'objectif est de réaliser une comparaison des broyeurs en tenant compte de leurs spécificités et des propriétés des différentes matières premières analysées. Dans un premier temps, une analyse du broyage pur des différents matériaux est réalisée sur la base du modèle de Rittinger modifié développé dans la partie précédente. Les cinétiques de broyage seront comparées afin d'amener des éléments de compréhension sur l'interaction broyeur/propriétés de la matière.

Dans un second temps, des couples minéral/végétal seront cobroyés sur les différents broyeurs. Les comparaisons de cinétiques sont réalisées à différents taux de mélange minéral/paille dans le but de mettre en évidence les interactions entre les particules en situation de cobroyage.

5.1. Matériel & Méthodes

5.1.1. Matières premières

Trois matières premières ont été utilisées dans cette étude : deux minéraux et un matériau lignocellulosique. Pour chacun de ces matériaux, une tamiseuse rotative Rotex est utilisée pour resserrer la granulométrie initiale et limiter les sources de variabilité dans l'analyse des résultats.

Quartz

Le sable de quartz utilisé est fourni par la Société Nouvelle du Littoral et est calibré par tamisage entre 0.315 et 1 mm. Les caractéristiques de la matière première ont été décrites au chapitre 4.

M2

Le second minéral nous a été fourni par un industriel et sera nommé M2 par souci de confidentialité. Il possède une dureté très élevée (8 sur l'échelle de Mohs) et a subi une opération de prébroyage sur un broyeur à mâchoire donnant une granulométrie de sortie inférieure à 3.15 mm. Nous l'avons ensuite tamisé entre 0.315 et 1 mm afin d'avoir une distribution comparable à celle du sable.

Paille de blé

La paille de blé provient de blé tendre récolté en juillet 2015 à Mauguio sur l'Unité Expérimentale Diascope de l'INRA. Elle a été pré-broyée sur un broyeur à couteaux (SM100 de Retsch) par passage successif sur différentes grilles pour éviter un échauffement trop important, en commençant par une taille d'ouverture de 6 mm, puis 4 mm, puis 2 mm puis trois fois à 1 mm. La paille est chargée dans le broyeur manuellement et la vitesse du rotor est de 1500 rpm. La paille est ensuite tamisée afin de conserver la fraction entre 0.25 et 0.5 mm. Cette fraction appelée paille dans la suite du document est ensuite séchée pendant 24 heures dans une étuve à 65 °C. Ce séchage a pour but d'obtenir un taux d'humidité identique pour tous les échantillons de paille broyée et de faciliter son broyage [104].

5.1.2. Caractérisation des matières premières

Granulométrie initiale des matières premières par analyse d'image

Il est important de noter que les tamis sélectionnent les particules selon leurs deux plus grandes dimensions. Cependant, des particules allongées peuvent présenter des longueurs supérieures à la maille d'un tamis et passer au travers de celui-ci, soit en "force", soit à la verticale. La paille possède une forme de particules bien plus allongée que le quartz (figure 5.1). Ainsi, afin de caractériser précisément les différentes matières premières, une méthode d'analyse d'images selon le protocole de Vezi *et al.* [147] a été utilisée. Ce protocole induit moins de biais analytiques que la méthode classique par tamisage et permet également d'évaluer la forme des particules.

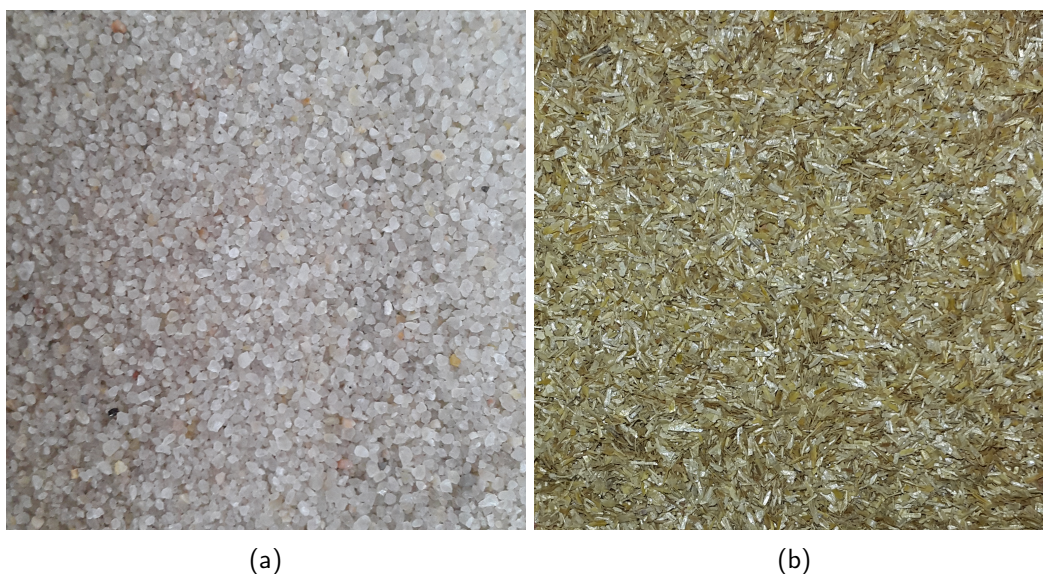


FIGURE 5.1. – Photo du sable a) et de la paille b) avant broyage.

La méthode consiste à déposer les particules sur la surface d'un scanner (HP Scanjet 5400C) équipé d'un fond noir en s'assurant d'une dissociation complète des particules (figure 5.2). Les acquisitions sont réalisées avec une résolution de $47.2 \text{ pixels mm}^{-1}$ (1600 dpi). Un traitement informatique des images, via le logiciel imageJ, permet l'identification des particules (figure 5.2) pour les quantifier, évaluer leur surface, leur diamètre équivalent et leur forme. Les particules ayant une surface inférieure à 10 pixels (diamètre équivalent à 0.2 mm) ne sont pas prises en compte afin d'une part, d'éliminer les éventuelles poussières ou rayures présentes sur la vitre du scanner et d'autre part, d'avoir un facteur de forme représentatif. Un minimum de 2000 particules analysées a été fixé pour évaluer le profil granulométrique de l'échantillon.

Les particules sont caractérisées par quatre indices morphologiques présentés dans la section 1.1.2 : l'aspect ratio, la rondeur, la circularité et la solidité. Le tableau 5.1 récapitule les valeurs des indices morphologiques obtenues pour les différentes matières premières. Les aspects ratio des différentes matières premières évoluent entre 1.4 et 3.7. Le sable est la matière première qui se rapproche le plus d'une sphère, avec des indices de rondeur et de circularité de 0.75 et 0.66 respectivement. Par ailleurs, les particules de sable sont plutôt convexes, avec un indice de solidité élevé très proche de 1. Au contraire, la paille présente une valeur moyenne d'aspect ratio plus de deux fois supérieur à celle du quartz (3.7 contre 1.4). Logiquement, les valeurs de rondeur et de circularité sont également beaucoup plus faibles. Ceci est à mettre en relation avec l'anisotropie de la paille liée à sa

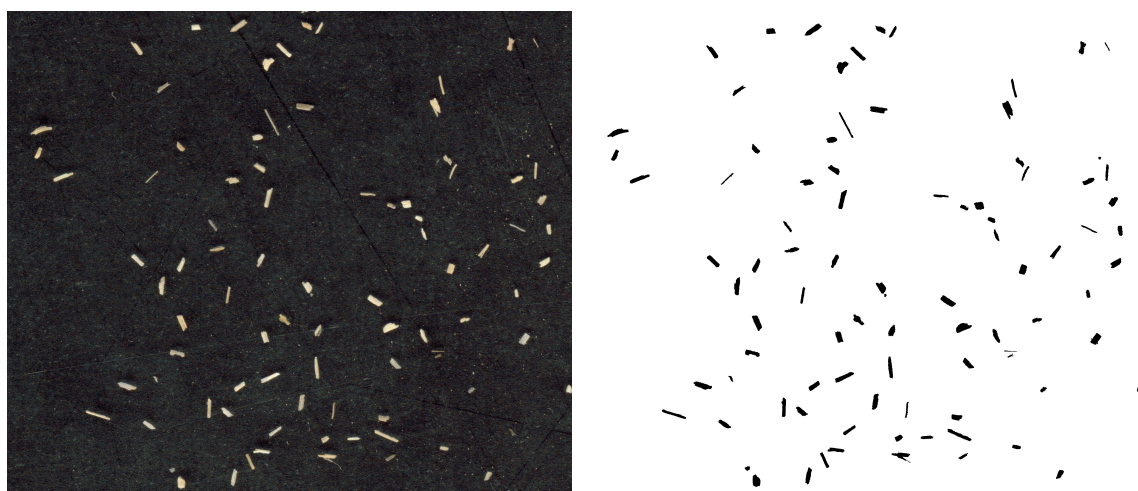


FIGURE 5.2. – Photo de particules de paille prise au scanner (à gauche) puis identifiées à l'aide du logiciel ImageJ (à droite).

	Aspect Ratio	Rondeur	Circularité	Solidité
Sable	1.4	0.75	0.66	0.91
M2	2.2	0.59	0.41	0.75
Paille	3.7	0.37	0.47	0.82

TABLE 5.1. – Indices morphologiques des matières premières

structure fibreuse. Ainsi, lors du prébroyage de la paille au broyeur à couteaux, la longueur de la tige de paille est raccourcie mais dans le même temps, les fibres constituant la tige se séparent. La structure allongée des particules de paille est donc conservée. Les valeurs d'aspect ratio et de rondeur mesurées pour le minéral M2 sont intermédiaires entre la paille et le sable : 2.2 et 0.59 respectivement. Par contre, les valeurs de circularité et de solidité de M2, plus faibles que celles de la paille, sont dues à la vitrosité de certaines particules. Lors du seuillage effectué par le traitement sous ImageJ, des vides apparaissent au sein des particules, ce qui les rend artificiellement plus rugueuses et convexes (cf. Figure 5.3). Les valeurs des indices morphologiques de M2 sont donc à prendre avec "précaution".

La figure 5.4 présente les distributions granulométriques ou *Particle Size Distribution* (PSD) en fraction volumique des matières premières. Les profils ont été déterminés en recalculant le volume équivalent de chaque particule, basé sur l'hypothèse qu'elles sont sphériques. Les profils sont plus "accidentés" par rapport à des mesures par granulomètre laser par exemple, à cause du nombre de particules relativement faibles par classes.

Les percentiles et span des différentes PSD sont résumés dans le tableau 5.2. Les gammes de tailles sont relativement similaires entre les différents matériaux, bien que M2 possède une granulométrie un peu plus grossière. L'étalement granulométrique de la paille est plus resserré que celui des minéraux, dû au tamisage entre 0.25-0.5 mm, qui a notamment permis d'éviter que des particules de pailles aux formes trop allongées soient présentes en début de broyage.

M2, présente une population de particules entre 0.2 et 0.3 mm alors que seule la fraction entre 0.315 et 1 mm a été conservée. Cette population peut être attribuée aux particules vitreuses dont une partie de la surface n'est pas comptabilisée lors de l'analyse d'image, engendrant un diamètre recalculé inférieur au diamètre réel. Par ailleurs M2 et le sable ont été tamisés dans les

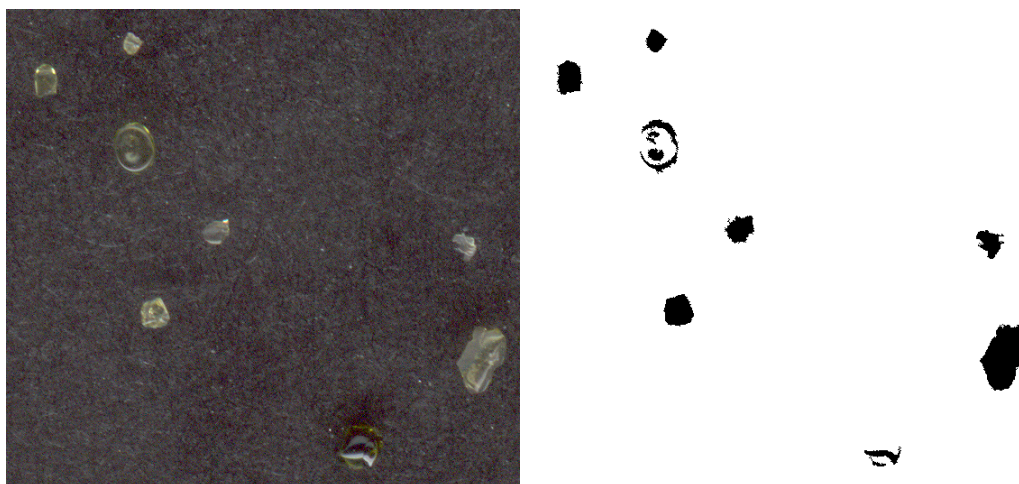


FIGURE 5.3. – Exemple de particules de M2 vitreuses avant (à gauche) et après traitement par le logiciel ImageJ (à droite).

mêmes conditions. Cependant, M2 possède une distribution globalement décalée vers les plus grosses particules par rapport au sable. Ceci peut s'expliquer par les différences de formes observées entre les deux minéraux, les particules plus allongées de M2 pouvant avoir tendance à passer verticalement lors du tamisage. Le même effet est observable sur la paille, qui, tout en étant tamisée entre 0.25 et 0.5 mm, possède des particules pouvant aller jusqu'à 1 mm de diamètre.

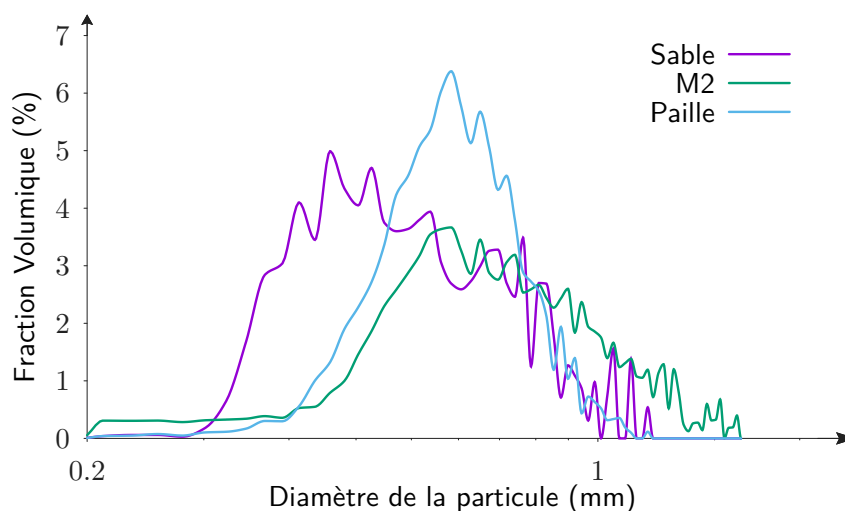


FIGURE 5.4. – PSD des matières premières par analyse d'image.

	d10 (mm)	d50 (mm)	d90 (mm)	Span
Sable	0,39	0,58	0,87	0,84
M2	0,5	0,76	1,17	0,88
Paille	0,49	0,65	0,85	0,55

TABLE 5.2. – Percentiles et span des distributions granulométriques des matières premières.

Mesures des densités apparentes et des densités vraies

Les densités apparentes des poudres ρ_a ont été déterminées à l'aide d'une éprouvette graduée de 250 ml (cf. figure 5.5). Une masse de poudre, M , est versée dans l'éprouvette et le volume apparent, V_a , est déterminé par lecture directe. La densité apparente est ensuite calculée selon l'équation 5.1.

$$\rho_a = \frac{M}{V_a} \quad (5.1)$$

Les densités vraies ont été déterminées au pycnomètre à hélium. La mesure consiste à injecter un gaz à une pression donnée dans une enceinte de référence, puis à détendre ce gaz dans l'enceinte de mesure contenant l'échantillon en mesurant la nouvelle pression du gaz dans cette enceinte. En utilisant de l'hélium, on s'assure que les molécules d'air puissent passer à l'intérieur des pores du matériau.

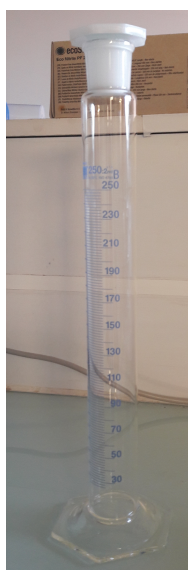


FIGURE 5.5. – Photo d'une éprouvette utilisée pour mesurer la densité apparente.

	Quartz	M2	Paille
Densité apparente (kg m^{-3})	1696	1608	221
Densité vraie (kg m^{-3})	2709	2990	1500

TABLE 5.3. – Densité apparente et vraie des matières premières

Les densités apparentes et vraies du Quartz et de M2 sont très proches. Par contre, celles de la paille sont beaucoup plus faibles (environ 8 fois pour la densité apparente et 2 fois pour la densité vraie) dû à la porosité interne et à la masse volumique des constituants de la matière. De plus, le rapport entre la densité vraie et la densité apparente est beaucoup plus grand pour la paille (6.8) que pour les minéraux (1.6 pour le quartz et 1.9 pour M2). Ceci peut s'expliquer par le fait que le volume des pores de la paille n'est pas mesuré dans la densité apparente, mais l'est en partie avec le pycnomètre. De plus, à cause de la forme très allongée de la paille, il est possible que la masse volumique de l'empilement granulaire diminue, comme cela a déjà été montré dans différentes simulations [148, 149].

Les densités apparentes ont été utilisées pour déterminer le volume occupé par les différentes poudres dans les broyeurs afin de comparer les broyages pour un même taux de remplissage. Ainsi, la quantité de paille qui sera incorporée dans les broyeurs sera nettement plus faible que celle des minéraux.

Mesure du taux d'humidité

La mesure du taux d'humidité est réalisée sur 2 g de matières dans une étuve à 105 °C. La mesure est réalisée pour chaque essai sur trois échantillons afin de s'assurer de sa reproductibilité. Le taux d'humidité est calculé à partir de l'équation 5.2 avec m_2 , la masse de l'échantillon et de la coupelle après 24h à l'étuve, m_0 , la masse de la coupelle et m_1 , la masse initiale de l'échantillon.

$$w = \frac{m_2 - m_0}{m_1} \quad (5.2)$$

Le taux d'humidité mesuré avant broyage pour la paille est compris entre 3 et 4% et celui des minéraux est de l'ordre de 0.01%.

5.1.3. Technologies de broyage utilisées

Trois broyeurs ont été utilisés au cours de cette étude. Il s'agit de broyeurs à média broyant qui se distinguent par le type de média utilisé, leur mode de fonctionnement et les énergies mises en jeu lors du broyage.

Broyeur vibrant MM400

Le broyeur MM400 Retsch déjà présenté en détails dans le chapitre 4 est utilisé ici afin d'étudier le régime d'impact. Il est constitué de deux bols vibrants de 50 mL chacun. Le média broyant utilisé consiste en une bille d'acier de 25 mm de diamètre. Pour l'ensemble des mesures, la fréquence de vibration a été fixée à 20 Hz et le volume de matière première à 8 mL, ce qui représente 12,5 g pour M2, 1,77 g pour la paille, 13,6 g pour le sable.

Broyeur à boulets Faure

Le broyeur à boulets fabriqué par Faure est utilisé pour l'étude de contraintes simultanées (impact, cisaillement et compression). Il est constitué d'une cuve de 2 L remplie de boulets en acier de diamètres 25, 20 et 15 mm. La masse totale de média broyant est de 3 kg, répartie en proportion égale entre les différents diamètres. La vitesse de la rotation de la cuve est fixée à 81 rpm, équivalent à 75% de la vitesse critique, ce qui permet au broyeur d'être en régime de cataracte (voir section 1.4.3). Au sein des broyeurs à boulets, la quantité de matière est généralement déterminée de telle sorte que le volume occupé par le produit en début de broyage remplisse le volume interstitiel des boulets (273 ml, dans le cas du broyeur à boulets Faure utilisé dans cette étude). L'utilisation d'une plus grande quantité de produit entraîne à priori une baisse d'efficacité, alors qu'une plus faible quantité génère une usure plus importante des boulets (voir section 1.4.3).

Broyeur à billes agitées Femag

Afin d'étudier le régime d'attrition, un prototype de broyeur à billes agitées en voie sèche a été développé au cours de cette thèse. Le concept de ce broyeur en voie sèche est identique à celui des broyeurs à billes agitées en voie humide, mais reste peu courant dans l'industrie. Le prototype a été

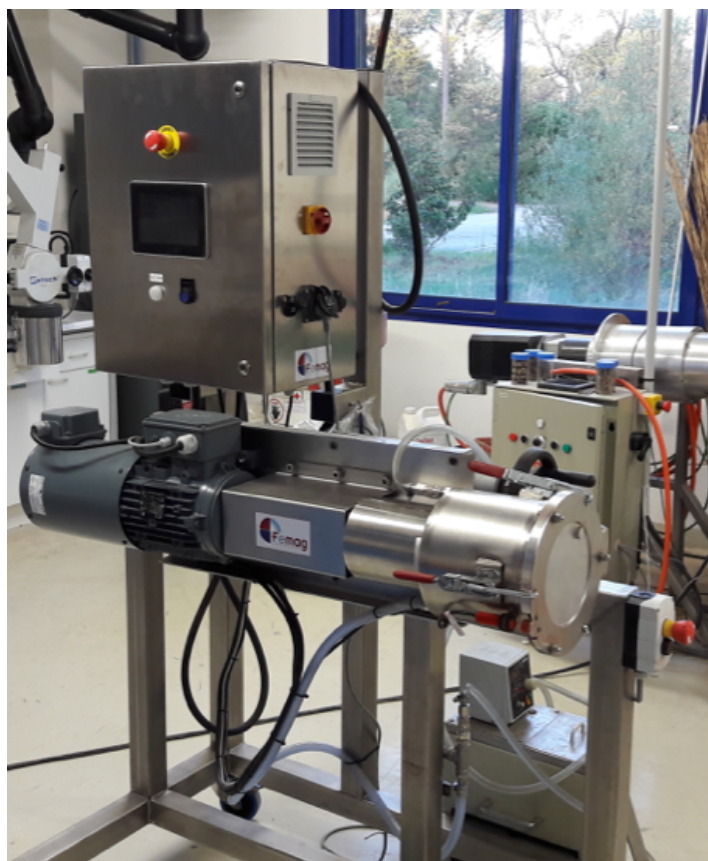


FIGURE 5.6. – Photo d'ensemble du broyeur à billes agitées Femag.

développé suite à une campagne d'essais menée dans un broyeur à billes agitées initialement destiné à la voie humide, mais transformé pour être utilisé en voie sèche. Sur la base de ces résultats, nous avons défini le cahier des charges du broyeur dont la construction a été confiée à un sous-traitant externe. Les dimensions du broyeur ont été déterminées afin de broyer une quantité de produit faible, tout en conservant une taille de cuve suffisante pour limiter les effets de bord. Il est composé d'une cuve horizontale de 3 L dans laquelle sont incorporées des billes en acier de faible diamètre (6 mm), mises en mouvement par un arbre agitateur de 15.8 cm, muni de 8 doigts. La vitesse de l'arbre agitateur est variable (entre 0 et 1000 tr/min). Pour ces essais, la vitesse est fixée à 300 tr/min.

La quantité de billes a été fixée à 7.5 kg, ce qui représente 60% du volume total de la cuve. Ce taux de remplissage semble offrir la meilleure efficacité d'après la bibliographie [150]. De la même manière que dans le broyeur à boulets, la quantité de produit est déterminée de telle sorte que le produit en fin de broyage remplisse le volume interstitiel entre les billes, soit 739 ml équivalent à 1253 g de sable et 170 g de paille. M2, fortement abrasif, n'a pas été étudié sur ce broyeur car il entraînerait une usure trop importante de la cuve.

Comparaison des différents broyeurs

Les caractéristiques des différents broyeurs sont résumées dans le tableau 5.4. Les vitesses maximales de media broyant présentées dans ce tableau sont des vitesses estimées. Le calcul pour le MM400 a déjà été présenté au chapitre précédent. Pour le broyeur à boulets, le broyeur étant en

Caractéristiques	MM400	Boulets			Femag
Taille cuve (L)	0.05	2			3
Volume produit (mL)	8	273			739
% remplissage volumique cuve produit	16	13.7			24.7
Taille des boulets (mm)	25	15	20	25	6
Nombre de boulets	1	16	31	76	≈8570
Masse de boulets (g)	56	1000	1000	1000	7500
% remplissage volumique cuve boulets	16,3	33			60
Vitesse max d'un boulet (m s ⁻¹)	1.81 ¹	1.72 ²			2.48 ³
Energie max d'un boulet (mJ)	104	94.0			2.69
Energie moyenne des boulets	104	37.3			2.69
Puissance électrique consommée moyenne (W)	70	62			1200
Puissance électrique volumique consommée (W mL ⁻¹)	8.75	0.23			1.62
Surface de boulets (cm ²)	19.63	1220			≈9692
Surface de boulets/Volume produit (cm ² mL ⁻¹)	2.45	4.47			13.1

¹ : vitesse relative maximum entre la bille et le bol (cf. Chapitre .4).

² : vitesse maximum d'un boulet en chute libre dans la cuve du broyeur.

³ : vitesse maximum de l'arbre en bout de pale.

TABLE 5.4. – Récapitulatif des caractéristiques des broyeurs utilisés

régime de cataracte, une estimation de la vitesse peut être faite en considérant que le boulet tombe en chute libre d'une hauteur égale au diamètre de la cuve du broyeur. Enfin, pour le broyeur Femag, la vitesse maximale atteignable par une bille est celle du bout des doigts de l'arbre agitateur. Ces vitesses permettent d'estimer l'intensité des énergies d'impact présentes dans les broyeurs.

Les broyeurs se différencient notamment par le volume de produit qu'ils sont capables de broyer, avec en particulier le MM400, qui ne permet le broyage que de très faibles quantités de produit.

Les principaux paramètres susceptibles d'influencer le broyage sont à priori :

- La vitesse du media broyant (assimilée dans cette étude à la vitesse maximale d'un boulet). Comme nous l'avons vu au chapitre 1 et 3, la vitesse de déformation du matériau peut influencer sur la fracturation des particules en faisant intervenir des phénomènes dynamiques. Dans le MM400 et le broyeur à boulets, ces vitesses sont très proches. Celle du Femag est 1.4 fois plus grande, mais reste du même ordre de grandeur.
- Énergie d'un impact (assimilée à l'énergie maximale d'un boulet) : nous avons démontré au sein du chapitre précédent que l'énergie d'un impact pouvait influencer l'agglomération de la poudre. Ici en moyenne l'énergie d'un impact est respectivement 39 et 14 fois plus grande pour le MM400 et le broyeur à boulets que dans le Femag.
- Puissance volumique du broyeur. La puissance volumique a été définie comme la quantité d'énergie apportée par seconde à une unité volumique de produit. Une puissance volumique importante engendra à priori un broyage plus rapide. En se basant uniquement sur l'étude de ce paramètre, le broyeur MM400 est donc celui qui est censé être le plus rapide, suivi du broyeur Femag puis du broyeur à boulets.
- Ratio entre la surface de boulets et le volume de produit. Ce paramètre donne une indication concernant la surface de media disponible pour une unité volumique de produit. Ce paramètre est un indicateur des phénomènes de cisaillement entre la matière première et les boulets. Cela peut avoir une influence pour les phénomènes d'agglomération en empêchant la poudre d'être compactée. Ce paramètre est beaucoup plus important au sein du Femag, avec une

valeur 5.4 fois plus grande que celle du MM400.

5.1.4. Caractérisation des poudres broyées par granulométrie laser

Protocole de mesure

La PSD (Particle Size Distribution ou distribution granulométrique) et la surface spécifique massique S_m ont été mesurées par diffraction laser en utilisant le granulomètre laser Hydro 2000S (Malvern Instruments Ltd., United Kingdom) selon le protocole décrit dans le chapitre 4.

Les matériaux étudiés dans cette section possédant des densités contrastées, à taille égale, ils présenteront des surfaces spécifiques massique différentes. Afin de s'affranchir de ce problème, la surface spécifique volumique S_v (surface des particules divisées par leur volume) a été déterminée selon l'équation 5.3 et sera utilisée dans la suite de ce chapitre. Le taux d'agglomération A_g (cf. Eq. 4.2) a également été calculé en s'appuyant sur le protocole de désagglomération défini au chapitre précédent.

$$S_v = \rho_v S_m = \sum_i \frac{3\alpha_i}{R_i} \quad (5.3)$$

avec i l'index d'une des classes divisant l'échelle granulométrique (entre 0.02 et 2000 μm), α_i et R_i respectivement la fraction volumique et le rayon de la particule de la i^{eme} classe, ρ_v la masse volumique vraie de la matière première.

Les indices optiques du quartz et de M2 étant connus, la méthode de Mie est la plus adaptée, car plus précise que la méthode de Fraunhofer notamment pour les plus fines particules. En revanche, les indices optiques de la paille étant inconnus, la méthode préconisée par la norme ISO 13320 serait celle de Fraunhofer, en sachant que la quantité de particules en dessous de 50 μm sera sur-estimée. Des mesures de la taille de poudre de paille avec la méthode de Mie en utilisant les indices des minéraux, ont été réalisées afin d'estimer l'erreur si une seule méthode de mesure est sélectionnée pour l'ensemble des matériaux. Les PSD de trois poudres ayant un d50 de 150, 20 et 6 μm avec les différentes méthodes de mesures sont visibles sur la figure 5.7.

Lors de l'utilisation de la méthode de Fraunhofer, une quantité plus importante de fines particules est mesurée. Les valeurs des différents percentiles sont plus faibles et la surface volumique est plus importante que lors de l'utilisation de la méthode de Mie avec les indices des minéraux (cf. tableaux 5.5, 5.6 et 5.7).

Paille 150 μm	d10 (μm)	d50 (μm)	d90 (μm)	Surface volumique ($\text{m}^2 \text{m}^{-3}$)
Fraunhofer	10,99	149,05	590,91	236,38
Mie indices M2	12,87	157,58	605,14	202,3
Mie indices sable	12,47	155,99	600,94	219,91

TABLE 5.5. – Percentiles et surfaces spécifiques de la paille broyée 150 μm au broyeur à boulets avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie

Néanmoins, étant donné que l'allure des différentes PSD n'est pas fondamentalement modifiée (figure 5.7) nous avons choisi d'utiliser la méthode de Mie avec l'indice de M2 pour mesurer la granulométrie de la paille. Cela permettra l'utilisation d'une seule et même méthode pour la détermination des poudres cobroyées minéral/paille (cf. partie 5.3).

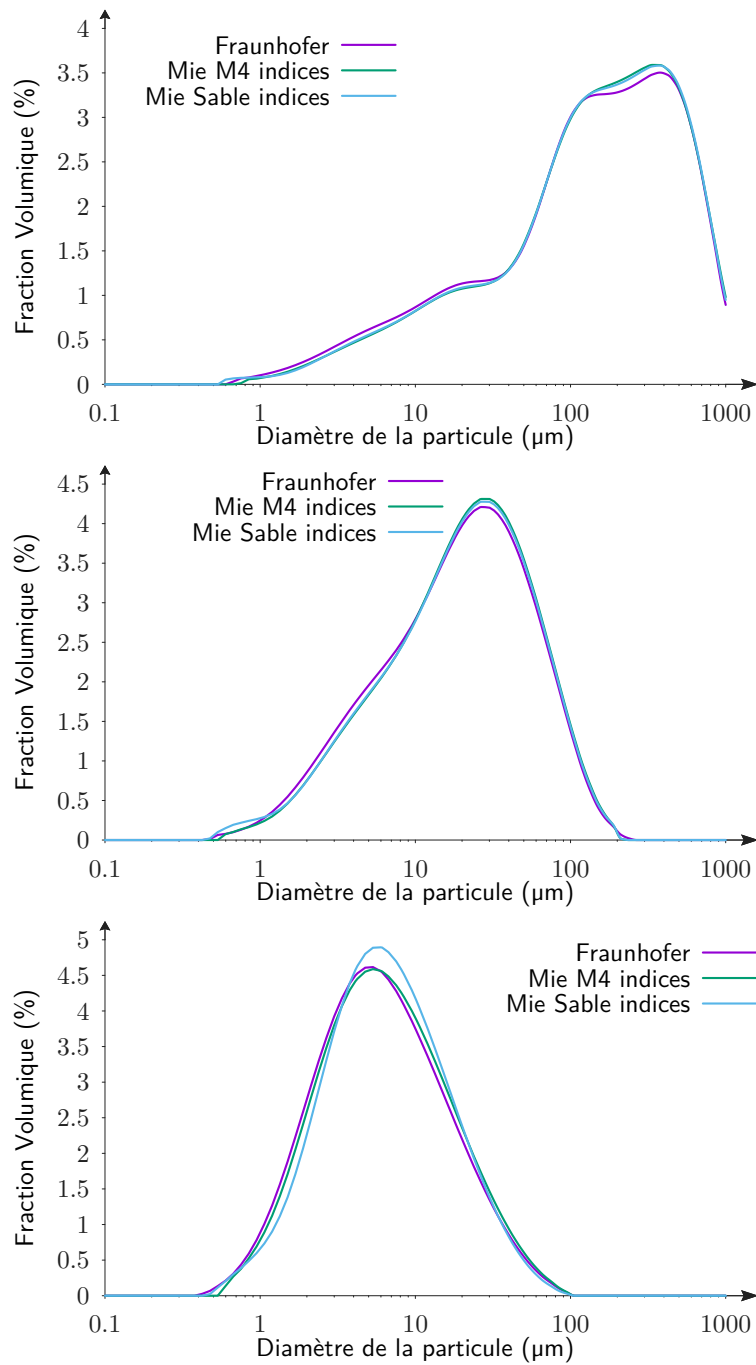


FIGURE 5.7. – Exemple de PSD de paille mesurée au granulomètre laser avec la méthode de Fraunhofer et de Mie. a) d_{50} à $150\mu\text{m}$, b) d_{50} à $20\mu\text{m}$, c) d_{50} à $6\mu\text{m}$.

Paille 20 μm	d10 (μm)	d50 (μm)	d90 (μm)	Surface volumique ($\text{m}^2 \text{m}^{-3}$)
Fraunhofer	3,58	20,17	69,06	678,82
Mie indices M2	3,9	21,17	70,59	631,03
Mie indices sable	3,72	20,85	70,08	682,2

TABLE 5.6. – Percentiles et surfaces spécifiques de paille de 20 μm avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie

Paille 6 μm	d10 (μm)	d50 (μm)	d90 (μm)	Surface volumique ($\text{m}^2 \text{m}^{-3}$)
Fraunhofer	1,74	5,76	22,01	1550,22
Mie indices M2	1,86	6,13	23,18	1445,81
Mie indices sable	2,00	6,31	21,90	1401,52

TABLE 5.7. – Percentiles et surfaces spécifiques de paille de 6 μm avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie

Correction des mesures

Lors du retraitement des données, nous nous sommes aperçu que certaines des cinétiques de broyages ont été mesurées avec un bruit de fond trop élevé sur les détecteurs de particules les plus fines. Ceci est dû à une pollution par de fines particules de la cellule du granulomètre laser. L'allure de la PSD est alors modifiée (figure 5.8), et la valeur de surface volumique augmente généralement de manière significative (tableau 5.8).

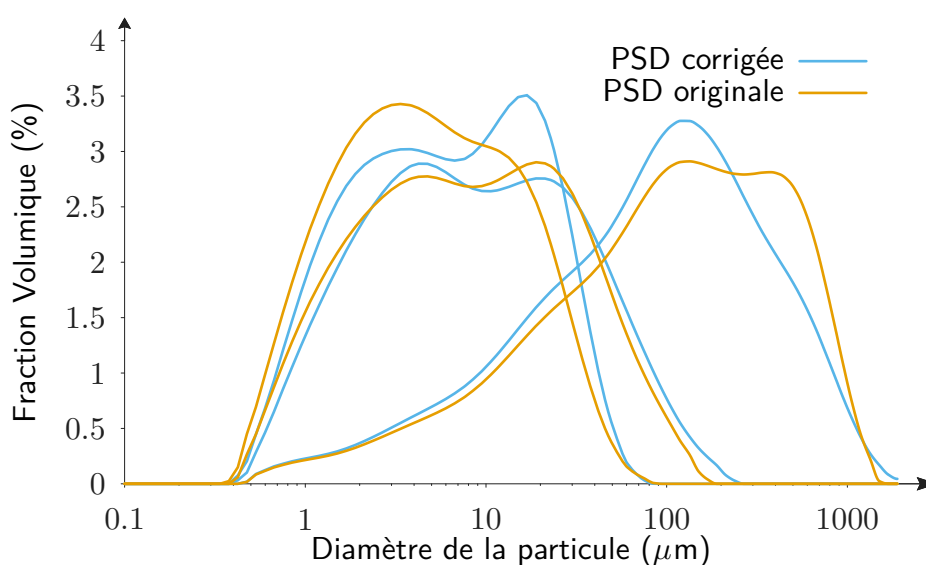


FIGURE 5.8. – PSD de différentes poudres ayant un bruit de fond trop élevé avant et après correction.

Ces erreurs se retrouvent la plupart du temps sur une cinétique entière regroupant une dizaine de points. Afin de quantifier cette erreur, nous avons ré-effectué les mesures granulométriques dans les conditions optimales, sur une partie des points de ces cinétiques.

d_{50} (μm)	S_v avant correction ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)	S_v après correction ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
110	337	367
15	1147	1097
5	2245	1903

TABLE 5.8. – Différences de surface volumique de différentes poudres avant et après correction.

Le modèle développé dans la partie 4.2.2 a été appliqué à la cinétique initiale (l'évolution de la surface volumique en fonction du temps) et à celui de la nouvelle cinétique de broyage. Entre les deux cinétiques, seul le paramètre $S_f = S_0 \frac{K_1}{K_2}$ est modifié. Les points initiaux peuvent être corrigés en multipliant la valeur de la surface du point erroné par le rapport des paramètres S_f de la cinétique originale et de la nouvelle cinétique. La figure 5.9 présente la cinétique initiale avec l'erreur de bruit de fond, celle avec les nouvelles mesures de certains points, et la cinétique initiale corrigée. Une très bonne adéquation est observée entre l'interpolation des données corrigées et celle des nouvelles mesures.

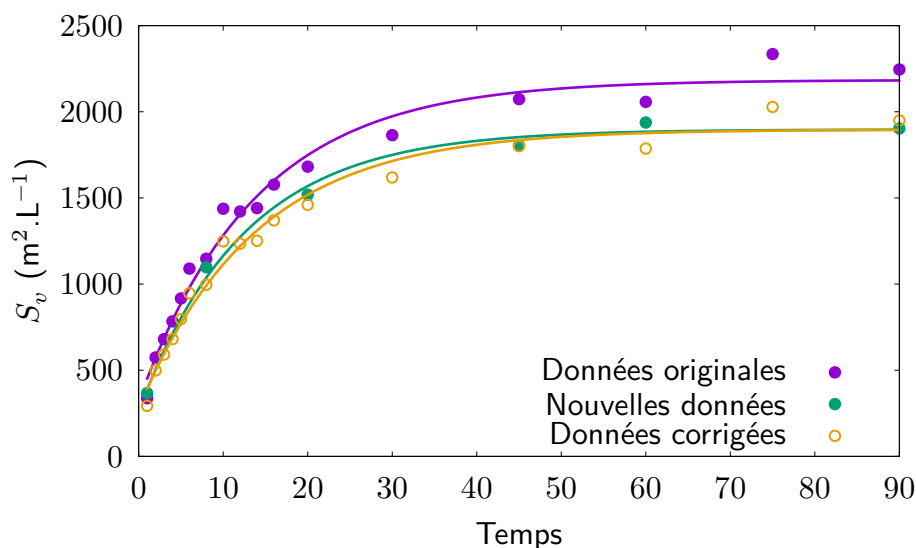


FIGURE 5.9. – Données avant et après correction. Les points re-mesurés en vert ont servi de référence pour corriger les données.

Afin de distinguer les valeurs de surfaces volumiques mesurées (et non erronées) de celles corrigées (car issus de données erronées), dans tout les graphiques de la suite du chapitre, les valeurs de surface volumique non-corrigées seront marquées par des symboles pleins et celles corrigées par des symboles vides. En revanche, nous n'exploiterons pas les PSD erronées, aucune relation simple entre la nouvelle PSD et l'ancienne n'ayant été trouvée.

5.2. Broyages des matériaux purs

Dans un premier temps, les matériaux sont broyés séparément dans les différents broyeurs afin de comparer la broyabilité des matériaux entre eux et d'étudier l'influence du broyeur sur la cinétique de broyage.

Comme décrit ci-dessus, les analyses de surfaces volumiques ont été réalisées au granulomètre laser. Nous avons montré au sein du chapitre précédent (chapitre 4) que ces mesures sous-estimaient la surface réelle mais qu'il existait une corrélation en loi de puissance entre la surface mesurée par absorption de gaz (selon la méthode B.E.T) et la surface mesurée au granulomètre laser. Dans le cas du sable, l'exposant de la loi de puissance est de 1.73. Au vu du très grand nombre d'expériences réalisées dans cette étude, les mesures au BET n'ont pas pu être réalisées et les exposants pour M2 et la paille n'ont pas été déterminés. Cependant, durant notre analyse des résultats nous garderons à l'esprit l'existence de ce biais.

5.2.1. Comparaison des différents matériaux

Évolution de la surface spécifique volumique

L'évolution de la surface volumique en fonction du temps est extrapolée selon le modèle développé dans le chapitre 4 :

$$S_v(t) = S_0 \frac{K_1}{K_2} \left[1 - \left(1 - \frac{K_2}{K_1} \right) \exp \left(-\frac{K_2 t}{S_0} \right) \right] \quad (5.4)$$

avec t le temps de broyage, S_0 la surface spécifique volumique initiale, K_1 , la surface créée par unité de temps dans un broyeur et K_2 facteur traduisant la diminution de la broyabilité du produit en lien avec l'augmentation de sa surface, lié par exemple aux phénomènes d'agglomération (cf. partie 4.2.2). Le paramètre matériau γ utilisé dans le modèle du chapitre précédent est ici contenu dans les valeurs de K . En effet, ce paramètre ayant une valeur inconnue, nous l'avons ici supprimé pour des raisons de lisibilité.

Cette équation peut s'écrire également de la manière suivante :

$$S_v(t) = S_f \left[1 - \left(1 - \frac{S_0}{S_f} \right) \exp \left(-\frac{t}{\tau} \right) \right] \quad (5.5)$$

avec $S_f = S_0 \frac{K_1}{K_2}$ la surface spécifique volumique finale, S_0 la surface initiale du produit et $\tau = \frac{S_0}{K_2}$ représentant la vitesse à laquelle la surface volumique atteint sa valeur finale.

La figure 5.10 représente l'évolution des d_{50} et des surfaces spécifiques volumiques S_v en fonction du temps pour les différents matériaux au sein des trois technologies de broyage.

Quelque soit le broyeur, la surface finale de M2 est 1.2 fois plus petite que celle du quartz, et la valeur finale de la paille est de 1.6 à 1.75 fois plus petite que celle du quartz. Il y a donc une nette différence de broyabilité entre les différents matériaux. La faible broyabilité de la paille est à mettre en relation avec les propriétés viscoplastiques de ce matériau qui a tendance à absorber les chocs. Par ailleurs, il est intéressant de remarquer que dans le cas de la paille, la vitesse de diminution de taille est beaucoup plus faible que celle des minéraux.

Les paramètres résultant des interpolations de l'évolution de la surface volumique en fonction du temps par le modèle développé au chapitre précédent sont récapitulés dans les tableaux 5.9 à 5.11 pour les différents broyeurs.

Les valeurs de surface volumique finale plus élevées dans le cas du quartz sont le résultat d'une plus grande aptitude initiale à la fracture, et cela se traduit par des valeurs de K_1 plus élevées. En effet, selon les broyeurs, les valeurs de K_1 du quartz sont en moyenne 1.5 fois plus grandes que celles de M2 et de 2.4 à 5.9 fois plus grandes que celles de la paille.

Cependant, l'augmentation de la surface volumique impacte fortement l'aptitude à la fracture de la poudre pour le quartz en comparaison aux autres matériaux, avec des valeurs de K_2/S_0 1.2

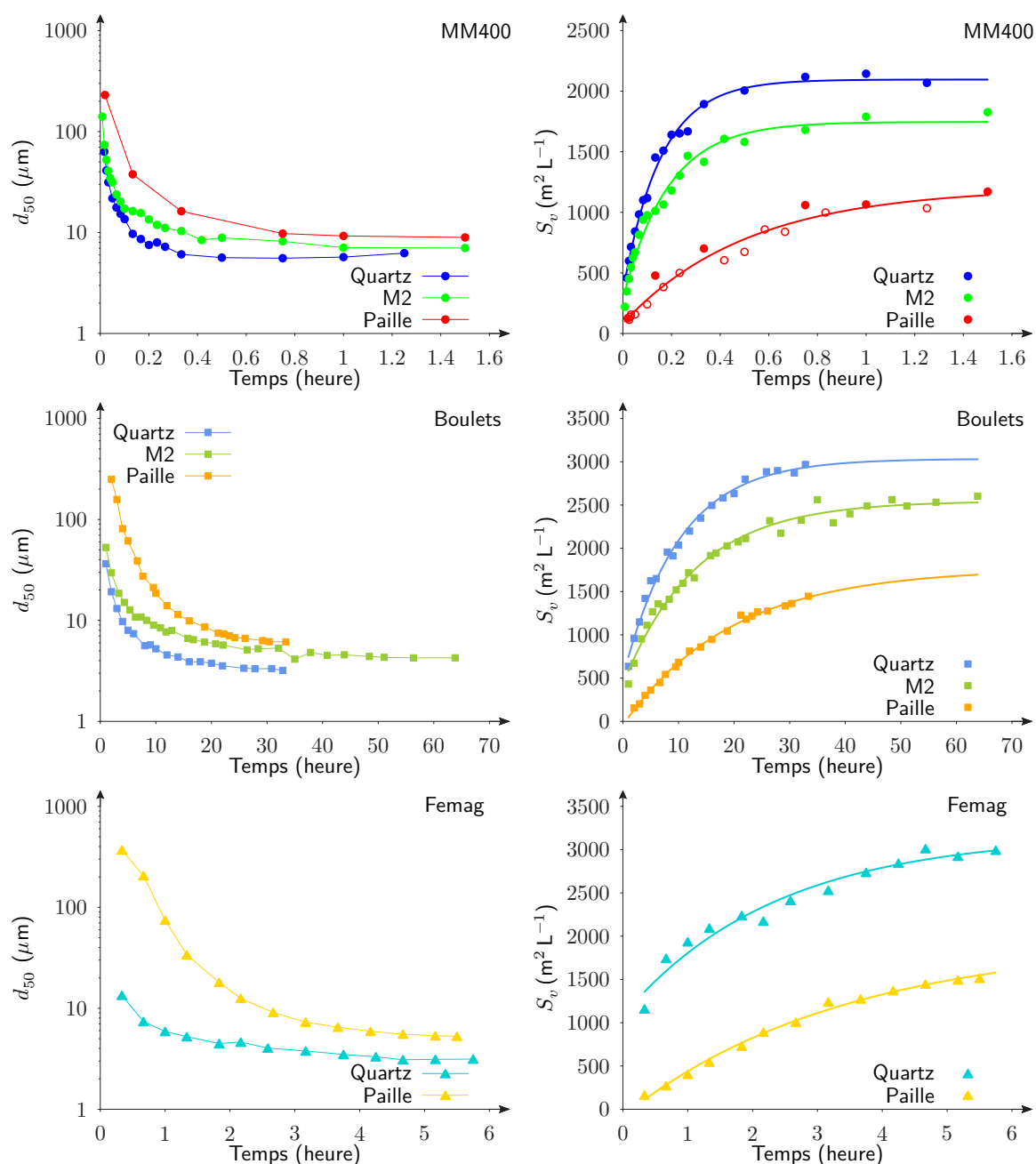


FIGURE 5.10. – Évolution du d_{50} et de la surface volumique en fonction du temps sur les différents broyeurs

fois plus grande que pour M2, et de 1.5 à 3.3 fois plus grande que pour la paille. Ainsi, les courbes de surface volumique en fonction du temps diminuent donc plus vite pour le quartz que pour les autres matériaux.

Les valeurs de K_1 et K_2/S_0 sont difficilement comparables entre les broyeurs car les vitesses d'augmentation de la surface sont dépendantes du broyeur. Une comparaison sur la base de l'énergie volumique sera réalisée ultérieurement dans la partie 5.2.2.

Matière première	K_1 ($\text{m}^2 \text{L}^{-1} \text{h}^{-1}$)	K_2/S_0 (h^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
Quartz	13429	6.41	2096
M2	9457	5.42	1746
Paille	2336	1.94	1202

TABLE 5.9. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le MM400.

Matière première	K_1 ($\text{m}^2 \text{L}^{-1} \text{h}^{-1}$)	K_2/S_0 (h^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
Quartz	299	0.098	3034
M2	194	0.076	2546
Paille	89.7	0.051	1766

TABLE 5.10. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le broyeur à boulets.

Matière première	K_1 ($\text{m}^2 \text{L}^{-1} \text{h}^{-1}$)	K_2/S_0 (h^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
Quartz	1350	0.43	3172
Paille	573	0.29	1956

TABLE 5.11. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le broyeur Femag.

Évolution du taux d'agglomération

La figure 5.11 présente l'évolution de la quantité de surface libérée par les ultrasons et des taux d'agglomération pour les différents matériaux dans les trois broyeurs étudiés.

Le quartz est le matériau qui s'agglomère le moins, quelque soit le broyeur utilisé. Les valeurs du taux d'agglomération de M2 sont toujours plus élevées que celles du quartz et se situent soit au même niveau (broyeur à boulets), soit en-dessous des valeurs obtenues pour la paille (broyeur MM400).

Comme précédemment observé pour le quartz dans la section 4.3.1, M2 possède un taux d'agglomération relativement constant (entre 15 et 20 %) jusqu'à la surface volumique de $800 \text{ m}^2 \text{L}^{-1}$. Durant cette première phase, il existe donc un premier type d'agglomérats qui résiste à la dispersion de l'éthanol et à l'action de la pompe du granulomètre. Ce phénomène est probablement présent lors du broyage du quartz, mais la solidité des agglomérats doit être moins élevée et l'action du granulomètre laser lors de la mesure permet leur dispersion.

Contrairement aux minéraux, la paille présente un comportement très différent, avec un taux d'agglomération maximum en début du broyage, qui diminue avant de ré-augmenter en fin de broyage. Mais l'évolution de la surface libérée en fonction de la surface volumique (figure 5.11 à gauche) nous montre que cela est dû à la présence d'une surface agglomérée en début de broyage dont l'augmentation est moins rapide que celle de la surface du produit. Nous pouvons supposer que cela peut être dû à des agglomérats constitués d'une population de particules dont la quantité ne varie que peu durant cette première phase de broyage. Il est possible qu'une population de fines particules, responsables de l'agglomération de départ, évolue peu en début de broyage contrairement aux plus grosses particules qui sont brisées et font évoluer la surface mais peu l'agglomération.

Pour les surfaces supérieures à $700\text{-}800 \text{ m}^2 \text{L}^{-1}$, l'agglomération augmente de manière très forte quelque soit le matériau. Ce comportement peut s'expliquer par l'augmentation des forces

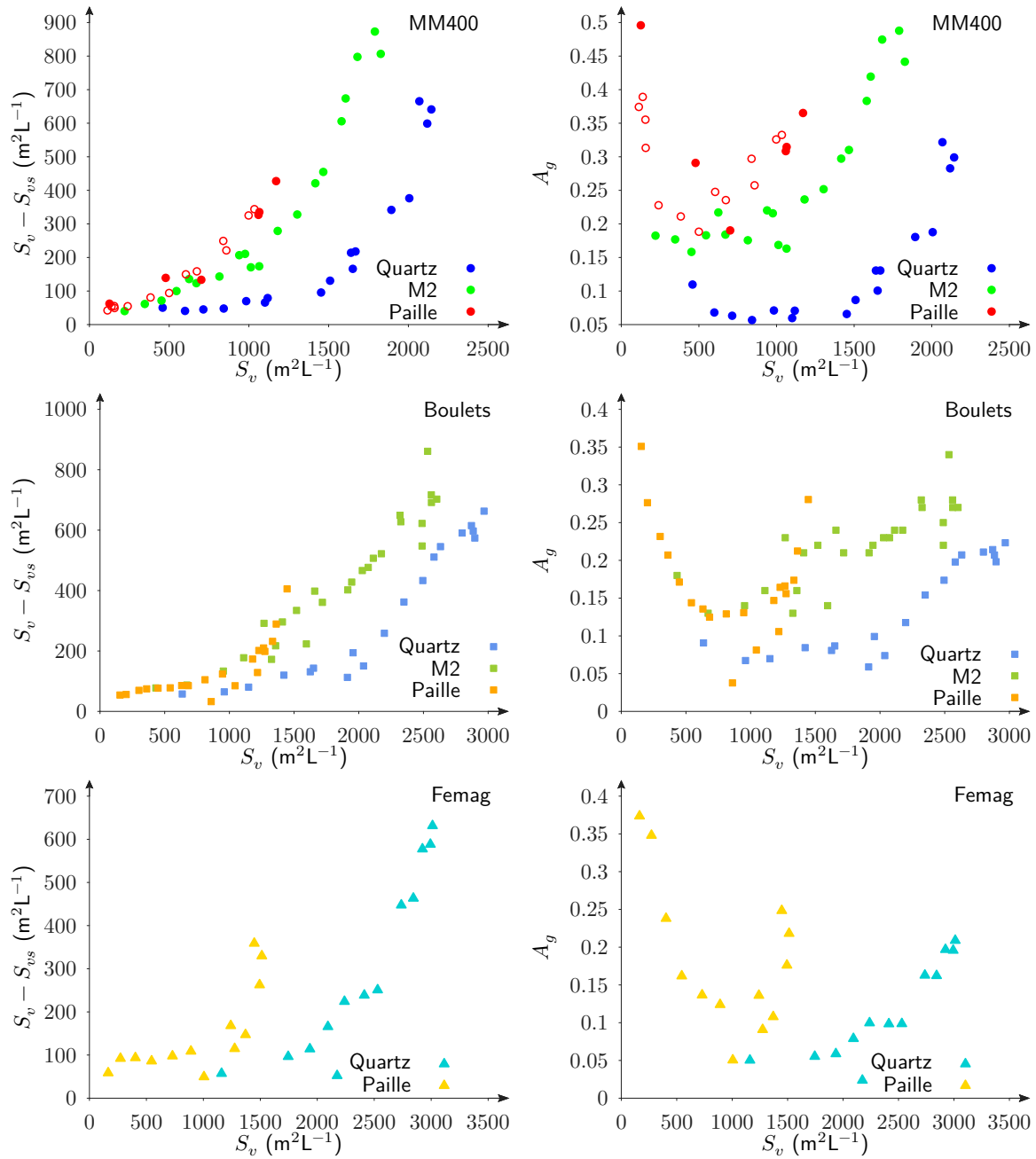


FIGURE 5.11. – Évolution de la quantité de surface libérée par les ultrasons et du taux d'agglomération en fonction de la surface volumique.

attractives (forces de van der Waals, forces électrostatiques, capillarité, etc..) par rapport à l'effet des forces dispersives en raison de la diminution de la taille des particules (cf. partie 1.3.1). De plus, l'apparition d'une population significative de fines particules doit influencer fortement l'agglomération.

Enfin, il faut noter que bien que le quartz soit le matériau qui s'agglomère le moins, c'est aussi celui dont la cinétique ralentit le plus vite. Ainsi, les valeurs de taux d'agglomération sur deux matériaux différents ne permet pas de prévoir l'intensité de l'effet qu'aura l'agglomération sur

l'efficacité de broyage pour chacun de ces matériaux.

5.2.2. Comparaison entre les différents broyeurs

Évolution de la surface volumique

La figure 5.12 présente l'évolution de la surface volumique de la paille en fonction du temps sur les différents broyeurs. Les trois broyeurs présentent des cinétiques de broyages très différentes. Il est intéressant de noter que les cinétiques sont classées en fonction de la puissance volumique du broyeur : plus la puissance volumique est élevée et plus le broyage est rapide. M2 et la paille suivent une tendance similaire (cf annexe .C).

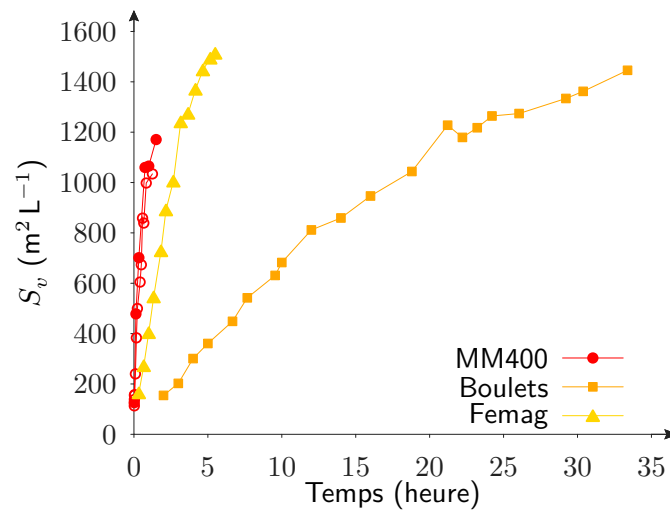


FIGURE 5.12. – Évolution de la surface volumique de la paille en fonction du temps sur les différents broyeurs.

Afin de rassembler les différentes courbes sur une même échelle, l'évolution de la surface volumique en fonction de l'énergie volumique E_v a été tracée sur la figure 5.13. L'énergie volumique E_v est déduite de la puissance électrique du broyeur et du volume vrai du matériau selon l'équation

$$E_v(t) = \frac{P}{m\rho_v}t \quad (5.6)$$

avec P la puissance électrique consommée par le broyeur, m la masse de produit, ρ_v la densité vraie du matériau et t le temps de broyage.

L'augmentation de la surface en fonction de l'énergie volumique suit le modèle proposé dans le chapitre .4. Mais ici, tracer la surface volumique en fonction de l'énergie volumique ne permet pas de rassembler les courbes sur une courbe maîtresse. L'énergie apportée totale n'est donc plus le seul paramètre à prendre en compte.

Pour les minéraux, le broyage sur MM400 se distingue avec une cinétique plus rapide en début de broyage et, quelque soit le matériau, la saturation de la surface est plus rapide. Les cinétiques observées pour le broyeur à boulets et le Femag sont assez similaires.

Les tableaux 5.12, 5.13 et 5.14 résument les différents paramètres du modèle utilisé pour extrapoler les cinétiques de broyages des différents matériaux sur les broyeurs.

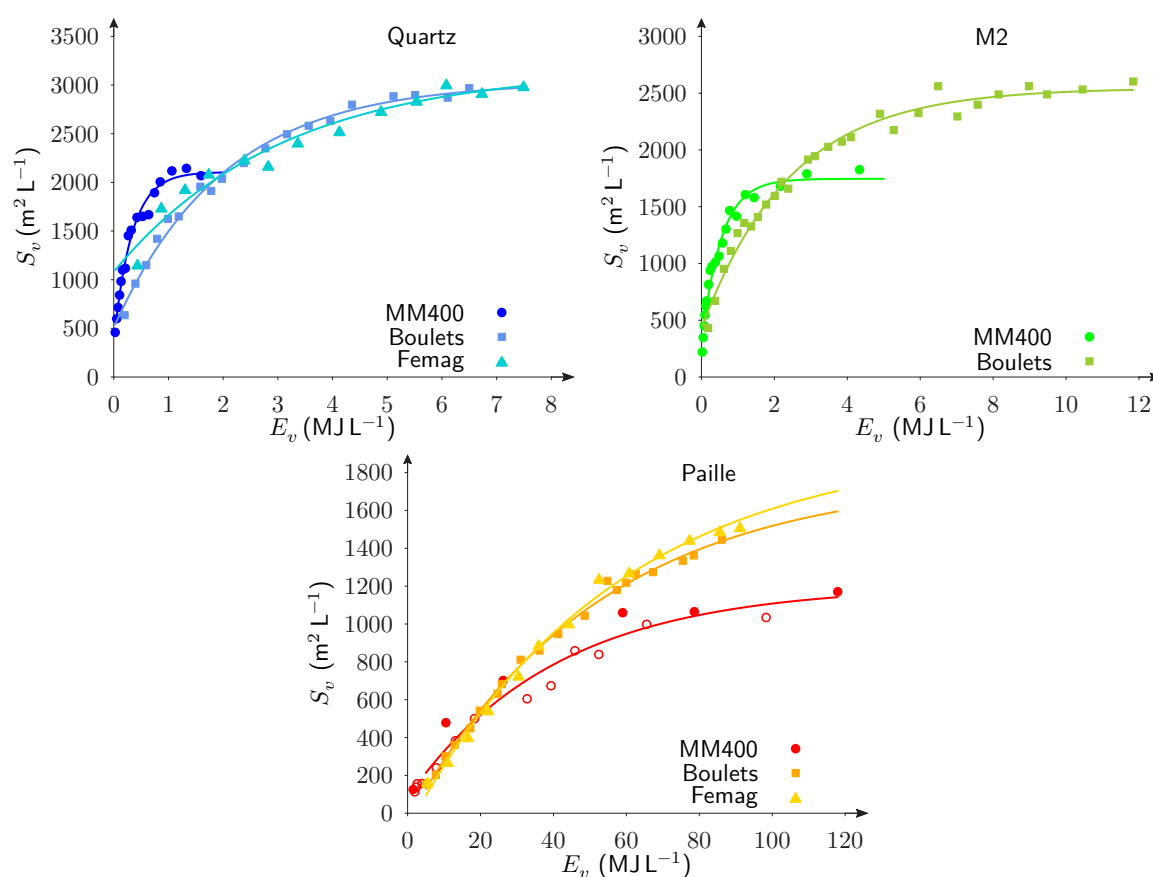


FIGURE 5.13. – Évolution de la surface volumique des trois matériaux en fonction de l'énergie volumique sur les différents broyeurs.

Broyeur	K_1 ($\text{m}^2 \text{MJ}^{-1}$)	K_2/S_0 (L MJ^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
MM400	6377	3.03	2106
Boulets	1508	0.497	3034
Femag	1036	0.326	3172

TABLE 5.12. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour le quartz.

Broyeur	K_1 ($\text{m}^2 \text{MJ}^{-1}$)	K_2/S_0 (L MJ^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
MM400	2966	1.70	1746
Boulets	949	0.373	2546

TABLE 5.13. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour M2.

Les deux minéraux montrent des broyabilités beaucoup plus importantes sur le MM400 que sur les autres broyeurs avec des valeurs de K_1 4.2 à 6.2 fois plus grandes pour le quartz et 3.1 fois plus grandes pour M2. Ceci peut être dû à l'énergie d'impact bien plus importante dans le MM400 que dans les autres broyeurs. Il est possible que pour le broyeur à boulets et le Femag, une partie des

Broyeur	K_1 ($\text{m}^2 \text{MJ}^{-1}$)	K_2/S_0 (L MJ^{-1})	S_f ($\text{m}^2 \text{L}^{-1}$)
MM400	53.66	0.045	1202
Boulets	62.38	0.035	1780
Femag	62.49	0.032	1956

TABLE 5.14. – Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour la paille.

impacts transmis au produit ne soit pas assez énergétiques pour briser les particules. Une partie non négligeable pourrait alors être perdue dans les frottements. A l'opposée, la broyabilité de la paille dans le MM400 est légèrement plus faible. La paille semble donc être broyée plus efficacement à l'aide du cisaillement et du frottement entre les boulets du broyeur à boulets et les billes du broyeur Femag. On peut remarquer également que la valeur de K_2/S_0 dans le MM400 est également plus grande : de 6.1 à 9.3 fois plus grand pour le quartz et 4.6 fois pour M2 que dans les autres broyeurs.

Évolution du taux d'agglomération

L'évolution des taux d'agglomération pour les trois matériaux étudiés au sein des différents broyeurs est tracée en fonction de la surface volumique dans la figure 5.14.

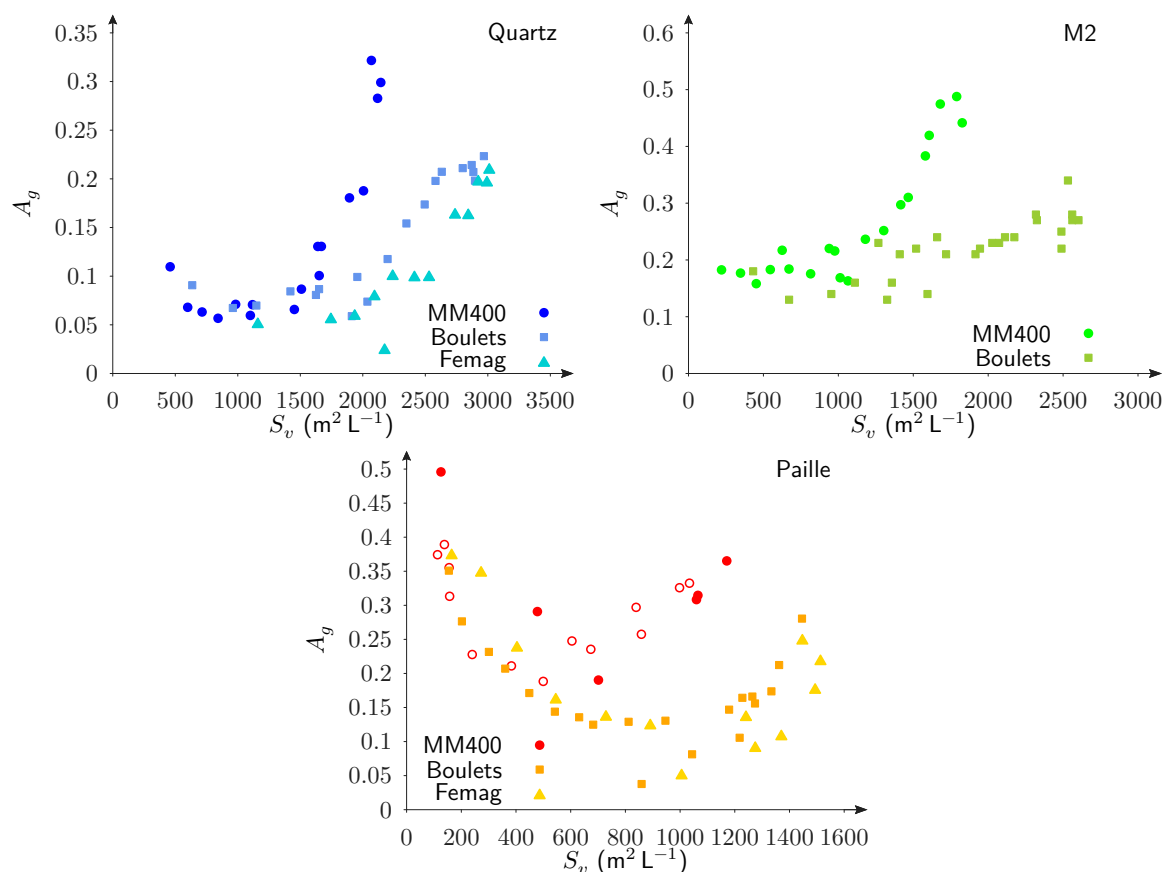


FIGURE 5.14. – Évolution du taux d'agglomération des trois matériaux en fonction de la surface volumique sur les différents broyeurs.

Quelque soit le matériau, l'agglomération est plus importante dans le MM400 que dans les autres broyeurs. Ce résultat est cohérent avec les valeurs de K_2/S_0 observées dans le paragraphe précédent. En effet, nous avons déjà vu dans le chapitre précédent que l'agglomération pouvait être responsable d'une baisse d'efficacité du broyage et donc d'une valeur de K_2/S_0 plus grande. Cela est à mettre en relation avec la valeur d'énergie moyenne de boulets bien plus grande pour le MM400 que pour les autres broyeurs (voir tableau 5.4). Les impacts peuvent alors compacter la poudre et augmenter l'agglomération.

Sur les deux autres broyeurs, les ordres de grandeurs mesurés des taux d'agglomération sont équivalents et inférieurs à ceux du MM400. De la même manière, on peut supposer que le cisaillement et l'attrition de la matière entre les boulets permet d'éviter le compactage de la poudre et diminue l'agglomération.

Pour conclure, l'étude de l'évolution des surfaces volumiques en cours de broyage sur les 3 matériaux et les 3 broyeurs nous a permis de mettre en évidence plusieurs points :

- La paille possède une broyabilité plus faible que les minéraux, probablement à cause de ses propriétés visco-plastiques.
- Le quartz est le matériau qui s'agglomère le moins.
- La cinétique de broyage des minéraux est très rapide mais leur décélération est plus importante.
- La décélération n'est pas directement corrélée au taux d'agglomération.
- La sollicitation d'impact du MM400 semble plus efficace pour la réduction de la taille des minéraux, mais engendre des phénomènes d'agglomération importants.
- Le cisaillement/frottement généré par le broyeur à boulets et du Femag semble être efficace pour broyer la paille et limiter les phénomènes d'agglomération.

5.3. Cobroyages

5.3.1. Cobroyage dans la littérature

Nous présentons ici les différentes applications possibles du cobroyage (broyage simultané) de deux matériaux.

Adjuvant de broyage

Les adjuvants de broyage, généralement sous forme liquide, sont utilisés dans de nombreux secteurs d'activité (cimenterie, production de poudres métalliques, pigment, etc...). dans le but de réduire la consommation énergétique [151] ou d'augmenter la surface finale du produit [152]. Ils sont principalement constitués de composés organiques comme des alcools (phénols, glycols, glycérine...) ou des amines (alkanolamines, triisopropanolamine, triethanolamine, N-méthyl-diisopropanolamine...) [153, 154]. Il a été également rapporté une utilisation d'eau, d'acétone, de noir de carbone, acide sulfonique, stéarate de sodium et aluminium et acide naphthénique [155]. Le mécanisme de fonctionnement de ces adjuvants de broyage n'est pas totalement compris, mais plusieurs hypothèses sont avancées. D'une part, leur grande polarité leur permettrait d'être absorbés sur les surfaces non saturées électriquement créées par des liaisons covalentes fracturées telles que Ca-O, Al-O, et Si-O (présentes dans le sable) [156, 157, 158]. Ils diminueraient les phénomènes d'agglomération et d'adhésion de la poudre et augmenteraient de fait sa coulabilité [159, 160, 161, 162], ainsi que la probabilité pour la poudre de se retrouver dans la zone de broyage [163]. Néanmoins, ajoutés en

trop grande quantité, cette amélioration de la coulabilité peut s'avérer néfaste pour le broyage car elle lubrifie le mouvement entre les grains et diminue ainsi les contraintes de cisaillement appliquées aux particules [158].

En plus de diminuer les forces électrostatiques, les agents de mouture pourraient diminuer les forces de van der Waals (principales forces d'interactions inter-particules [164]) en jouant le rôle de dispersant et en éloignant physiquement les particules les unes des autres par la création d'une couche d'adjuvants à la surface des particules [154]. Il a été observé lors de simulations numériques, une diminution de l'énergie nécessaire pour casser des agglomérats avec des adjuvants de broyage [154]. Cependant, la quantité absorbée à la surface des particules atteint une limite, celle de la tension de surface de l'adjuvant [154].

Dans le cas du broyage des métaux, Westwood a avancé l'hypothèse que l'altération de la structure des métaux par les adjuvants de broyage près de la surface bloquerait les mouvements de dislocations à la surface des grains, rendant la fracturation plus aisée [165, 166].

Enfin, l'absorption des agents de mouture à la surface d'un matériau diminuerait son énergie surfacique, le rendant plus sensible à l'usure et à l'attrition [167], et de manière plus générale à la fracturation. Néanmoins, cette diminution de la contrainte à la rupture ne semble être présente que pour de lentes vitesses de propagation de fissure, ce qui n'est habituellement pas le cas dans le broyage. Par ailleurs, certains résultats remettent en cause cette hypothèse [163].

Si les adjuvants de broyage ont tendance à faciliter la fragmentation des matériaux, il a également été reporté une augmentation de l'étendue de la distribution granulométrique lors de leur utilisation.

Media broyant

Des media broyants de l'ordre de la dizaine de cm à quelques millimètres sont très utilisés dans le broyage. Ils se retrouvent sous la forme de boulets, billes ou barres, métalliques ou céramiques, dans une grande variété de broyeurs. L'usage d'une poudre d'un matériau différent ayant le rôle de media broyant relève du cobroyage, et est plus rare. Une amélioration de la réduction de taille de la biomasse par usage d'une poudre minérale a été proposée dans des brevets [168, 169], et l'amélioration du broyage de matière lignocellulosique a déjà été observé pour le broyage de la paille de blé et de la sciure de pin avec différents minéraux [170], ainsi que lors du broyage de charbon et d'eucalyptus [171]. Cette aide au broyage de la lignocellulose permettrait notamment d'améliorer l'extraction de molécules de lignine [172] et d'améliorer les rendements pour la production de bioénergie [173].

Mélange de poudres

Le cobroyage peut également être utilisé pour renforcer les interactions entre particules et l'homogénéité d'une formulation en supprimant une étape de mélange post-broyage de poudres. Ces interactions plus fortes peuvent être recherchées pour plusieurs applications, comme par exemple la production de médicaments. Dans ce cas, une plus forte interaction entre les différents constituants peut permettre d'accélérer ou ralentir la diffusion du principe actif [174, 175], ou d'améliorer les propriétés de dispersion et de flottabilité des aérosols [176].

Le cobroyage a également été étudié pour la production de composites à bases de matrice polymérique chargés avec différents type de renforts. Dans ce cas, l'insertion des charges a pour but d'améliorer les propriétés mécaniques de films. Néanmoins, le manque d'homogénéité du mélange, et le manque de compatibilité entre la matrice et les charges peut provoquer une fragilisation du

composite [177, 178]. L'utilisation du cobroyage, en augmentant les interactions entre les différents constituants, permet de résoudre en partie ces problèmes [179, 180, 181, 182].

La production d'alliage métallique par cobroyage a également été étudiée [183]. Les buts recherchés sont l'alliage de métaux non miscibles et/ou l'obtention d'une micro structure à une échelle très fine [184]. Les constituants métalliques sont soumis à des impacts de fortes énergies pendant une longue durée de broyage, permettant aux très fines particules de se souder entre elles. Bien que la méthode puisse être appelée "soudage à froid" car la poudre n'est pas chauffée, il y a tout de même un échauffement local très élevé à l'interface entre les particules au moment du choc. La poudre finale a également l'avantage de posséder une distribution granulométrique très resserrée, les phénomènes de fracturations et d'agglomération étant à l'équilibre [185]. En suivant une méthodologie assez similaire, la production de polymères par co-broyage, a également été investiguée [186].

5.3.2. Cobroyage Minéral/Paille

Dans chaque broyeur et chacun des couples minéral/paille, plusieurs cobroyages ont été réalisés avec différentes proportions volumiques de chaque constituant. Les volumes considérés sont les volumes apparents de chaque matière première avant le broyage. Le volume apparent total est gardé constant pour que le volume initial de poudre soit identique à celui des broyages de matériaux purs. Les mélanges testés comportent 25, 50, 75 et 95% de minéral. Par la suite, ils seront notés respectivement 25/75, 50/50, 75/25 et 95/5. Les cobroyages M2/Paille n'ont pas été réalisés sur le broyeur Femag car la dureté importante de M2 risquait d'abîmer la cuve du broyeur.

Théoriquement, si aucune interaction n'existait entre les particules, alors la surface volumique d'un cobroyage serait le résultat d'une loi de mélange entre les deux matériaux purs :

$$S_v^{mel}(t) = \frac{V_p}{V_p + V_m} S_v^p + \frac{V_m}{V_p + V_m} S_v^m \quad (5.7)$$

avec S_v^{mel} , S_v^p et S_v^m la surface volumique du mélange, de la paille et du minéral respectivement. V_p et V_m sont les volumes vrais de poudre de paille et de minéral insérés dans les broyeurs.

Cobroyage sur le broyeur MM400

Les figures 5.15 et 5.16 présentent l'évolution des surfaces théoriques et expérimentales des différentes formulations (S_v^{mel}) sur le MM400 en fonction de l'énergie volumique de broyage. Logiquement, plus on ajoute du minéral, plus le broyage accélère et se rapproche de celui du minéral pur.

Bien que les cobroyages 25/75 et 50/50 semblent suivre les tendances prédites par les lois de mélanges, ce n'est pas le cas des cobroyages 75/25 et 95/5 qui présentent des surfaces finales bien plus élevées que celles des minéraux purs, comme on peut le voir dans les tableaux 5.15 et 5.16.

Les valeurs de K_1 des cobroyages se situent entre celles de la paille et du minéral pur (autour de $400 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1} \text{ MJ}^{-1}$ pour le quartz et $300 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1} \text{ MJ}^{-1}$ pour M2). Pour les cobroyages de quartz (excepté le 25/75), et pour les cobroyages avec 95 et 75% de M2, les K_1 sont inférieurs à ceux obtenus par loi de mélange, traduisant le fait que la paille vient gêner le broyage du minéral en jouant sans doute le rôle d'un "amortisseur" d'impact. Pour les broyages avec 25 et 50% de M2, ainsi qu'avec 25% de quartz, les valeurs de K_1 sont plus élevées. Ceci peut être expliqué par l'effet du minéral qui, en impactant et abrasant les particules de paille, facilite alors leur broyage.

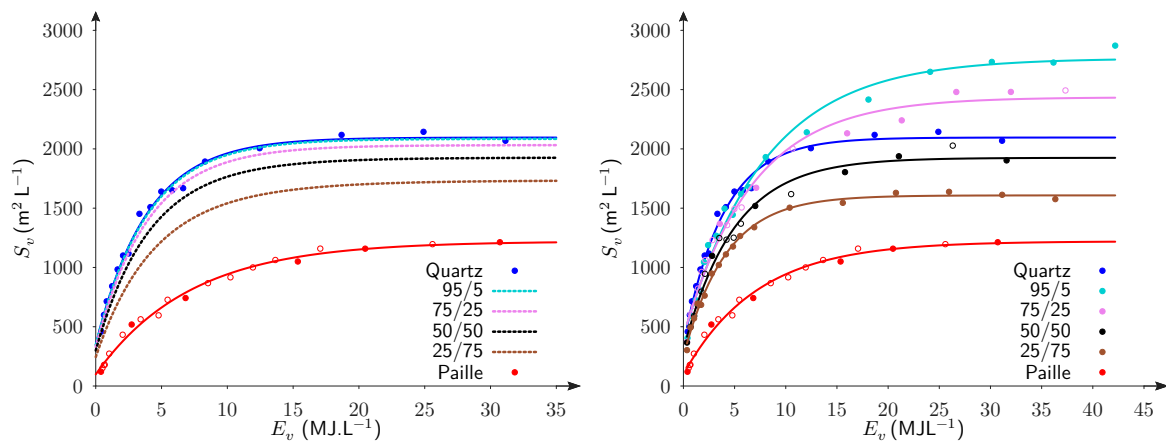


FIGURE 5.15. – Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur MM400.

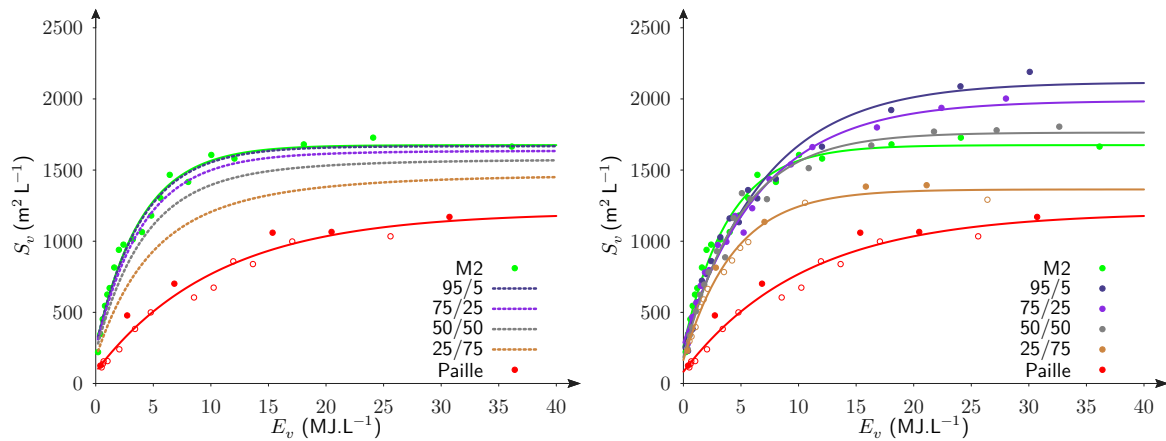


FIGURE 5.16. – Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages M2/Paille sur le broyeur MM400.

Cobroyages	Cobroyage			Mélange		
	K_1	K_2/S_0	S_f	K_1	K_2/S_0	S_f
Quartz	539.2	0.257	2096			
95/5	351.4	0.127	2764	534.5	0.257	2082
75/25	364.5	0.150	2435	512.1	0.254	2018
50/50	390.0	0.203	1925	467.1	0.247	1889
25/75	392.3	0.244	1608	385.1	0.232	1661
Paille	170.3	0.140	1220			

TABLE 5.15. – Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'interpolation de l'évolution de S_v en fonction de l'énergie volumique pour les cobroyages de quartz sur le MM400.

Des tendances inverses à celles du K_1 sont observées pour les valeurs de K_2/S_0 . La paille semble faire baisser le ratio K_2/S_0 . Ceci est d'autant plus marqué que le taux de paille est faible, avec une valeur de K_2/S_0 minimale pour les plus fortes quantités de minéral. De plus, excepté

	Cobroyage			Mélange		
Cobroyages	K_1	K_2/S_0	S_f	K_1	K_2/S_0	S_f
M2	428.5	0.256	1675			
95/5	303.8	0.143	2118	424.0	0.255	1663
75/25	292.7	0.147	1987	402.2	0.251	1602
50/50	360.6	0.204	1764	360.8	0.242	1490
25/75	313.5	0.230	1364	286.0	0.221	1295
Paille	114.1	0.095	1202			

TABLE 5.16. – Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'interpolation de l'évolution de S_v en fonction de l'énergie volumique pour les cobroyages de M2 sur le MM400.

pour les ratios 25/75, ces valeurs sont inférieures à celles obtenues par loi de mélange, traduisant probablement un effet désagglomérant de la paille. Cela est également observable sur la figure 5.17 où à partir d'une surface de $1000 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1}$, l'agglomération des ratios 95/5 et 75/25 de M2 est bien inférieure à celle du minéral pur. Cet effet n'est pas visible lors du cobroyage de quartz, mais il est possible que les agglomérats supprimés en présence de 5 ou 25% de paille, soient dispersés sans ultrasons lors de la mesure de la granulométrie du quartz pur.

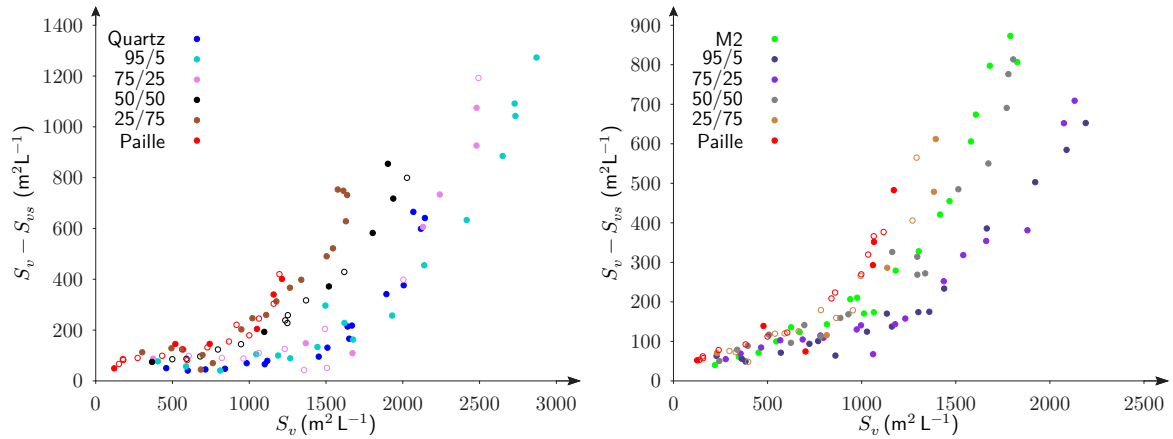


FIGURE 5.17. – Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur le broyeur MM400.

L'agglomération peut également se manifester par le colmatage du media broyant ou de la cuve de broyage, i.e. par le recouvrement de la bille et du bol par la poudre. Une manière d'estimer ce colmatage est de peser la bille et le bol de broyage après avoir vidangé le broyeur, et d'en déduire la quantité de poudre qui reste collée. Un indice de colmatage I_c a été défini selon l'équation :

$$I_c = 1 - \frac{m_b^{av} - m_b^{ap}}{m_p} \quad (5.8)$$

avec m_b^{ap} et m_b^{av} la masse de l'ensemble bol+bille+produit après et avant vidange et m_p la masse de produit. Un indice $I_c = 1$ signifie que l'ensemble du produit est resté collé à la bille et aux parois du bol. A l'inverse, un indice $I_c = 0$ implique que la totalité du produit s'est détachée.

La mesure de cet indice est dépendante de l'opérateur, car selon la manière dont le bol de broyage a été vidangé, (en l'agitant, avec des chocs, en grattant les parois, etc..) la quantité de

poudre restant collée peut varier. Néanmoins, il s'agit d'un indice qualitatif dont l'objectif est d'identifier si des différences marquées existent entre les broyages.

Ici, l'indice de colmatage a été mesuré pour une durée de broyage de 75 min pour un nombre de broyages compris entre 3 et 6. La vidange a été réalisée uniquement par gravité, en retournant simplement les bols de broyages.

La figure 5.18 présente l'évolution de ces indices de colmatage pour les différents cobroyages. La paille semble être le matériau qui colmate le moins, suivie de près par le quartz. M2 colmate quasiment entièrement la bille et les parois du bol. Cela semble être en adéquation avec les observations faites sur l'agglomération des broyages purs de la figure 5.11, puisque à 75 min de broyage le taux d'agglomération A_g est égal à 0.32 pour le quartz, 0.35 pour la paille et 0.46 pour M2.

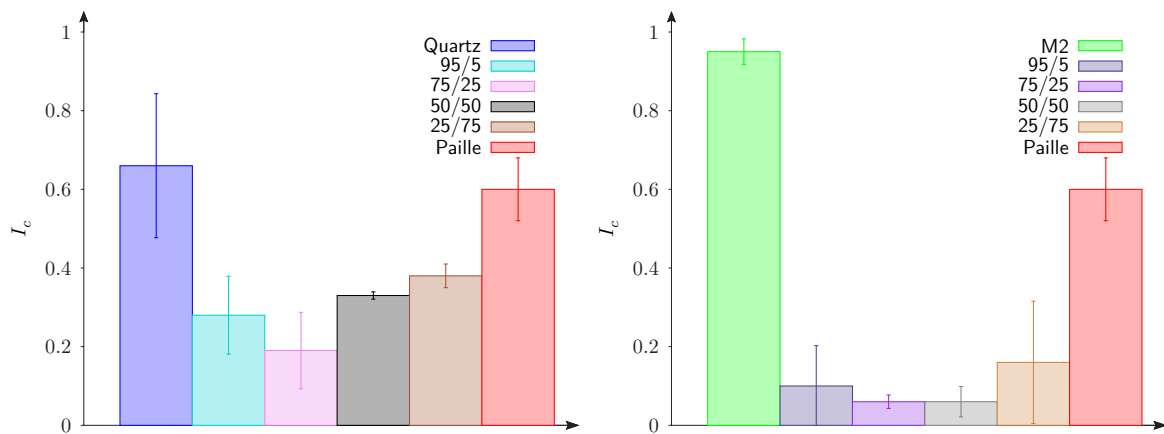


FIGURE 5.18. – Coefficient de colmatage pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) à 75 min de broyage sur le MM400. Les barres d'erreurs représentent les écart-types des mesures.

Les différents cobroyages présentent des indices de colmatage plus faibles que les broyages purs, avec un minimum de 0.06 pour les cobroyages 50/50 et 75/25 de M2, et 0.19 pour le cobroyage 75/25 de quartz. Ce phénomène peut avoir plusieurs origines. Premièrement, il est possible que les particules de minéral et de paille ne s'agglomèrent pas facilement entre elles, et qu'en diluant chacun des constituants, la poudre soit globalement moins agglomérée. Deuxièmement, il est possible que certains extractibles de la paille puissent jouer le rôle d'adjuvant de broyage pour le broyage des minéraux. Ceci expliquerait notamment le fait qu'une très faible quantité de paille baisse de manière flagrante l'indice de colmatage, notamment pour M2 (avec 5% de paille, I_c passe de 0.95 à 0.10).

Cobroyage sur le broyeur à boulets et Femag

L'effet du cobroyage est différent dans ces deux broyeurs en comparaison du broyeur MM400. En effet, ici les cobroyages présentent des valeurs de K_1 et de K_2/S_0 plus élevées que celles des broyages de minéraux purs (cf tableau 5.17 à 5.19). Concrètement, cela signifie que l'augmentation de surface spécifique volumique en début de broyage est plus importante, mais que la diminution de l'efficacité du broyage est également plus rapide, engendrant un ralentissement rapide des cinétiques comme cela est observable sur les figures 5.19 à 5.21.

Au sein de ces deux broyeurs, les impacts sont moins importants et le frottement/cisaillement est plus présent. Il est donc probable que le rôle d'amortisseur de choc rempli par la paille soit moins marqué, perturbant peu le broyage du quartz et ne diminuant pas les valeurs de K_1 .

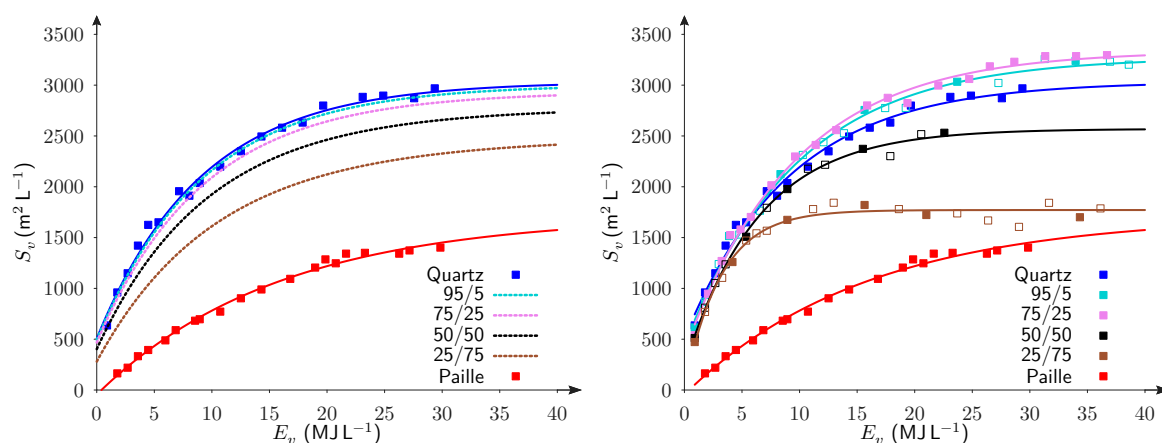


FIGURE 5.19. – Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur à boulets.

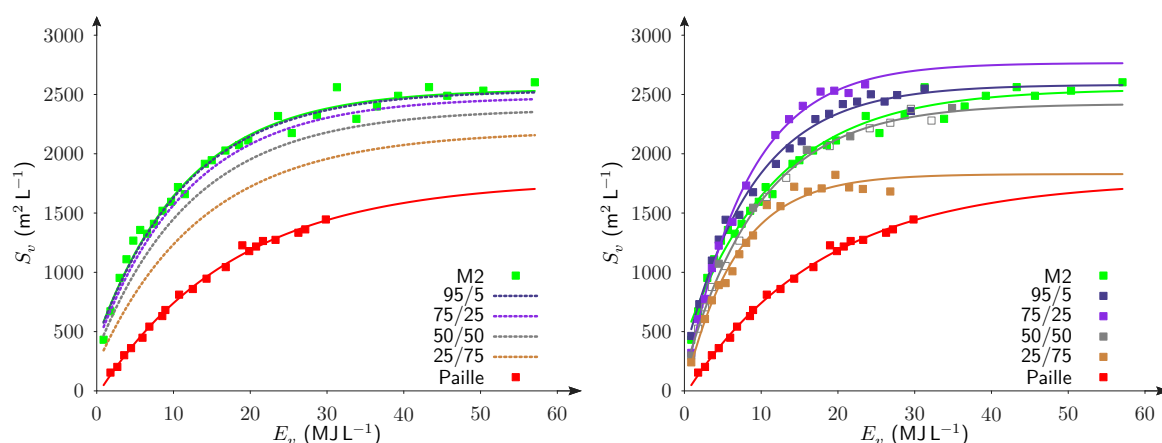


FIGURE 5.20. – Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages M2/Paille sur le broyeur à boulets.

En revanche, le rôle de media broyant du quartz sur la paille semble maximisé. En effet, pour les cobroyages quartz/paille, plus la part de paille augmente, plus K_1 augmente (K_1 égal à $555 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1} \text{ MJ}^{-1}$ pour 25/75 contre $334 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1} \text{ MJ}^{-1}$ pour le quartz pur). Pour M2, les tendances observées sur le K_1 sont moins claires. Cependant, d'une manière générale, les valeurs de K_1 sont plus élevées qu'en théorie ; ce qui peut être expliqué par les mêmes hypothèses que celles précédemment évoquées.

Les valeurs de K_2/S_0 des cobroyages sont également plus élevées que celles obtenues en théorie, et également pour les broyages de minéral pur. Cela traduit probablement l'arrêt du rôle de media broyant joué par le minéral à partir d'une certaine surface. En effet, la paille étant un matériau hétérogène, les interfaces entre les différentes structures de la paille sont autant de fragilités pouvant faciliter leur broyage. En-dessous d'une certaine taille (liée à la structure histologique de la paille), ces défauts sont résorbés et les particules deviennent plus difficiles à fragmenter. Les contraintes exercées par les particules de quartz, dont la taille a également diminué, ne sont plus suffisantes pour contribuer au processus de broyage. En revanche, le broyage des particules de quartz est toujours gêné par la présence des particules de paille. La surface finale atteinte est donc liée à l'arrêt de la

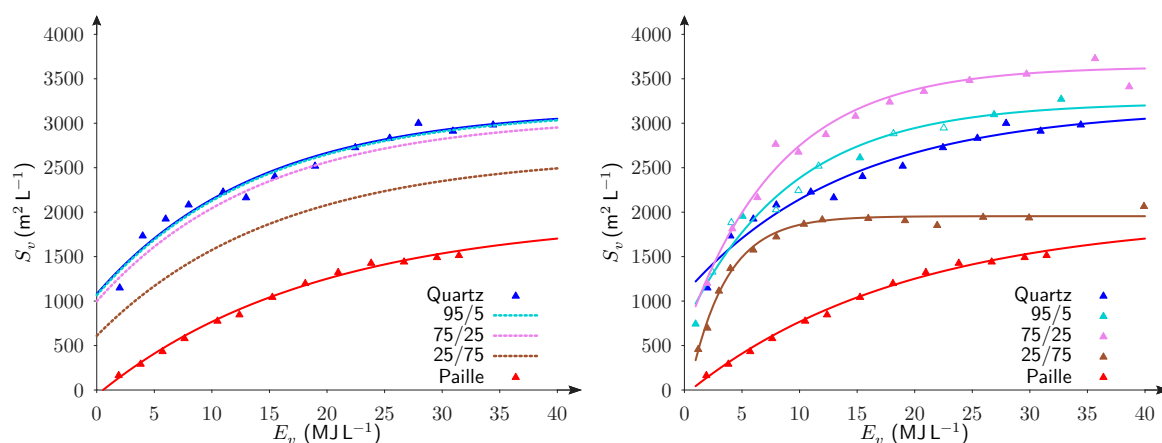


FIGURE 5.21. – Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur Femag.

diminution en taille des particules de paille, et la valeur de K_2/S_0 est d'autant plus élevée que la broyabilité est élevée au départ.

	Cobroyage			Mélange		
Cobroyages	K_1	K_2/S_0	S_f	K_1	K_2/S_0	S_f
Quartz	333.9	0.110	3034			
95/5	336.4	0.103	3275	328.0	0.109	3003
75/25	350.9	0.105	3337	314.7	0.107	2932
50/50	397.7	0.155	2570	284.2	0.103	2768
25/75	555.4	0.314	1771	229.5	0.093	2463
Paille	108.7	0.063	1713			

TABLE 5.17. – Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de quartz en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur à boulets.

	Cobroyage			Mélange		
Cobroyages	K_1	K_2/S_0	S_f	K_1	K_2/S_0	S_f
M2	217.2	0.085	2546			
95/5	288.6	0.112	2583	215.2	0.085	2534
75/25	343.6	0.124	2766	205.2	0.083	2478
50/50	247.0	0.102	2421	187.3	0.079	2374
25/75	268.1	0.147	1829	157.3	0.072	2188
Paille	99.9	0.056	1777			

TABLE 5.18. – Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de M2 en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur à boulets.

Les figures 5.22 et 5.23 présentent l'évolution de la surface libérée par les ultrasons en fonction de la surface spécifique volumique sur les différents cobroyages.

Logiquement, puisque l'agglomération des matériaux purs est moins élevée dans ces broyeurs que sur le MM400 (cf figure 5.14), l'effet désagglomérant de la paille est moins marqué pour M2

	Cobroyage			Mélange		
Cobroyages	K_1	K_2/S_0	S_f	K_1	K_2/S_0	S_f
Quartz	225.4	0.071	3172			
95/5	350.6	0.108	3233	223.7	0.071	3156
75/25	447.1	0.123	3638	215.4	0.070	3075
25/75	609.1	0.312	1955	170.6	0.065	2632
Paille	103.2	0.053	1941			

TABLE 5.19. – Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de quartz en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur Femag

et même non visible pour le quartz.

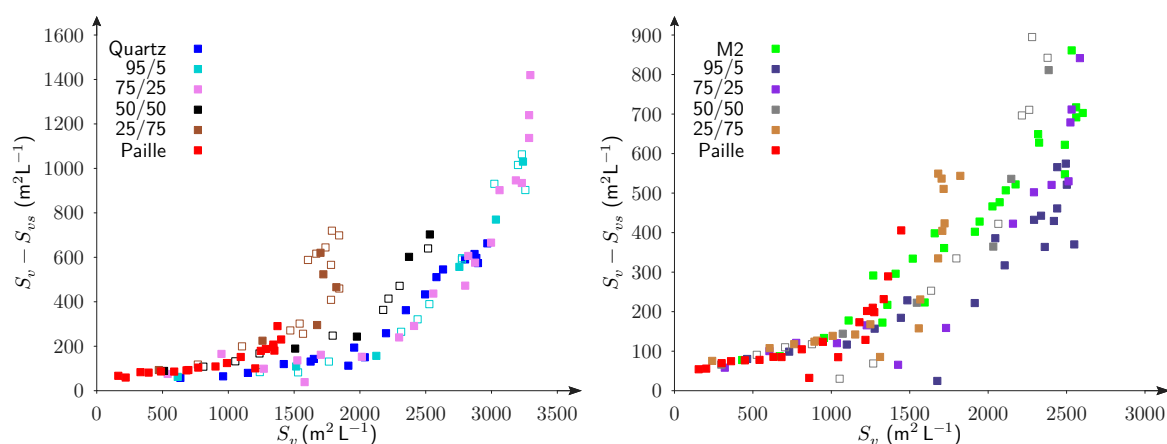


FIGURE 5.22. – Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur le broyeur à boulets.

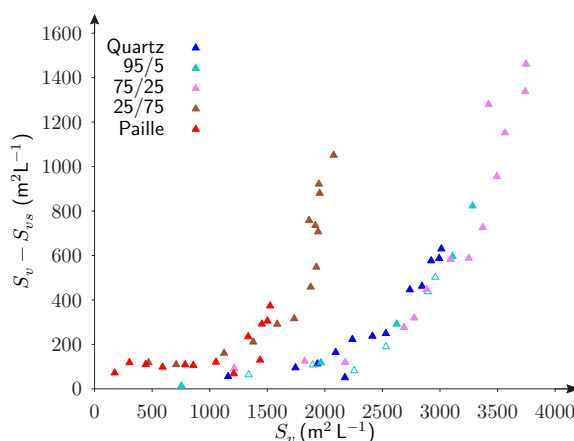


FIGURE 5.23. – Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur Femag.

En résumé, les différents facteurs d'interactions entre les particules influençant l'évolution de surface au cours du broyage sont :

- Effet amortisseur de la paille
- Effet media broyant du quartz
- Effet désagglomérant de la paille

Ces effets sont par ailleurs maximisés par la sollicitation mécanique générée par les broyeurs : plus le frottement/cisaillement est important et plus l'effet media broyant du quartz est important. Plus l'impact est présent, plus l'effet amortisseur et désagglomérant de la paille est marqué.

5.3.3. Production d'une poudre cobroyée

Au vu des gains de surfaces finales obtenues en situation de cobroyage, en comparaison à celle d'un mélange, le cobroyage peut être envisagé pour produire une poudre constituée de deux matériaux. L'intérêt est alors de produire une poudre avec une surface plus importante pour une énergie donnée, ou de produire une poudre d'une surface donnée pour une consommation énergétique moindre.

La conjugaison des phénomènes d'interactions entre les particules (effet amortisseur et désagglomérant de la paille, effet broyant du quartz) entraîne un gain de surface, ou au contraire, une perte de surface, par cobroyage par rapport au mélange théorique des deux matériaux broyés séparément. En guise d'exemple, les différences de surfaces volumiques sur la figure 5.24 entre les cobroyages et les mélanges théoriques sont tracées pour le cobroyage Quartz/Paille sur MM400 et M2/Paille sur broyeur à boulets.

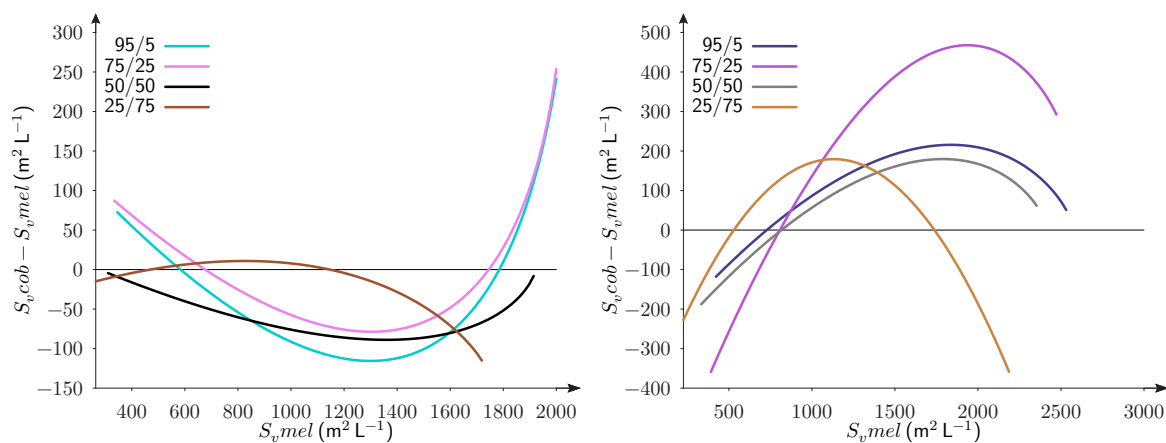


FIGURE 5.24. – Différence de surface volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur MM400 (à gauche) et M2/Paille sur broyeur à boulets (à droite).

Deux formes de courbes sont visibles. Une courbe convexe traduit la diminution de la broyabilité des minéraux par la paille et l'effet désagglomérant de celle-ci en fin de broyage. Elle est observée surtout pour les forts taux de minéraux et sur le MM400, où l'agglomération est la plus importante. Dans ces cas, le cobroyage est désavantagé par rapport à une situation de mélange, en milieu et parfois en début de broyage. Les différences de surface observées peuvent aller jusqu'à $100 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1}$ pour le quartz 95/5, pour une surface théorique de $1300 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1}$. La tendance s'inverse ensuite quand l'effet désagglomérant de la paille rentre en jeu, avec des gains de surface pouvant dépasser les $300 \text{ m}^2 \text{ L}^{-1}$. Dans le cas du cobroyage avec des plus faibles taux de minéraux, l'effet désagglomérant de la paille ne suffit pas à compenser la gêne occasionnée en début de broyage, et la surface obtenue par cobroyage est toujours plus faible que celle obtenue par mélange.

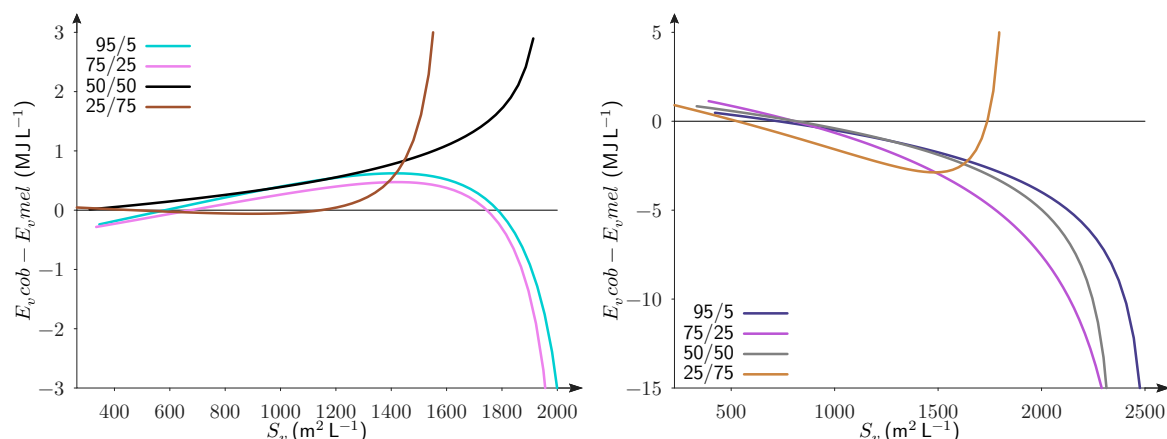


FIGURE 5.25. – Différence d'énergie volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur MM400 (à gauche) et M2/Paille sur broyeur à boulets (à droite).

Au contraire, une courbe concave traduit principalement l'effet de media broyant du quartz et désagglomérant de la paille, ce qui engendre des gains en début et milieu de broyage. L'atteinte de la taille limite en cobroyage plus tôt qu'en théorie ainsi que l'arrêt de l'effet positif du quartz resserre ensuite les écarts et fait diminuer la courbe. Dans ces cas, les plus faibles taux de paille restent les plus intéressants, même si le gain maximum est plutôt visible en milieu qu'en fin de broyage. Les cobroyages 25/75 présentent uniquement un intérêt pour des surfaces volumiques intermédiaires où l'effet broyant du quartz est sans doute maximal.

La figure 5.25 présente les différences d'énergies volumiques offertes par le cobroyage pour une surface donnée. Lorsque l'écart est positif, le cobroyage consomme plus d'énergie que l'obtention d'un mélange de poudres broyées individuellement et inversement.

Ainsi, les forts taux de paille ne sont intéressants énergétiquement qu'en milieu de broyage, où le gain peut dépasser les 2 MJ L^{-1} pour le 25/75 du quartz sur le broyeur à boulets. Les faibles taux de paille sont en revanche plus intéressants, les gains énergétiques augmentant au fur et à mesure que la surface finale ciblée du produit augmente, notamment car celle-ci est atteinte plus rapidement en cobroyage. Les courbes tendent ensuite vers l'infini, car les surfaces voulues ne peuvent pas être atteintes en mélange.

Les surfaces S_1 et S_2 , entre lesquelles il y a un gain énergétique par cobroyage, sont reportées dans les tableaux 5.20 à 5.22. Pour les cobroyages Quartz/Paille sur le MM400, seuls les taux 95/5 et 75/25 sont intéressants. Tous les autres cobroyages présentent un intérêt sur une plage donnée de surface spécifique volumique. Les forts taux de minéraux ont une surface minimum à partir de laquelle le cobroyage est intéressant jusqu'à atteindre la finesse maximale de la poudre.

Cobroyages MM400	Quartz		M2	
	S_1	S_2	S_1	S_2
95/5	1784	-	1425	-
75/25	1739	-	1347	-
50/50			600	-
25/75			337	-

TABLE 5.20. – Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages du MM400.

	Quartz		M2	
Cobroyages broyeur à Boulets	S_1	S_2	S_1	S_2
95/5	1269	-	728	-
75/25	978	-	807	-
50/50	828	2462	816	-
25/75	479	1725	529	1738

TABLE 5.21. – Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages du broyeur à boulets.

Cobroyages Femag	S_1	S_2
95/5	1546	-
75/25	1275	-
25/75	893	1943

TABLE 5.22. – Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages Quartz/Paille du broyeur Femag.

Les surfaces limites atteignables en situation de cobroyage sont observables sur les figures 5.26 à 5.28. Pour les cobroyages 25/75, bien que des gains énergétiques existent pour une certaine gamme de surface, la surface maximale atteignable par cobroyage est toujours plus faible que la surface théorique, ce qui en limite l'intérêt lorsque une grande finesse est recherchée pour le produit.

En revanche, les surfaces finales obtenues avec des forts taux de minéraux sont toujours plus importantes que celles des mélanges théoriques, quelque soit le broyeur et le matériau. Les écarts sont particulièrement importants sur le MM400, broyeur qui présente les plus forts taux d'agglomérations.

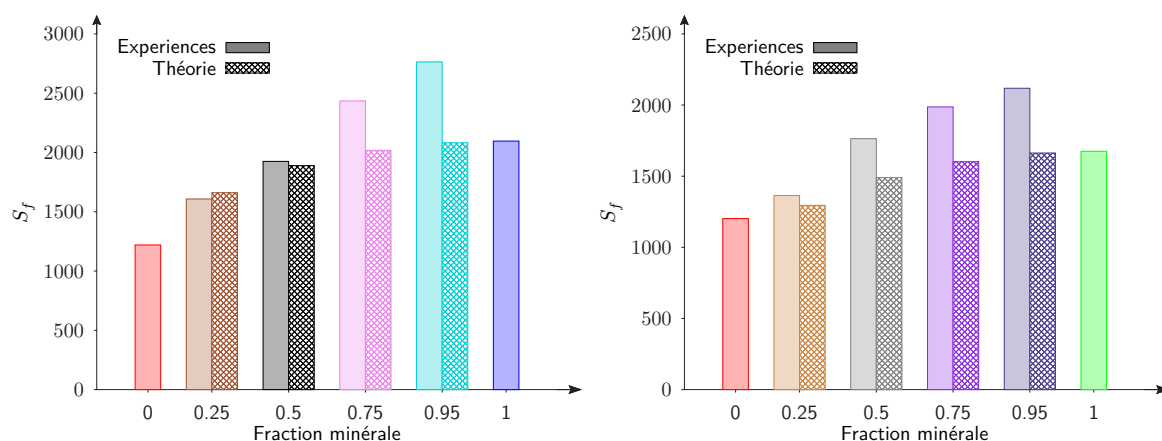


FIGURE 5.26. – Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur MM400.

Ces résultats montrent que la production d'une poudre cobroyée est envisageable, puisque qu'elle peut permettre d'obtenir des gains de surfaces et d'énergies conséquents. Néanmoins, selon les mélanges, les gains ne sont observables que dans une plage de finesse cible. Cette plage est le

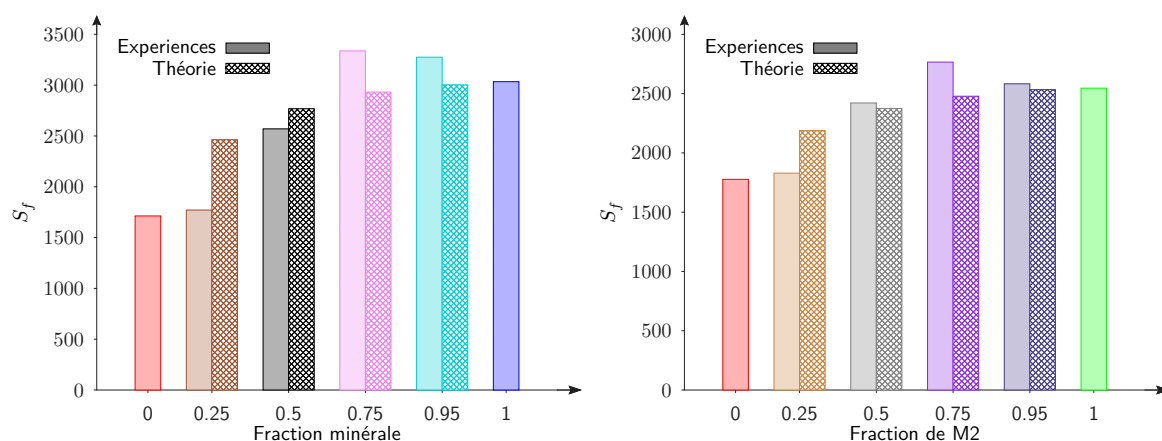


FIGURE 5.27. – Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur broyeur à boulets.

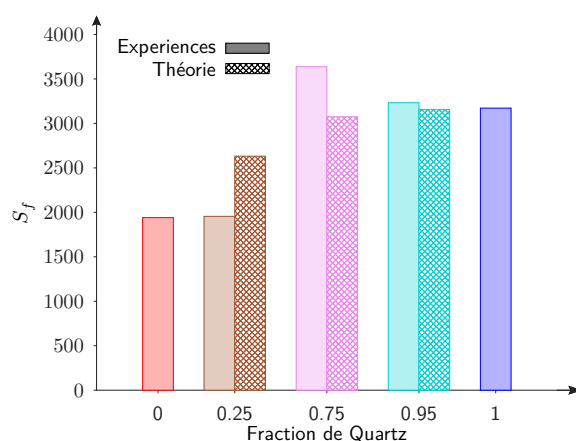


FIGURE 5.28. – Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille sur le broyeur Femag.

résultat de la balance existant entre les différents effets positifs et négatifs de l'interaction entre les particules de différents matériaux.

5.3.4. Adjuvant de broyage

Au vu des gains importants offerts par un faible ajout de paille dans le broyage d'un minéral, notamment sur le broyeur MM400, il semblerait que la paille puisse jouer le rôle d'adjuvant lors du broyage de minéraux comme pour le quartz et M2.

Nous avons donc étudié, en plus du cobroyage 95/5 déjà existant, le broyage de M2 dans le MM400 avec 4, 3, 2 et 1% de volume de paille représentant 0.7 à 0.16% de la masse totale de produit.

Dans ces cas, la consommation énergétique E est exprimée par unité de masse de M2 produite (E_m). En effet, le but est ici de produire une poudre de M2, et seule la masse de M2 est intéressante d'un point de vue applicatif. À noter que le volume et la masse de paille représentent des quantités négligeables dans ces cas.

Sur la figure 5.29, l'augmentation de la surface spécifique volumique de M2 est tracée en fonction de E_m . Les cobroyages 95/5, 96/4 et 97/3 semblent avoir le même comportement et

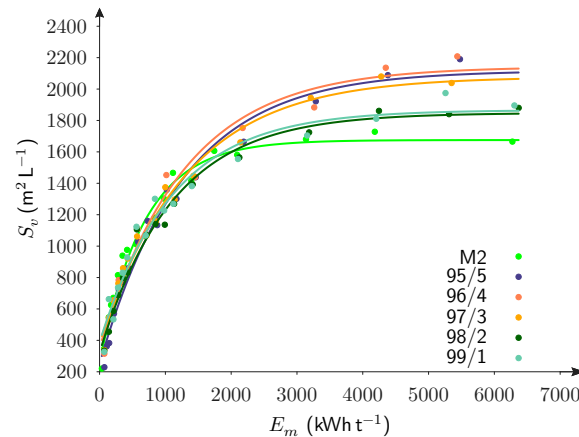


FIGURE 5.29. – Évolution de la surface volumique en fonction de l'énergie massique de M2 pour de très faibles taux de paille sur le MM400.

présentent les gains de surfaces les plus importants (avec un gain de surface en fin de broyage allant jusqu'à 28%). Les cobroyages 98/2 et 99/1 présentent des gains plus faibles, avec une surface de 11 % plus importante obtenue en comparaison au broyage de M2 pur.

Les différences entre les cobroyages restent difficiles à expliquer. Cependant, il est possible qu'au vu de la très faible quantité de paille insérée, la variabilité de la paille puisse jouer un rôle sur les valeurs mesurées. Néanmoins, il est intéressant de noter qu'un effet de la paille est visible même en descendant à 3% voire 1% de fraction volumique de paille. La répétabilité de ces résultats reste bien sûr à confirmer, mais l'effet semble bien visible dès l'ajout 1% de paille (cf. figure 5.30).

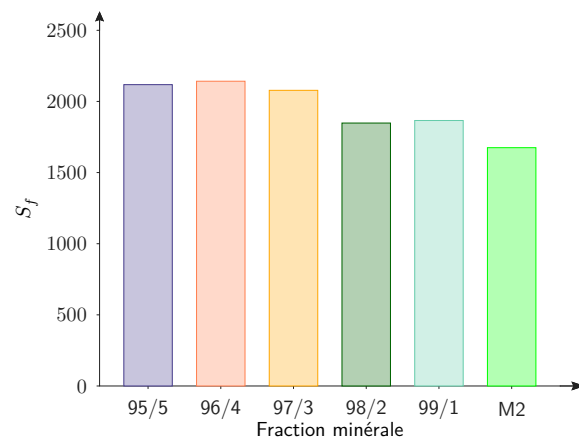


FIGURE 5.30. – Surfaces finales des broyages de M2 avec de très faibles quantités de paille sur le MM400.

Au vu de la très faible quantité de paille, il paraît évident que l'effet de la paille sur le broyage du minéral n'est pas mécanique. Une des hypothèses envisagées est le rôle de l'eau contenue dans la paille, qui, pendant le broyage, serait relâchée dans le broyeur et agirait comme un adjuvant de broyage. Ici, le taux d'humidité de la paille insérée dans le broyeur est compris entre 3 et 4% ce qui pour le cobroyage 95/5 représente une quantité comprise entre 0.8 et 3.6 μL d'eau.

À titre indicatif, des tests ont été effectués en insérant plusieurs quantités d'eau. La taille des pipettes disponibles ne permettant pas d'insérer dans le broyeur moins de 35 μL d'eau, cette quantité a été retenue comme quantité minimale. Sur la figure 5.31 l'augmentation de surface spécifique volumique avec l'eau est tracée.

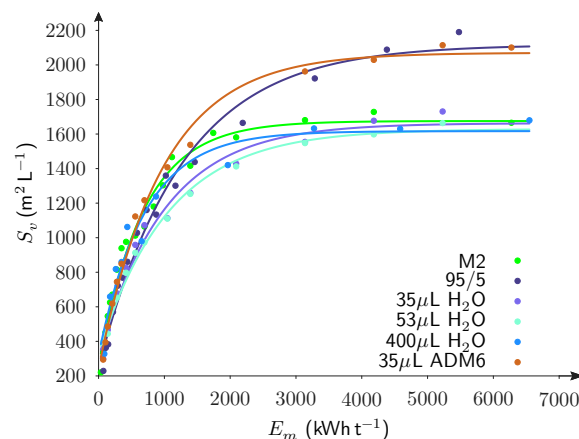


FIGURE 5.31. – Évolution de la surface volumique en fonction de l'énergie massique de M2 avec de l'eau et l'adjuvant de broyage ADM6 sur le MM400.

L'eau semble ralentir la cinétique de broyage de M2 et ne semble pas avoir d'effet sur la surface finale, qui est dans ce cas équivalente à celle du broyage pur. Ici aussi, ces résultats seraient à confirmer avec l'ajout de quantité d'eau inférieure, mais il semblerait que le rôle d'adjuvant de broyage de la paille ne soit pas lié à la teneur en eau. Néanmoins, les extractibles présents dans la paille pourraient modifier l'effet de l'eau contenue dans la paille sur le broyage.

Pour comparer l'effet de la paille avec un adjuvant de broyage traditionnel, une cinétique de broyage de M2 a été réalisée en insérant 35 μL de l'adjuvant ADM 6 de Chryso®. Cet adjuvant est classiquement utilisé lors du broyage des minéraux. Sur la figure 5.31, l'effet de l'adjuvant semble être similaire à celui de la paille. L'écart entre les deux courbes peut probablement s'expliquer par la variabilité des mesures mais aussi de la matière première, chaque point représentant une mesure obtenu sur un broyage différent.

Les surfaces finales des différents essais réalisés sont résumées sur la figure 5.32. Il apparaît qu'en terme de surface finale, l'effet de l'eau semble négligeable, tandis que celui de l'ADM6 semble comparable à la paille.

Conclusion

Cette étude sur le broyage et le cobroyage de sable de quartz et de M2 avec de la paille de blé nous a permis de tirer plusieurs conclusions.

Nous avons tout d'abord montré que les différentes matières premières présentaient des broyabilités très différentes. Si celles des minéraux restent assez proches, la paille présente un comportement très différent, avec une broyabilité beaucoup plus faible. Ceci est à mettre en relation avec sa structure et ses propriétés visco-plastiques. Par ailleurs, nous avons également montré que les mécanismes d'agglomération au cours du broyage sont dépendants à la fois de la nature de la matière première et du type de broyeur. Ainsi, les différents broyeurs n'engendrent pas le même taux d'agglomération, celui-ci étant très probablement relié à l'intensité de l'énergie d'impact du

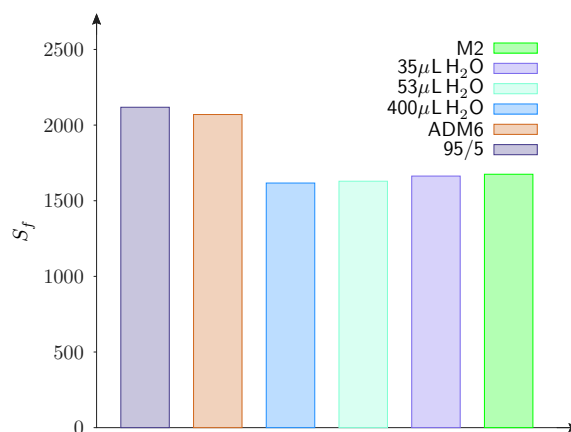


FIGURE 5.32. – Surfaces finales des broyages de M2 avec de l'eau et l'adjuvant de broyage ADM6 sur le MM400.

média broyant.

L'étude du cobroyage, nous a permis de montrer que le cobroyage n'est pas un résultat additif du comportement au broyage des matériaux considérés. Les interactions entre les particules ont des effets notables sur l'évolution de la surface spécifique au cours du broyage. En effet, le minéral joue un rôle de média broyant pour le végétal, alors que le végétal tend à amortir les chocs et ralentir la cinétique de broyage. Ceci est particulièrement marqué dans le cas du MM400, où l'impact de la bille est important. Cependant, la paille peut également jouer un rôle d'adjuvant de broyage pour le broyage du minéral, avec des effets positifs sur le cobroyage de l'ensemble de la formulation. Ces effets sont observables même pour des quantités de paille très faibles égales 0.16% de la masse totale de produit. L'utilisation de la paille comme agent de mouture pour produire une poudre minérale est donc envisageable. Les mécanismes expliquant cet effet ne sont pas encore complètement élucidés et des études complémentaires sont donc nécessaires à ce sujet.

Enfin, au sein de travaux futurs, il serait également intéressant de mesurer de manière séparée la taille des particules de minéral et de végétal dans les poudres cobroyées afin de mieux comprendre les interactions existantes entre les particules au cours du cobroyage. Des pré-essais avaient été réalisés sur un granulo-morphomètre Raman et feront l'objet de travaux futurs.

Conclusion et Perspectives

Ces travaux de thèse ont eu pour objectif de mettre en évidence différents phénomènes intervenant lors de la comminution des milieux granulaires. Les études ont portées sur deux niveau de description : 1) la modélisation numérique à l'échelle de la particule qui permet de mieux comprendre les conditions de la rupture à petite échelle et 2) un travail expérimental fourni à l'échelle des broyeurs impliquant différentes matières premières aux propriétés contrastées.

Dans un premier temps, une synthèse bibliographique a permis de souligner l'importance de l'hétérogénéité de la matière à différents niveaux et son impact sur les mécanismes de fragmentation. À l'échelle d'un grain, celle-ci résulte de la propagation de fractures le plus souvent initiées au niveau de défauts ou d'hétérogénéités qui peuvent être présents sous différentes formes dans les matières premières minérales et végétales. À une échelle plus macroscopique, un matériau granulaire est par nature hétérogène car constitué d'un grand nombre de particules présentant une variabilité de taille, de forme et parfois de propriétés physico-chimiques. Cette hétérogénéité complexifie la transmission des contraintes mécaniques et rend difficilement prévisible le comportement à la fragmentation des solides divisés. Ceci est d'autant plus vrai qu'au sein des procédés de broyage, les vitesses de sollicitations et les contraintes appliquées sont loin d'être distribuées de façon homogène. La diversité des broyeurs proposés aujourd'hui au monde industriel est particulièrement importante ; et bien qu'exploitant différents phénomènes physiques, leur développement reste néanmoins largement guidé par des considérations empiriques. L'optimisation, notamment énergétique, d'une opération de broyage ne pourra être réalisée que par une meilleure compréhension de la relation entre contraintes mécanique appliquées par le broyeur, propriétés des matières premières et celles des poudres produites.

Les mécanismes de rupture à l'échelle de la particule ont été précisés à l'aide de l'approche numérique Périodynamique. Dans le cas sans défauts les propriétés élastiques convergent lorsque la taille de la maille tend vers 0. Pour des disques parfaits, cette taille de maille apparait comme une taille caractéristique de défaut qui influence le seuil de rupture. La fragilisation d'une particule par la présence d'un défaut a également été étudiée. Une étude a montré l'importance de la position de ce défaut dans la particule. Des outils d'analyse d'image ont été développés pour permettre d'identifier les fragments obtenus et d'analyser les faciès de rupture. Une étude paramétrique sur plus de 1000 particules a permis de mettre en évidence les effets d'échelles pour différentes tailles de grains. La probabilité de survie de ces particules a été réalisée et interprétée à partir de la loi statistique de Weibull.

L'effet de l'énergie et de la vitesse d'impact ont été étudiés. De manière générale le nombre de fragments augmente avec l'énergie et la vitesse. On a montré également que des particules de formes polygonales peuvent présenter des modes ruptures plus diversifiés que des disques. Il a notamment été remarqué que la géométrie de la surface impactée en premier joue un rôle important sur la propagation des fissures.

Des sollicitations dynamiques telles que l'impact sont généralement présentes dans les broyeurs. Afin de mettre en évidence le rôle l'énergie d'impact dans la réduction granulométrique d'un matériau, nous avons étudié expérimentalement un broyeur vibrant de laboratoire. Ce broyeur, plus simple que le broyeur à boulet, génère une succession d'impacts par la mise en mouvement à haute

vitesse d'une unique bille. Dans cette étude, différents couples quantité de matière/vitesse de la bille ont été investigués afin de faire varier la quantité d'énergie apportée à la matière lors d'un impact. Nous avons ainsi montré que sur la plage étudiée, la réduction granulométrique s'est avérée uniquement pilotée par l'énergie totale apportée à la matière et non pas par l'énergie d'un impact.

Par la suite, nous avons également montré que les différentes lois énergétiques (Bond, Kick et Rittinger) ne permettent pas de décrire de manière suffisamment précise l'évolution des distributions granulométriques, en grande partie à cause de phénomène d'agglomération et de colmatage qui surviennent lorsque la proportion de particules inférieure à 0.5 microns devient significativement conséquente au sein de la chambre de broyage. Un nouveau modèle, dérivé de celui de Rittinger, mais intégrant ces phénomènes d'agglomération a été proposé.

Ce modèle a servi de base pour une étude comparative de différents broyeurs de laboratoire à média broyant : le broyeur de laboratoire vibrant étudié au sein du chapitre 4, un broyeur à boulet classiquement utilisé dans l'industrie, et un broyeur à attrition dont un prototype de laboratoire a été développé au cours de ces travaux de thèse. Le broyage d'une matière végétale, la paille, et deux matières minérales (le Quartz et un minéral M2) ont permis de comparer les broyeurs dans des conditions très différentes. Il apparaît que la broyabilité de la paille est bien inférieure à celle des minéraux et nécessite un apport d'énergie beaucoup plus important. Par ailleurs les surfaces finales obtenues sont moins importantes que pour les deux minéraux. En comparant les broyeurs entre eux sur la base de l'énergie volumique (énergie dépensée par unité de volume de poudre), on a montré que quel que soit la technologie, l'énergie dépensée pour atteindre une surface spécifique donnée est quasi-similaire. Nous avons également montré que les différents broyeurs n'engendraient pas le même taux d'agglomération. Dans un second temps, nous avons investigué le cobroyage de couple minéral/végétal. Dans ces conditions, les interactions entre les particules ont un effet important sur la surface spécifique créée. Le minéral peut être vu comme un média broyant pour le végétal, alors que ce dernier amorti les chocs et a tendance à ralentir le broyage dans les premiers instants de la cinétique. Toutefois pour des temps de broyage plus long, nous avons montré que la matière végétale joue le rôle d'un adjuvant de broyage pour le minéral en diminuant l'agglomération.

Ainsi à travers cette démarche numérique et expérimentale nous avons pu explorer la comminution à différentes échelles. Cette démarche ambitieuse nous a permis de mettre en évidence quelques mécanismes importants mais nous avons conscience que de nombreux efforts restent à faire afin de mieux relier les échelles entre elles.

Ces travaux ont été valorisés à travers 1 brevet, 3 publications scientifiques dans des revues à comité de lecture, 2 articles de conférences, ainsi que des communications sous la forme de posters et de présentations orales dans des congrès nationaux et internationaux. Par ailleurs 1 prototype de broyeur a également été développé à l'échelle du laboratoire et son usage a été étendu à d'autres travaux actuellement en cours au sein de l'UMR IATE.

Bien que nous aurions aimé approfondir plusieurs points complémentaires au cours de ces travaux de thèse, un certain nombre a donné lieu à des premières investigations non finalisées :

- Re-fracturer les fragments créés par les simulations numériques. Ainsi, l'évolution de la forme des fragments au fil des fracturations successives pourrait être observée. De plus, la loi d'échelle étudiée au chapitre 2 pourrait être modifiée en donnant aux disques de taille plus petites, la population de défauts trouvée dans les fragments des disques de plus grand diamètre.
- Appliquer les modèles numériques développés pour la fracture de particules au cas de particules réelles dont la forme a pu être mesurée par un morpho-granulomètre.

- Les mêmes modèles numériques utilisés dans cette thèse peuvent être adaptés pour étudier la fracturation d'un empilement de particules. Ceci permettrait d'étudier l'effet de la distribution granulométrique sur la fracturation de l'ensemble. Sur la figure 5.33, un exemple de simulation réalisée en fin de thèse est donné.
- Analyser plus finement l'évolution des populations de particules produites au cours du broyage par les simulations numériques ou au cours des campagnes expérimentales en s'appuyant sur un outil développé au cours de cette thèse : granulatweak (annexe 1).
- En situation de cobroyage remonter à la composition de chacune des populations de particules grâce aux mesures morphologiques couplés à une analyse Raman. Un certain nombre de pré-essais ont été réalisés au cours de cette thèse et donnait des résultats encourageants.

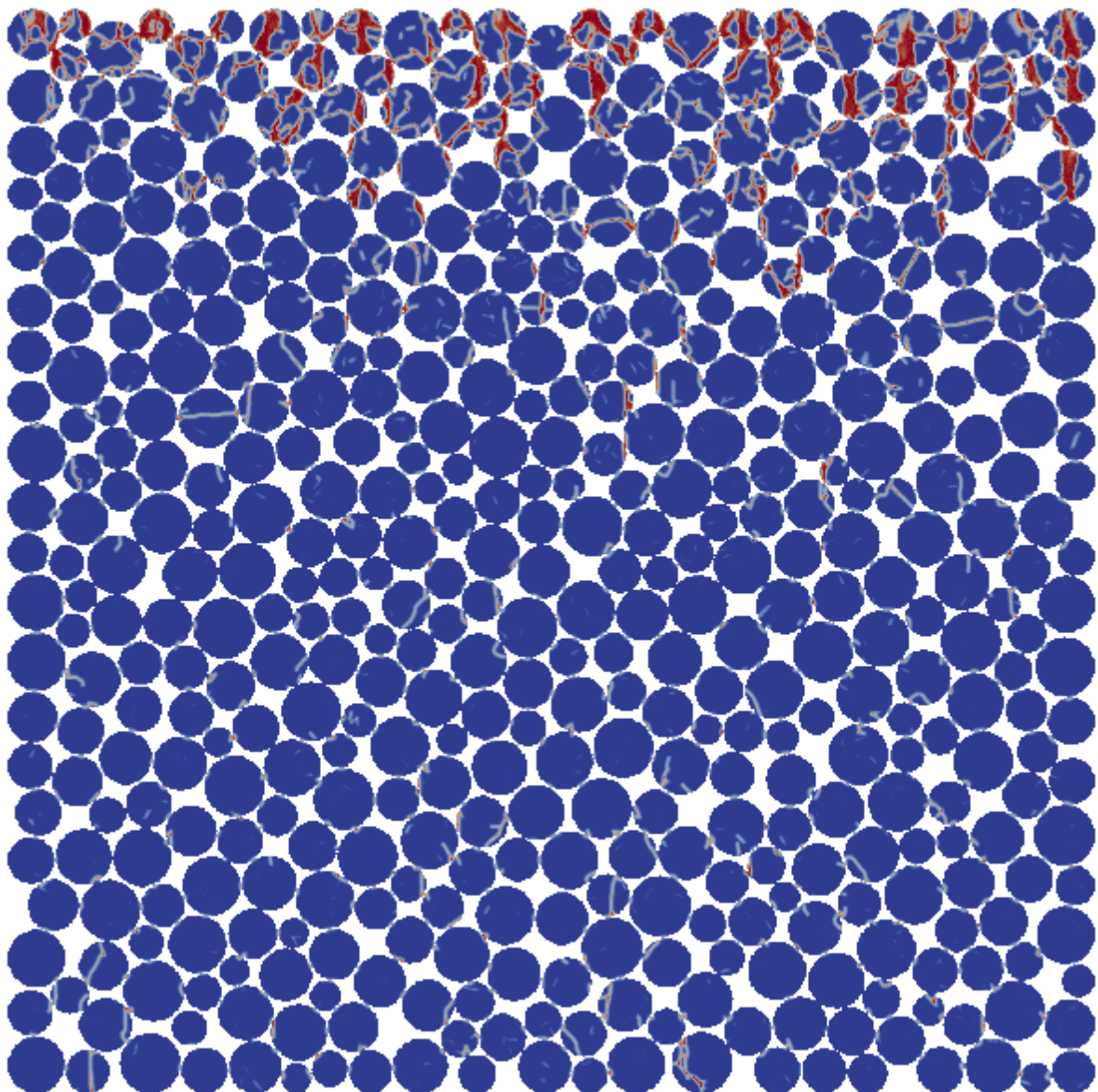


FIGURE 5.33. – Champ d'endommagement d'un empilement de grains suite à la suite d'un impact. La même méthode que celle décrite dans les chapitres 2 et 3 a été utilisée.

En complément de ces perspectives directes plusieurs point numériques et expérimentaux pourraient être étudiés dans de futur travaux.

D'un point de vue numérique un passage à des configurations 3D serait particulièrement intéressant pour mieux appréhender les modes de rupture. L'étude du broyage d'un lit de poudre pourrait être effectuée en utilisant une approche de type éléments discrets comme dans l'article de Cantor *et al.* [145]. Il ne faudra tout de même pas perdre de vu l'intérêt des méthodes sur réseau qui permettent de faire des simulations très rapides et massives. L'introduction de lois de contact entre les fragments dans une méthode de type Périodynamique ou Lattice Element Method pourrait être étudié. Enfin il serait intéressant d'approfondir le lien qui existe entre la microstructure des défauts, leur distribution spatiale et le comportement à la rupture. Un point important, notamment pour la matière végétale serait d'introduire une anisotropie de propriétés mécaniques et de tenir compte d'un comportement plus complexe intégrant la visco-plasticité.

D'un point de vue expérimental, des mesures de ruptures dynamiques à l'échelle d'un grain pourraient être réalisées. Elles nécessitent la mise au point de dispositifs permettant de propager une onde élastique (barres de Hopkinson, essai en chute libre ou projeté dans un flux d'air. . .). Ces informations pourraient être précieuses pour mieux intégrer le comportement à la rupture à l'échelle du grain et dans des modèles de comminution. Concernant l'étude expérimentale sur le broyage, il serait intéressant de faire varier les paramètres opératoires dans une plus large gamme ; notamment pour les broyeur à boulets et à attrition. Le cobroyage, abordé dans cette thèse reste très peu étudié dans la littérature malgré un intérêt particulier pour l'industrie. Il est nécessaire de mieux préciser les mécanismes de fragmentation associés à l'interaction entre particules de propriétés mécaniques contrastées. Enfin, dans le cas l'utilisation de matière végétale comme adjuvant de broyage il est probable que les mécanismes relèvent plus de la chimie que de la mécanique. Cette ouverture, qui pourrait avoir un intérêt économique pour l'industrie, devra faire l'objet de plus amples travaux, notamment en association avec des spécialistes de la chimie des surfaces.

A. Annexe 1 : Déconvolution de distributions granulométrique

Cette annexe résulte d'un projet réalisé en collaboration avec Vincent Richefeu de l'université de Grenoble dans lequel on s'est intéressé à développer des outils numériques pour suivre l'évolution des différentes populations. Le texte ci-après a fait l'objet d'un article dans EPJ Web of Conference à la suite de la conférence internationale Powder & Grains 2017.

A.1. Introduction

Milling is a crucial operation for many industrial applications in pharmaceutical industry, cement production, food manufacturing. . . The main objective of the milling is to reduce the size of the raw material and to produce a target particle size distribution (PSD). The process involves many complex mechanisms at the scale of particles and is largely influenced by the microstructure of the material, the process parameters, and the environmental conditions. Milling is particularly important for the refinery of biomass in dry conditions [187] especially for the production of building block molecules, fibers, biocomposite fillers. . . In this case, several types of size reduction are generally distinguished : coarse milling (cm to mm) which disorganize the plant material at the scale of the organs, intermediate micronization at tissue scale (1 mm to 100 μm), fine grinding at cells scale ($<100 \mu\text{m}$) and ultrafine grinding ($<20 \mu\text{m}$) which implies the fracture of plant cell walls [188]. In a grinder, all these characteristic sizes can coexist as different populations of particles and their proportion evolves with time.

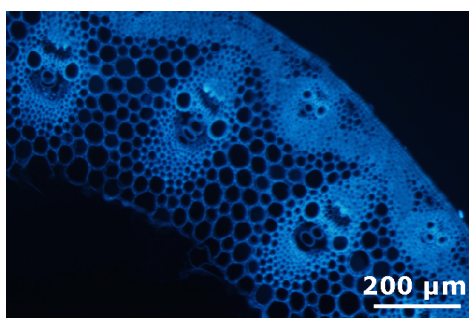


FIGURE A.1. – Cross section of an internode of wheat straw [13]

In this paper, we investigate the evolution of particle size reduction of a residue from agriculture industry : wheat straw. Wheat straw has a very heterogeneous microstructure (Figure A.1) involving cells embedded in different tissues. During the milling process several *populations* of particles are generated leading to complex multi-modal PSDs. In this context we developed a tool to decompose the PSD as the sum of sub-distribution functions. The evolution of the characteristics of these sub-distributions (which are supposed to have specific properties in terms of grindability, chemical composition, shape. . .) is discussed in relation to the structure of wheat straw.

A.2. Comminution of wheat straw

We used the straw from a soft-wheat variety harvested in 2015. It was first milled in the Cutting Mill SM100 (Retsch®) with a selection grid of 1 mm aperture and sieved between 0.25 and 0.5 mm leading to a final median volume size $d_{50} = 511 \mu\text{m}$. This raw powder was then milled in a jar rolling mill of intern diameter 175 mm and volume 2 L. The jar was filled at 33% with 3 kg of steel balls. The mass of the balls follow a uniform distribution per mass fraction with 3 diameters : 15, 20 and 25 mm. The mass of raw powder (63.1 g) was calculated in order to fill the space between the balls and to limit useless impacts between balls. The jar is rotating at 66 rpm which corresponds to 65% of the speed of centrifugation. Samples are withdrawn all along the grinding process until a d_{50} of $7 \mu\text{m}$ (milling time : 1342 min) was reached.

The particle size are measured by laser diffraction using a granulometer Malvern Mastersizer 2000. Ethanol was used as dispersant and three minutes of ultrasound was applied before the measurements to maximize the dispersion of the particles. Particle sizes were determined, by using the Mie method accurate for small particles at low concentration [189]. The size range (0.05 to $2000 \mu\text{m}$) is divided in $N_s = 100$ classes i ($i \in [1, 100]$) following the relation :

$$x_i = x_{i-1} \left(\frac{x_{N_s+1}}{x_1} \right)^{\frac{1}{N_s+1}} \quad (\text{A.1})$$

with x_i the i^{th} lower-bound of the class i . The PSD is built by determining the volume fraction of particle in each class. Figure A.2 shows all PSDs determined during the full grinding process. The presence of the different peaks reveals the existence of several populations.

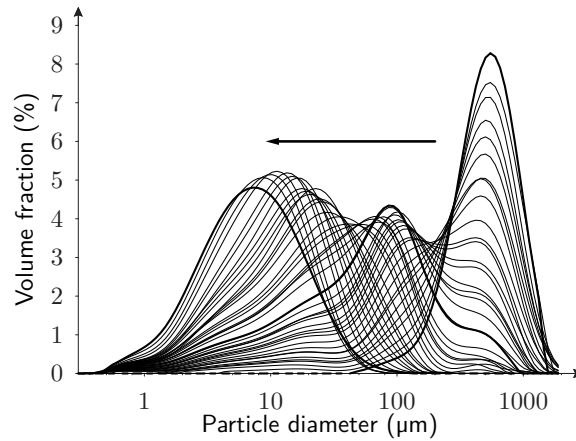


FIGURE A.2. – Evolution of PSD of wheat straw during grinding. The arrow indicates the time progression

A.3. Deconvolution of grading curves

The purpose of the methodology described below is to decompose the PSD into a sum of N_p sub-distributions (sub-PSDs). We denote N_s the number of discrete classes and the particle sizes s^i . From the shape of PSDs obtained in grinding processes it is clear that sub-PSDs have some level of asymmetry and should be bounded. For these reasons, following the works of Voivret *et al.* [190], we use the Beta law for each sub-distribution (*i.e.* for each population) :

$$\mathcal{V}_p(s^i; \mathcal{X}_p) = \begin{cases} w_p \frac{(s_p^i)^{(\alpha_p-1)}(s_p^i - 1)^{\beta_p}}{B(\alpha_p, \beta_p)} & \text{if } s^i \in [a_p, b_p] \\ 0 & \text{otherwise} \end{cases} \quad (\text{A.2})$$

where p is the population of particles and $\mathcal{X}_p$ is a set of parameters : w_p control the peak magnitude, α_p and β_p are parameters of the normalized Beta function $B(\alpha_p, \beta_p)$, and a_p and b_p define the distribution range scaled to $[0, 1]$ using $s_p^i = (s^i - a_p)/(b_p - a_p)$.

The grading curve, which is the master distribution, is the sum of the sub-PSD :

$$\mathcal{V}(s^i; \mathcal{X}) = \sum_{p=1}^{N_p} \mathcal{V}_p(s^i; \mathcal{X}_p) \quad \text{with } \mathcal{X} = \bigcup_{p=1}^{N_p} \mathcal{X}_p \quad (\text{A.3})$$

with

$$\sum_{p=1}^{N_p} \sum_{i=1}^{N_s} \mathcal{V}_p(s^i; \mathcal{X}_p) = 100\% \quad (\text{A.4})$$

The core principle of the methodology is to compute sub-PSD parameters so that the master distribution best matches the experimental PSD. The latter is defined as a set of N_s pairs $\{(s^i, v^i)\}$, where s^i is the mean size of the class and v^i its volume fractions.

The set $\mathcal{X}$ contains thus $N = 5 \times N_p$ values x_n to be optimized. To do so, a classical minimization of the mean squared of $\sum_i r^2(s^i)$ is achieved, where

$$r(s^i) = v^i - \mathcal{V}(s^i; \mathcal{X}) \quad (\text{A.5})$$

This minimization was performed thanks to the Levenberg-Marquardt algorithm [191, 192] implemented in the minpack library [193]. This iterative algorithm is known for its robustness as it is accurate even if its initial conditions are chosen far from the final solution. Note that, it is also possible to constrain the possible values of $\mathcal{X}$ by weighting the Jacobian terms $\partial r / \partial x_n$. For experimental reasons it is reasonable to assume that $w_p > 0$, and $\alpha_p > 1$ and $\beta_p > 1$ ensuring that $\mathcal{V}_p$ curve is bell-shaped.

Figure A.2 shows the experimental PSDs measured by laser diffraction for 41 milling times of the straw. For each PSD, we observe a maximum number of four peaks. The deconvolution of the PSD at initial time is performed by positioning approximately the sub-PSDs on the 4 peaks. The algorithm is then run to determine the best fit. For the other PSDs we use the previous sub-PSDs as initial condition. It is worth noting that the initial guess may have an influence as several solutions may exist. This procedure requires an important number of experimental PSDs in order to capture a continuous evolution of the sub-PSDs parameters. Figure A.3 shows an example of deconvolution of a grading curve into 4 sub-PSDs after 5 hours of milling. Some sub-PSDs, like the one of the population 4, may have very low weight. It is worth noting that this could leads to fluctuations, for example in the determination of the position of the pic as a function of time.

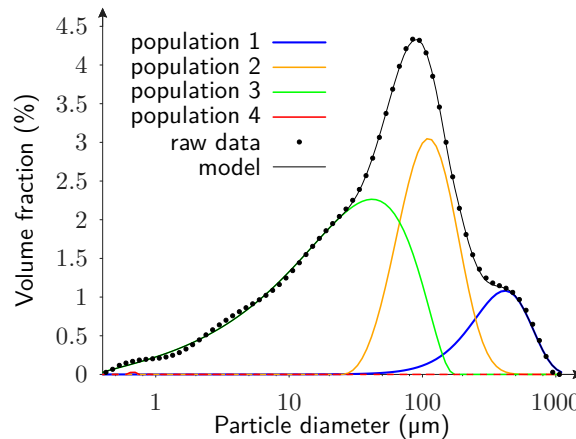


FIGURE A.3. – Example of deconvolution of the experimental PSD at a milling time of 4.78 hours.

A.4. Analysis

Figure A.4(a) shows the evolution of the volume fraction as a function of the mode of the distribution, which corresponds to diameter at the peak. It is interesting to note that the peak diameters can be related to the characteristic scales generally observed in the grinding of plants : tissue scale (peaks 1 between 450 and 550 μm and 2 around 100 μm), cell scale (peak 3 between 10 and 40 μm) and cell wall scale (peak 4 around 1 μm) (see section A.1).

During the grinding process, the largest particles (population 1) are broken into smaller sizes. The population 2 seems to act as a transition size. The volume fraction of the population 4 remains low even for a long grinding time (more than 20 hours) showing that this size is hardly reachable with our grinding process. The right-shifting in diameter of population 3 at the beginning of the milling may be attributed to deconvolution artifacts for weakly weighted sub-PSDs.

From Figure A.3, one might think that the sub-PSD modes should decrease continuously with time as for the experimental PSD. Interestingly, the modes of population 1, 4 and partially 2 are nearly constant in the course of time ; Figure A.4(b). This can be due to a “shattering” process in which the particles are broken into multiple fragments feeding a limited number of smaller population with given sizes. On the contrary, the slow decrease of the mode of populations 2 and 3 probably denotes an erosion process [194] leading to a slow decrease in size of particles.

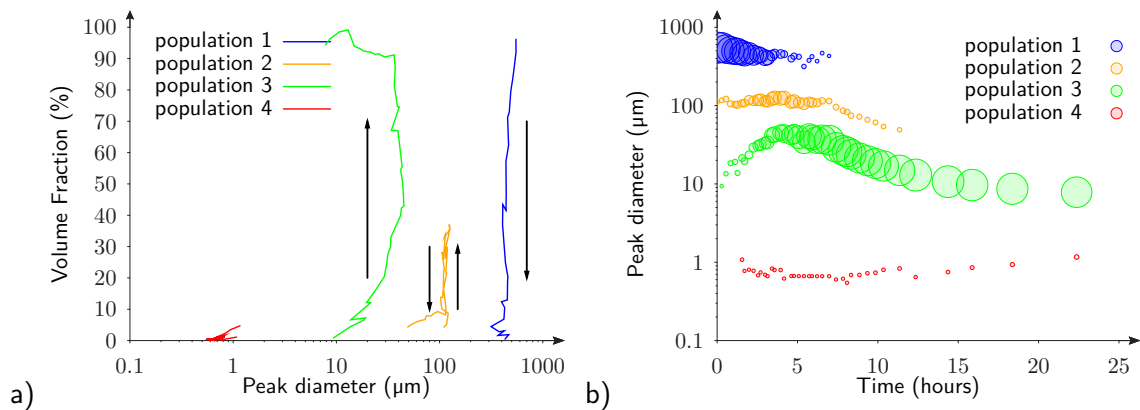


FIGURE A.4. – (a) Volume fraction as a function of the peak diameter (the arrows indicate the direction of time) (b) Peaks diameter as a function of time (the size of circles indicate the volume fraction)

Figure A.5 shows the evolution of the volume fraction with time. Four phases can be distinguished : I) (up to 4 hours) the volume fraction of populations 1, 2 and 3 evolve linearly. Population 1 decreases whereas both populations 2 and 3 increase with the same rate. II) From 4 to 7 hours, the population 2 decreases while populations 1 and 3 keep the same trend. III) Population 1 totally disappeared after 7 hours of grinding. Slopes of populations 2 and 3 change, corresponding to the time when their modes start to decrease. This indicates a possible erosion process and seems to be consistent with the increase in volume of finest particles (population 4). At the beginning of the process the stress is probably transmitted through the biggest particles while the smallest ones, into the pores network, are globally protected [21]. During this phase, populations 2 and 3 weakly evolve. Possible reasons are that erosion is less efficient than shattering, the remaining particles are the strongest or the increase in specific surface leads to a greater dissipation in friction and collisions. During this phase, the population 3 represents nearly the totality of the product (90% at 7 hours). Finally, in phase IV), after 12 hours, only populations 3 and 4 remain.

The mechanical energy transmitted to particles is directly proportional to milling time. Thus the variation rate of volume fraction depends on the milling ability of a given population.

However, since the population modes are not constant, it is difficult to compute an energy balance based on the variation of the volume fractions. In order to study the evolution of the specific surface, which

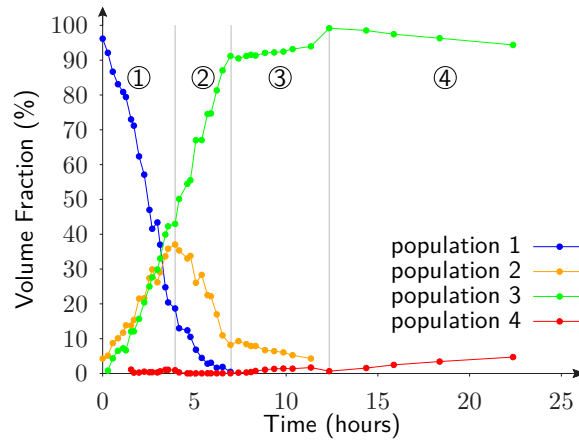


FIGURE A.5. – PSDs volume fraction as a function of time. Four different phases are identified.

reflects the energy used to create new surfaces, we assume that the particles are spherical and that their diameters corresponds to the size of the classes.

The Specific Surface Density (SSD) in the class i and for the population p is thus :

$$S_p^i = \frac{6V_p(s^i; \mathcal{X}_p)}{s^i} \quad (\text{A.6})$$

and the total specific surface per unit volume for population p is :

$$S_p = \sum_i S_p^i \quad (\text{A.7})$$

In Figure A.6 the total SSD of the powder is increasing at constant rate during the first two phases. Then, this rate seems to saturate denoting a drop in the ability of grinding of the product. The energy supplied by the mill can be insufficient or the modification of the particles' microstructure with the decrease of the size [195] may change the response to impact or shearing solicitations.

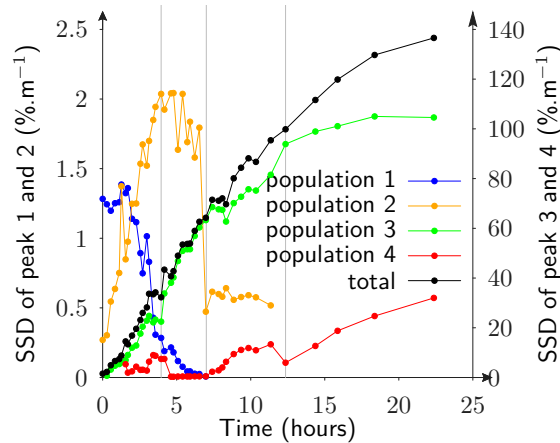


FIGURE A.6. – Specific surface density of the PSD and the different population as a function of time

It is interesting to note that the SSD curves do not reflect exactly the same phases as depicted in Figure A.5.

The SSD of the population 2 exhibits instabilities during the second phase as its surface doesn't decrease regularly. This is due to instabilities in the values of a_p and b_p which can take very small values leading to a drastic increase of the SSD. Up to 1.7 hours, population 1 tends to stay constant showing that the increase in surface balances the loss of mass. The same behavior is visible for population 3 after 12 hours as its SSD is still increasing while the volume fraction declines. We note also that, because populations 1 and 2 represent large sizes, their contribution to the total SSD is small compared to the ones of populations 4 and 3.

A.5. Concluding remarks and perspectives

In this paper we proposed a methodology for the analysis of the grading curves of powders obtained by milling. The method is based on a deconvolution procedure which helps to identify characteristic sizes, corresponding to sub-PSDs. One important result was to be able to follow the evolution of the modes of the different populations in the course of grinding. This method can help to determine energy balance between the different populations, and to better understand how the grinding energy is employed at the particle scale for the creation of surface.

Regarding the jar mill process used in this work, we measured in details the evolution of the particle size distribution of wheat straw by taking 41 samples at different milling time. This process seems well adapted until the size of cellular scale corresponding to 20 μm (population 3). This size allows the separation of different chemical components interesting for applications in biofuel or biomaterials. Note however that a finer milling is of great interest for many applications as it increases the reactivity and the accessibility of specific molecules.

In future work we would like to study the effect of the fracture mechanisms at the scale of particles on the evolution of the populations. One possibility is to associate to the grading curves some chemical information obtained by X-ray photoelectron spectroscopy or Laser-induced breakdown spectroscopy [196] as a function of the particle size. Finally, an industrial outlook is to compare the efficiency of different milling technologies for several types of biomass.

B. Annexe 2 : Bilans de populations

Une autre manière d'évaluer l'efficacité du broyage est de suivre l'évolution des différentes tailles des particules au cours du processus selon la théorie des bilans de populations développée par Epstein [197], Austin [198] et Kapur.

La méthode repose sur le suivi au cours du broyage de la masse de particules de chaque population de particules. En pratique, les particules sont regroupées en n classes granulométriques (généralement de raison $\sqrt{2}$) et deux fonctions sont utilisées pour décrire le broyage : une *selection function* ou *specific rate of breakage* S_j qui décrit la probabilité par unité de temps qu'une particule de la classe j se brise et une autre, la *breakage function* b_{ij} qui définit la fraction de fragments de taille i provenant de la fracture de particules de taille j .

D'après [198], un broyage efficace suit habituellement une loi de premier ordre, c'est à dire que la *selection function* est constante au cours du broyage. C'est résultats ont été confirmé par différents auteurs au sein de broyeurs à boulets lors d'une étude sur le quartz [114] et pour des fractions allant de 1.5 mm à 100 μm [116]

Pour une fraction granulométrique donnée, la fragmentation des particules entraine une diminution de la quantité de matière présente dans la classe considérée :

$$\frac{dm_i(t)}{dt} = -S_i m_i(t) \quad (\text{B.1})$$

avec m_i la masse de particules dans la classe granulométrique i .

Herbst et Fuerstenau (cité dans [117]) ont montré que cette diminution pouvait être directement exprimée en fonction de l'énergie spécifique :

$$\frac{dm_i(E_m)}{dE_m} = -S_i m_i(E_m) \quad (\text{B.2})$$

Cependant les particules d'une fraction étant également alimentée par les fragments provenant de particules de taille supérieure, l'équation se transforme donc :

$$\frac{dm_i(E_m)}{dt} = -S_i m_i(E_m) + \sum_{j=1}^{j=i-1} b_{ij} S_j m_j \quad (\text{B.3})$$

Ainsi, la connaissance des fonctions S_i et b_{ij} pour un matériau et broyeur donné permet de prédire la distribution granulométrique pour un temps de broyage donné.

La *breakage function* peut-être estimée à partir de la méthode BII crée par Austin [199], selon l'équation :

$$B_{i,j} = \frac{\log[1 - P_i(0)] / \log[1 - P_i(t)]}{\log[1 - P_{j+1}(0)] / \log[1 - P_{j+1}(t)]} \quad n \leq i \leq j + 1 \quad (\text{B.4})$$

avec $P_i(t)$ la fraction massique inférieure à la taille X_i au temps t et $B_{i,j}$ la fraction massique cumulée inférieure à la taille X_i provenant de la fracture d'une particule de taille X_j . B_{ij} peut-être interpolé par une loi empirique [198] de la forme :

$$B_{i,j} = \phi_j \left(\frac{X_{i-1}}{X_j} \right)^\gamma + (1 - \phi_j) \left(\frac{X_{i-1}}{X_j} \right)^\beta \quad n \leq i \leq j \quad (\text{B.5})$$

avec :

$$\phi_j = \phi_1 \left(\frac{X_i}{X_1} \right)^{-\delta} \quad (\text{B.6})$$

avec δ, ϕ, γ et β des constantes du matériau. γ est inversement proportionnel au taux de production de fines. Une valeur importante indiquera une faible production [116]. Il a été montré par Deniz et Shoji [116, 114] que la *breakage function* était identique pour un même ratio de taille entre la particule mère et fille et ne dépendait pas du taux de remplissage produit dans un broyeur à boulets [116]. Par ailleurs, Austin et Shoji [114] ont également montré qu'elle était indépendante des caractéristiques du broyeur à boulet.

Le *specific rate of breakage* varie avec la taille des particules et doit être déterminé expérimentalement. Austin a proposé la relation empirique suivante :

$$S_i = a_T X_i^\alpha \quad (\text{B.7})$$

avec a_T et α dépendant à la fois des conditions de broyages et du matériau. Dans un broyeur à boulets par exemple, ces paramètres sont liés au taux de remplissage en produit et boulets [114, 116] et à la taille des boulets [117].

La méthode des bilans de populations permet de décrire la réduction en taille des particules au cours du broyage mais reste incomplète dans le sens où elle ne prend pas en compte les interactions entre particules, présente notamment lors des phénomènes d'agglomération, chaque fraction granulométrique étant considérée indépendamment des autres. Son application pour le broyage ultra-fin est donc difficile.

C. Annexe 3 : Figures complémentaires du chapitre 5

Cet annexe donne quelques figures complémentaires qui n'ont pas été introduites dans le chapitre 5 pour en faciliter la lecture.

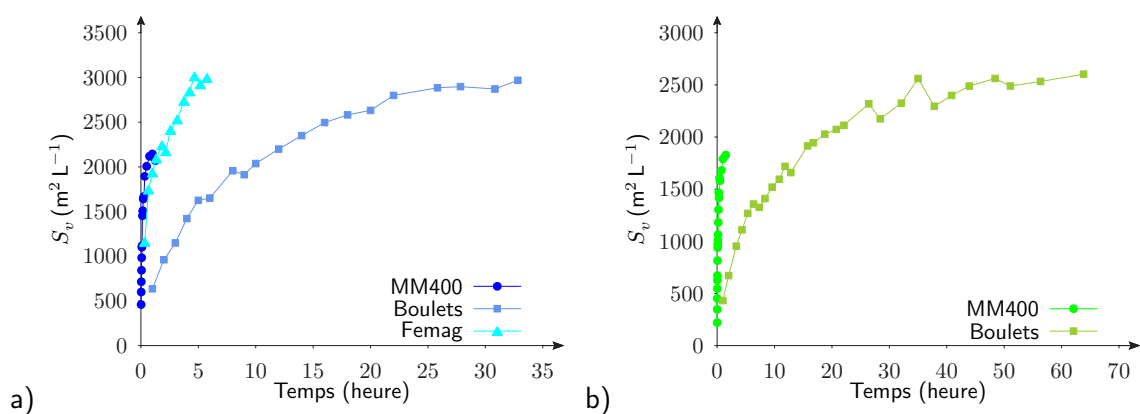


FIGURE C.1. – Évolution de la surface volumique en fonction du temps sur les différents broyeurs du quartz a) et de M2 b).

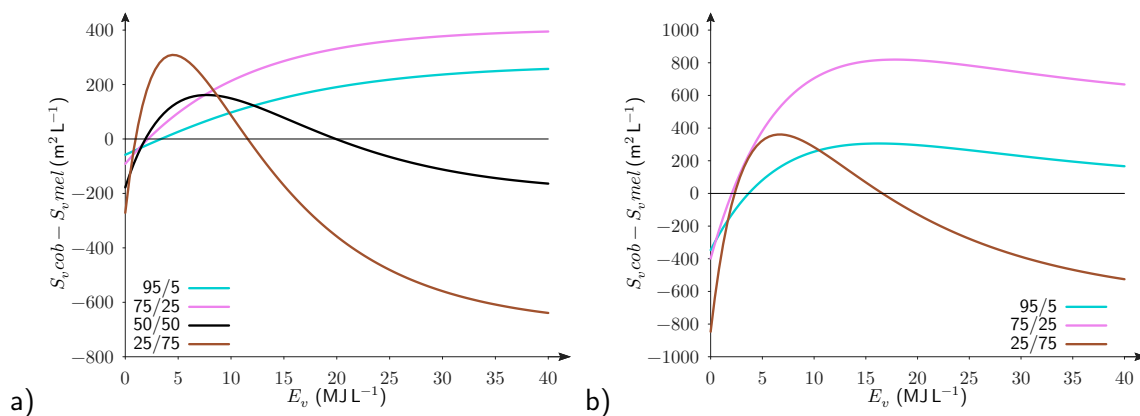


FIGURE C.2. – Différence de surface volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur Boulets (a) et Femag (b).

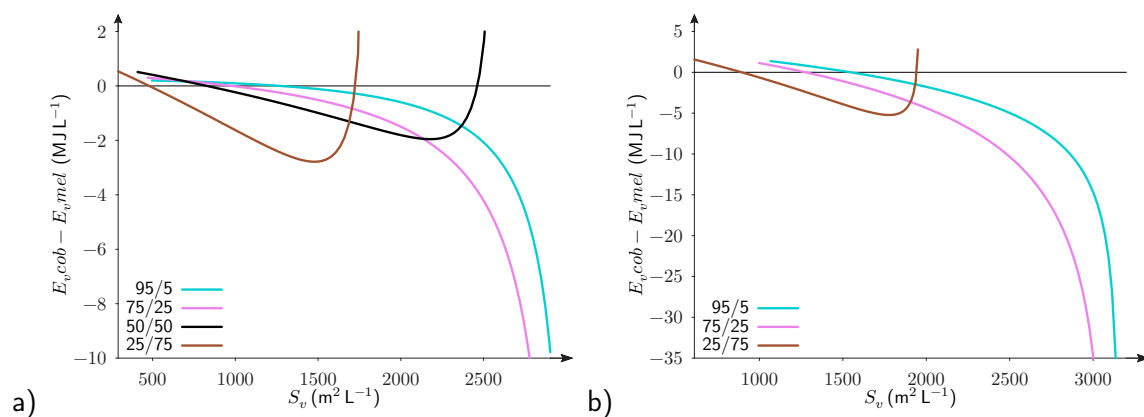


FIGURE C.3. – Différence d'énergie volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur Boulets (a) et Femag (b).

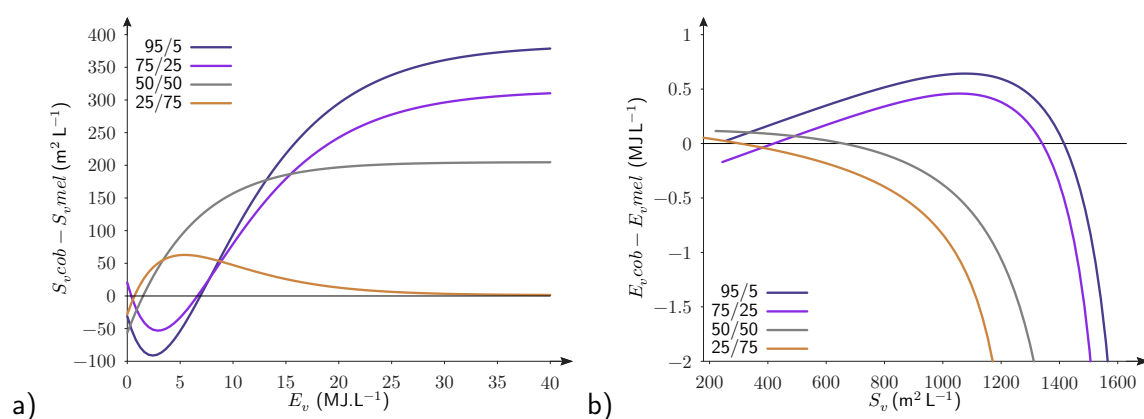


FIGURE C.4. – Différence de surface volumique (a) et d'énergie volumique (b) entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages M2/Paille sur MM400.

D. Annexe 4 : Vue d'ensemble du broyeur Femag

Cette annexe présente la vue générale et en coupe du broyeur à billes agitées Femag. Ce broyeur a été conçu dans le cadre de cette thèse avec l'aide de Frédéric Mabile et d'Abdelkrim Saoudi.

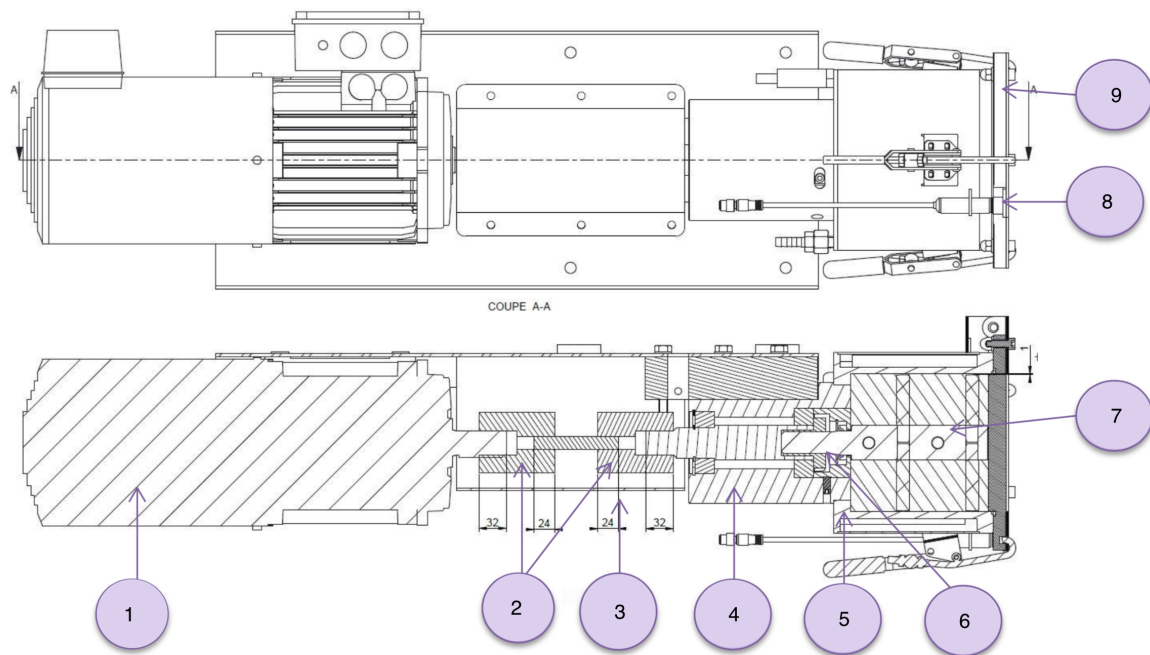


FIGURE D.1. – Vue d'ensemble et en coupe du broyeur à billes agitées Femag.

1. Moteur avec ventilation forcée et frein intégré à commande séparée
2. Accouplements élastiques
3. Carter de protection
4. Cuve avec double enveloppe
5. Moyeu avec deux roulements à billes
6. Arbre agitateur
7. Manchon hydraulique
8. Couvercle verrouillé par trois sauterelles
9. Capteur de sécurité

Table des figures

1.1. a) Comparaison entre l'échelle de dureté de Mohs et les mesures de duretés Vickers (rond blanc) et Knoop (rond noir) ; b) Schéma d'un indenteur (de type Knoop) et de son empreinte faite sur le matériau [1].	15
1.2. Exemples de dislocations dans un solide cristallin [4] ; a) dislocation "coin" ; b) dislocation de type "vis".	16
1.3. a) Exemple de structure cristalline périodique formant un cristal de quartz (α -quartz) ; les atomes d'oxygène sont en rouges et ceux de silice en gris. b) Microstructure de quartzite composé essentiellement de grains de quartz [5].	16
1.4. Schéma des principaux constituants des matériaux lignocellulosiques [15].	18
1.5. Schéma de la propagation de fissure entre (à gauche) ou à travers (à droite) les cellules d'un matériau lignocellulosique d'après [20].	18
1.6. Exemple de distribution granulométrique avec son d_{50} , mode, et taille moyenne.	19
1.7. a) Observation MEB de particules de verres broyées [31]. b) Observation MEB de particules d'alliage de titane broyées [32]. c) Photo de fragments de paille de riz [33].	22
1.8. Exemple d'une forme de particule quelconque avec les contours de son aire convexe en bleu.	22
1.9. Schéma des trois modes de ruptures (figure extraite de [35]).	24
1.10. Champ de contraintes théoriques lors d'un essai brésilien d'après [40].	27
1.11. Schéma d'un disque sous compression d'une charge uniformément répartie sur des arcs.	27
1.12. Exemple de variation de contrainte à la rupture pour différents matériaux en fonction de leur diamètre (d'après Lee <i>et al.</i> cité dans [45])	28
1.13. Exemple de variation de la contrainte à la rupture en fonction de la vitesse de déformation pour une variété de granite d'après [56].	29
1.14. Exemple de faciès de rupture de particules de plâtre sollicitées sous double impact (énergie croissante de gauche à droite) [57].	30
1.15. Régimes de comminution dans un broyeur : a) abrasion, b) clivage, c) "pulvérisation" (Shatter). d) Distribution granulométrique associée aux régimes de comminution [58].	31
1.16. Simulation d'un test en traction par éléments finis. De gauche à droite on peut voir la propagation de fissure et le remaillage qui est réalisé [59].	32
1.17. Simulation de la propagation d'une fissure dans du silicium incluant un défaut sous la forme d'un atome de bore [61].	32
1.18. Simulation de la fragmentation d'un disque impactant une cible rigide utilisant la dynamique moléculaire avec une approche "gros grains". L'interaction entre les points matériels est modélisée par un potentiel de Lennard-Jones [62]. La coloration représente l'énergie potentielle élastique des particules maximale en bleu et minimale en rouge.	33
1.19. Simulation par éléments discrets cohésifs de la fragmentation d'une particule sphérique par impact sur une cible rigide [68].	34
1.20. Simulation de la fissuration quasi-statique d'un disque par dynamique des contacts. a) Simulation 3D [69] b) Simulation 2D avec les lignes rouges et vertes représentent respectivement les contacts en compression et tension [70].	34
1.21. Illustration de la discrétisation par réseau d'un échantillon triphasique par la méthode LEM à l'aide d'un réseau triangulaire [74].	35
1.22. Trois étapes dans la formation et la rupture d'un contact adhésif. (a) Formation du contact adhésif ; (b) résistance à la traction due à la présence d'adhésion ; (c) rupture pour une valeur de $\delta_n > 0$. (d) Evolution de f_n en fonction de δ_n . γ représente l'énergie nécessaire à la rupture du contact adhésif.	37

1.23. Comparaison entre les différentes forces inter-particulaires d'après [89] dans l'air. En traits pleins pour des particules de même taille et en pointillés pour une aspérité de $0.1\mu\text{m}$ et un plan. La force de van der Waals est calculée avec $H = 6.5 \times 10^{-20} \text{ J}$ (cas du quartz). La force de capillarité est calculée en présence d'eau et la force électrostatique est calculée pour des charges surfaciques opposées de $10 \mu\text{C m}^{-2}$. Le poids est évalué pour une densité de 3100 kg m^{-3} .	39
1.24. a) Schéma d'une aspérité sphérique positionnée en surface d'une des deux sphères. Les deux particules sont supposées distantes de $4 \text{ \AA}$. b) Force d'attraction de van der Waals entre deux sphères de quartz de 1mm de diamètre en fonction de la taille (rayon) de l'aspérité.	40
1.25. a) Forces normales dans un assemblage de 4000 particules obtenues par simulation numérique. L'épaisseur des traits représente l'intensité de la force [96]. b) Densité de probabilité des forces normales dans un empilement granulaire 2D en utilisant la méthode de Dynamique Moléculaire et de Dynamique (MD) des Contacts (CD) [96].	40
1.26. Exemple de l'effet hydrostatique dans un empilement granulaire. La plus grosse particule est épargnée à cause de cet effet (d'après [99])	41
1.27. Evolution de la contrainte seuil d'écoulement plastique en fonction de la contrainte normale appliquée.	42
1.28. Schema du principe de fonctionnement d'une presse à rouleaux (à gauche) et photo d'un type de rouleaux possédant une surface utilisée pour améliorer le passage du produit (à droite).	44
1.29. Dessin d'un broyeur vertical Quadropol fabriqué par Polysius	44
1.30. Photo du broyeur à disques Alpine CW Contraplex	45
1.31. a) Dessin d'un broyeur à jets d'air opposés Alpine AFG. b) Schéma de principe vue du dessus d'un broyeur à assiettes.	46
1.32. Exemples de media broyants utilisés : a) boulets b) cylpebs.	46
1.33. Schema du fonctionnement d'un broyeur planétaire [112] (a) et photo d'un broyeur vibrant excentrique de Siebtechnik (b).	47
1.34. Simulations numériques des différents régimes du broyeur à boulets [118] : a) régime en cascade, b) régime en cataracte et c) régime en centrifugation.	48
1.35. Schéma du broyeur attriteur Maxxmill de Eirich	49
2.1. Schéma du domaine de référence (à gauche) B_0 et déformé (à droite) B_t d'une liaison du point x et son voisinage d'horizon $\mathcal{H}(x)$. Sont également représentés le déplacement $\mathbf{u}$ et le déplacement relatif η .	53
2.2. Schéma de la force exercée par un lien en fonction de son élongation	54
2.3. Schéma des liaisons d'un noeud (en bleu) à l'intérieur de son voisinage d'horizon $h = 3$ (cercle orange).	55
2.4. a) Exemple de fissure matérialisée par le niveau d'endommagement ; b) niveau d'endommagement sur la section droite représentée à gauche.	56
2.5. Exemples de profil de fissure obtenue par périodynamique a) et par Lattice Element Method (LEM) [126] b).	56
2.6. Schéma d'une particule soumise à une compression diamétrale entre deux plateaux.	57
2.7. Force sur le plateau supérieur en fonction du temps pour différentes viscosités après l'arrêt de celui-ci.	58
2.8. Force sur plateau supérieur normalisée par la force de rupture d'une liaison (en bleu) et endommagement de la particule (en rouge) en fonction du temps. Le trait vertical marque l'arrêt des plateaux.	59
2.9. Composantes σ_{XX} (à gauche) et σ_{YY} (à droite) du champ de contrainte dans une particule soumise à une compression diamétrale. L'échelle de couleur va du bleu, contrainte maximale en compression, jusqu'au rouge pour la contrainte maximale en tension.	60
2.10. Évolution de la contrainte σ_{XX} et σ_{YY} normalisées par K^∞ en fonction de la distance au centre du disque sur l'axe de chargement. En trait plein, les contraintes théoriques.	60

2.11. Champs d'endommagement au moment de l'initiation de la rupture a) et après propagation des fissures b). L'échelle de couleur va du bleu (endommagement nul) au rouge (endommagement maximum).	61
2.12. Agrandissement de la partie haute de la particule représentée pour deux discrétisations a) $N_x = 256$ et b) $N_x = 704$.	62
2.13. Evolution de la contrainte maximale horizontale normalisée par K^∞ du matériau en fonction de la déformation de la particule pour $N_x = 704$.	63
2.14. Évolution de K^*/K^∞ de la particule en fonction de $1/N_x$.	63
2.15. Évolution de la contrainte à la rupture en tension normalisée par K^∞ en fonction de $\sqrt{N_x}$.	64
2.16. Schéma de principe du fonctionnement d'un défaut. À gauche, une partie des liaisons affaiblies (en rouge) et laissées intactes (en bleu) par le défaut (en vert) sont représentées. À droite, nombre de liaisons sur chaque noeud modifiées par le défaut (en noir). L'échelle va du rouge (nombre maximum) au bleu (nombre minimum).	65
2.17. Endommagement au niveau d'un défaut vertical introduit au centre d'un grain.	65
2.18. Contrainte σ_{XX} a) et σ_{YY} b) au voisinage d'un clivage dans une particule soumise à une compression diamétrale. L'échelle de couleur va du bleu (contrainte maximale en compression) jusqu'au rouge (contrainte maximale en tension).	66
2.19. Emplacement du centre d'un défaut (clivage vertical) par rapport au centre de la particule. Les couleurs représentent les contraintes à la rupture normalisées. Les cercles vides représentent des emplacements de défauts qui ont engendré un fort endommagement de la particule en surface sans créer une rupture complète de la particule.	66
2.20. Contrainte à la rupture normalisée en fonction de la position du défaut sur l'axe horizontal a) et vertical b).	67
2.21. Cas d'une particule possédant une distribution de défauts. a) emplacement des défauts dans la particule b) composante σ_{XX} du champ de contrainte.	68
2.22. Champ d'endommagement final dans une particule possédant une distribution de défauts	68
2.23. Force normalisée par la force f_0 pour briser un lien en fonction de la déformation de la particule sur l'axe de chargement.	69
2.24. Évolution du module K^* en fonction de $1/N_x$ avec et sans défauts.	69
2.25. a) Champ d'endommagement d'une particule après fracture ; b) binarisation de l'endommagement pour une valeur seuil de $T=1\%$; c) résultat de l'algorithme de peinture.	70
2.26. Exemple d'algorithme de peinture récursif.	70
2.27. Effet du seuil sur la détection des fragments par l'algorithme de peinture a) $T=1\%$; b) $T=30\%$; et c) $T=70\%$.	71
2.28. Nombre moyen de fragments pour 100 particules en fonction de la valeur seuil d'endommagement.	71
2.29. Découpage d'un grain de diamètre D_0 dans une zone carrée contenant une population de défauts de référence.	72
2.30. Particules de différents diamètres a) $D/D_0=2.85$, b) $D/D_0=1$ et c) $D/D_0=0.2$.	73
2.31. Exemples de défauts dans des particules de diamètres $D/D_0 = 0.05$.	74
2.32. Exemple de fracturation d'une particule de diamètre $D/D_0 = 0.2$	74
2.33. Endommagement moyen des particules en fonction du diamètre ; rouge, données brutes ; vert, en éliminant les particules sans défaut ; bleu, en retirant celles dont la force à la rupture est équivalente à celle d'une particule parfaite.	75
2.34. a) Aire des fragments normalisée par l'aire totale de fragments. b) Aire médiane de fragments normalisée par l'aire totale de fragments.	75
2.35. Identification des fissures dans un disque de diamètre D_0 : a) toutes les fissures ; b) uniquement celles à l'origine de fragments.	76
2.36. Nombre moyen de fissures créant des fragments en fonction de D/D_0 .	77
2.37. Probabilité de survie des particules en fonction de la contrainte appliquée normalisée par la contrainte à la rupture du matériau pour différents diamètres. Les droites représentent les interpolations par des distributions de Weibull.	78
2.38. Module de Weibull en fonction du diamètre de la particule	78

2.39. Probabilité de survie des particules en fonction de la contrainte appliquée normalisée par la contrainte à la rupture du matériau pour les plus petits diamètres. Les droites représentent les interpolations par des distributions de Weibull.	79
2.40. Contrainte moyenne en tension normalisée par la contrainte à la rupture du matériau en fonction du diamètre normalisé.	80
3.1. Schéma d'une particule et du plateau supérieur avant impact.	82
3.2. a) Exemple de découpage d'un grain de taille D_0 dans un matériau de population de défauts $n_0 = 100$; b) Identification des fragments après une rupture par impact.	83
3.3. Evolution temporelle des forces exercées sur le plateau supérieur et inférieur normalisées par la force nécessaire pour rompre un lien en traction.	84
3.4. Exemple d'évolution de l'énergie cinétique de l'impacteur en fonction du temps normalisé.	85
3.5. Évolution du coefficient de transmission en fonction de l'énergie cinétique initiale de l'impacteur. Les barres d'erreurs représentent l'écart-type des données pour 20 générations de particules.	85
3.6. Évolution des coefficients χ en fonction de l'énergie transmise à la particule.	86
3.7. Évolution de η (a) et η' (b) en fonction de l'énergie transmise à la particule.	87
3.8. Endommagement moyen des particules en fonction de l'énergie élastique transmise.	87
3.9. Exemples de fragments après fracturation d'une particule pour différentes énergies élastiques transmises. a) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 0.83$, b) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 3.34$ c) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 7.55$ d) $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 37.91$	88
3.10. a) Nombre moyen de fragments en fonction de l'énergie cinétique de l'impacteur. b) Taille moyenne des fragments normalisée par la surface de la particule $\bar{s}_0$	89
3.11. Distribution cumulée de taille de fragments N en fonction de la taille normalisée par la taille du disque pour $\mathcal{E}_t/\mathcal{E}_0 = 0.39$	89
3.12. Évolution de l'exposant τ de la loi de puissance de la distribution N en fonction de la vitesse de l'impacteur.	90
3.13. Évolution du coefficient de transmission en fonction de la vitesse de l'impacteur.	91
3.14. Évolution des coefficients χ en fonction de la vitesse de l'impacteur.	91
3.15. Évolution de η en fonction de l'énergie transmise (a) et de la vitesse de l'impacteur (b).	92
3.16. Évolution de η' en fonction de la vitesse de l'impacteur.	92
3.17. Évolution de l'endommagement des particules en fonction de l'énergie transmise à la particule (a) et en fonction de la vitesse de l'impacteur (b).	93
3.18. Exemple de fragments après fracturation d'une particule pour différentes vitesses d'impacteur. a) $V_p/c_l = 0.004$, b) $V_p/c_l = 0.011$ c) $V_p/c_l = 0.024$ d) $V_p/c_l = 0.041$ e) $V_p/c_l = 0.058$ f) $V_p/c_l = 0.082$	94
3.19. Nombre moyen de fragments en fonction du coefficient de transmission (à gauche) et de la vitesse de l'impacteur (à droite).	94
3.20. Surface moyenne des fragments normalisée par la surface de la particule.	95
3.21. Évolution de l'exposant τ de la loi de puissance de la distribution N en fonction de la vitesse de l'impacteur.	95
3.22. Schéma du principe de construction des particules.	96
3.23. Évolution de la force subit par le plateau supérieur au cours du temps sans arrêt (a) et avec arrêt du plateau.	97
3.24. Exemple de particules utilisées.	98
3.25. Évolution du coefficient de transmission en fonction de l'énergie cinétique initiale de l'impacteur.	98
3.26. Endommagement moyen (a) et pour chacune des particules (b) en fonction de l'énergie transmise par l'impacteur.	99
3.27. Évolution de l'endommagement des particules en fonction de la hauteur h pour une vitesse d'impacteur donnée.	99
3.28. Champ d'endommagement pour une particule présentant une face (a) et une pointe (b) à l'impacteur.	100

3.29. Nombre de fragments moyen (a) et par particules (b) pour les différentes énergies transmises par l'impacteur.	100
3.30. Taille de fragments moyenne (a) et par particule (b) pour les différentes énergies transmises par l'impacteur.	101
3.31. Taille moyenne des fragments en fonction de l'endommagement de la particule.	101
4.1. Photographie du broyeur MM400 de Retsch® (a) et schéma de l'ensemble bol+bille+produit (b).	106
4.2. Evolution des PSD avec augmentation de la durée d'utilisation des ultrasons.	107
4.3. Evolution de la surface spécifique en fonction de la durée des ultrasons.	108
4.4. Evolution de la PSD du broyage 13 g 20 Hz. La flèche marque le sens d'évolution du temps de broyage.	110
4.5. Evolution du d_{50} en fonction du temps.	111
4.6. Evolution du d_{50} en fonction de l'énergie spécifique de broyage.	111
4.7. Evolution de la surface spécifique en fonction l'énergie massique de broyage.	112
4.8. Evolution de la surface spécifique BET en fonction de l'énergie massique de broyage.	112
4.9. Image MEB de grains de quartz après 30 secondes de broyages. On peut voir ici que les particules ne sont pas sphériques et possèdent une rugosité de surface.	113
4.10. Photos MEB de deux types d'agglomérats en fin de broyage (6 g, 20 Hz).	113
4.11. Evolution de la surface spécifique BET en fonction de la surface spécifique mesurée au granulomètre laser.	114
4.12. Evolution de la surface spécifique BET calculée en fonction de l'énergie massique de broyage.	115
4.13. Evolution du d_{10} , d_{50} , d_{80} et d_{90} en fonction de l'énergie massique. En trait plein, les modèles de Rittinger, Bond et Kick.	116
4.14. Evolution de la surface spécifique BET calculée, en fonction de l'énergie massique de broyage. En trait plein, l'interpolation par le modèle de Rittinger modifié.	117
4.15. Evolution du taux d'agglomération de la poudre et de la surface libérée par les ultrasons en fonction de la surface spécifique	118
4.16. Evolution de la fraction volumique sous 0,5 μm en fonction de la surface spécifique.	119
4.17. Evolution de la puissance électrique et de la température en fonction du temps pour le broyage (20 g, 20 Hz).	120
4.18. Evolution de la puissance électrique en fonction de la masse de produit lorsque la bille et le produit sont fixes (carrés) et libres avant (ronds) et après la transition (triangles).	121
4.19. Poudre colmatée sur les parois du bol (à gauche) (13 g, 25 Hz) et agglomérats du colmatage (à droite) en fin de broyage (13 g, 20 Hz).	122
5.1. Photo du sable a) et de la paille b) avant broyage.	125
5.2. Photo de particules de paille prise au scanner (à gauche) puis identifiées à l'aide du logiciel ImageJ (à droite).	126
5.3. Exemple de particules de M2 vitreuses avant (à gauche) et après traitement par le logiciel ImageJ (à droite).	127
5.4. PSD des matières premières par analyse d'image.	127
5.5. Photo d'une éprouvette utilisée pour mesurer la densité apparente.	128
5.6. Photo d'ensemble du broyeur à billes agitées Femag.	130
5.7. Exemple de PSD de paille mesurée au granulomètre laser avec la méthode de Fraunhofer et de Mie. a) d_{50} à 150 μm , b) d_{50} à 20 μm , c) d_{50} à 6 μm	133
5.8. PSD de différentes poudres ayant un bruit de fond trop élevé avant et après correction.	134
5.9. Données avant et après correction. Les points re-mesurés en vert ont servi de référence pour corriger les données.	135
5.10. Évolution du d_{50} et de la surface volumique en fonction du temps sur les différents broyeurs	137
5.11. Évolution de la quantité de surface libérée par les ultrasons et du taux d'agglomération en fonction de la surface volumique.	139
5.12. Évolution de la surface volumique de la paille en fonction du temps sur les différents broyeurs.	140

5.13. Évolution de la surface volumique des trois matériaux en fonction de l'énergie volumique sur les différents broyeurs.	141
5.14. Évolution du taux d'agglomération des trois matériaux en fonction de la surface volumique sur les différents broyeurs.	142
5.15. Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur MM400.	146
5.16. Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages M2/Paille sur le broyeur MM400.	146
5.17. Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur le broyeur MM400.	147
5.18. Coefficient de colmatage pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) à 75 min de broyage sur le MM400. Les barres d'erreurs représentent les écart-types des mesures.	148
5.19. Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur à boulets.	149
5.20. Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages M2/Paille sur le broyeur à boulets.	149
5.21. Évolution de la surface volumique théorique (à gauche) et expérimentale (à droite) des cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur Femag.	150
5.22. Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur le broyeur à boulets.	151
5.23. Surface libérée par les ultrasons pour les cobroyages Quartz/Paille sur le broyeur Femag.	151
5.24. Différence de surface volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur MM400 (à gauche) et M2/Paille sur broyeur à boulets (à droite).	152
5.25. Différence d'énergie volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur MM400 (à gauche) et M2/Paille sur broyeur à boulets (à droite).	153
5.26. Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur MM400.	154
5.27. Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille (à gauche) et M2/Paille (à droite) sur broyeur à boulets.	155
5.28. Surfaces finales pour les cobroyages et mélanges théoriques de Quartz/Paille sur le broyeur Femag.	155
5.29. Évolution de la surface volumique en fonction de l'énergie massique de M2 pour de très faibles taux de paille sur le MM400.	156
5.30. Surfaces finales des broyages de M2 avec de très faibles quantités de paille sur le MM400.	156
5.31. Évolution de la surface volumique en fonction de l'énergie massique de M2 avec de l'eau et l'adjuvant de broyage ADM6 sur le MM400.	157
5.32. Surfaces finales des broyages de M2 avec de l'eau et l'adjuvant de broyage ADM6 sur le MM400.	158
5.33. Champ d'endommagement d'un empilement de grains suite à la suite d'un impact. La même méthode que celle décrite dans les chapitres 2 et 3 a été utilisée.	161
A.1. Cross section of an internode of wheat straw [13]	163
A.2. Evolution of PSD of wheat straw during grinding. The arrow indicates the time progression	164
A.3. Example of deconvolution of the experimental PSD at a milling time of 4.78 hours.	165
A.4. (a) Volume fraction as a function of the peak diameter (the arrows indicate the direction of time) (b) Peaks diameter as a function of time (the size of circles indicate the volume fraction)	166
A.5. PSDs volume fraction as a function of time. Four different phases are identified.	167
A.6. Specific surface density of the PSD and the different population as a function of time	167
C.1. Évolution de la surface volumique en fonction du temps sur les différents broyeurs du quartz a) et de M2 b).	171

C.2. Différence de surface volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur Boulets (a) et Femag (b).	171
C.3. Différence d'énergie volumique entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages Quartz/Paille sur Boulets (a) et Femag (b).	172
C.4. Différence de surface volumique (a) et d'énergie volumique (b) entre le cobroyage et le mélange théorique pour les cobroyages M2/Paille sur MM400.	172
D.1. Vue d'ensemble et en coupe du broyeur à billes agitées Femag.	173

Liste des tableaux

1.1. Composition en (%) de différentes biomasses lignocellulosiques.	17
2.1. Tailles de particules choisies, nombre de défauts et moyenne et écarts-type des longueurs de défauts.	73
3.1. Energies cinétiques et vitesses de l'impacteur normalisées respectivement par l'énergie théorique nécessaire pour briser en deux une particule et par la célérité de l'onde élastique. . . .	83
3.2. Vitesses de l'impacteur normalisées par la célérité de l'onde élastique.	90
4.1. Composition chimique du sable utilisé.	105
4.2. Durée de chaque broyage en minutes pour une fréquence de 20 Hz.	105
4.3. Durée de chaque broyage en minutes pour une masse de 13 g.	105
4.4. Percentiles en fonction de la durée des ultrasons.	107
4.5. Paramètres du modèle de Rittinger modifié après interpolation.	116
4.6. Pourcentage de puissance perdue après la transition pour une fréquence de 20 Hz.	119
4.7. Pourcentage de puissance perdue après la transition pour une masse de 13 g.	120
5.1. Indices morphologiques des matières premières	126
5.2. Percentiles et span des distributions granulométriques des matières premières.	127
5.3. Densité apparente et vraie des matières premières	128
5.4. Récapitulatif des caractéristiques des broyeurs utilisés	131
5.5. Percentiles et surfaces spécifiques de la paille broyée 150 µm au broyeur à boulets avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie	132
5.6. Percentiles et surfaces spécifiques de paille de 20 µm avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie	134
5.7. Percentiles et surfaces spécifiques de paille de 6 µm avec les méthodes de Fraunhofer et de Mie	134
5.8. Différences de surface volumique de différentes poudres avant et après correction.	135
5.9. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le MM400.	138
5.10. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le broyeur à boulets.	138
5.11. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction du temps sur le broyeur Femag.	138
5.12. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour le quartz.	141
5.13. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour M2.	141
5.14. Récapitulatif des paramètres des modèles utilisés pour l'évolution de S_v en fonction de E_v pour la paille.	142
5.15. Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'interpolation de l'évolution de S_v en fonction de l'énergie volumique pour les cobroyages de quartz sur le MM400.	146
5.16. Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'interpolation de l'évolution de S_v en fonction de l'énergie volumique pour les cobroyages de M2 sur le MM400.	147
5.17. Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de quartz en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur à boulets.	150

5.18. Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de M2 en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur à boulets.	150
5.19. Récapitulatif des paramètres du modèle utilisé pour l'évolution de S_v des différents cobroyages de quartz en fonction de l'énergie volumique sur le broyeur Femag	151
5.20. Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages du MM400.	153
5.21. Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages du broyeur à boulets.	154
5.22. Surfaces entre lesquelles il y a un gain énergétique sur les cobroyages Quartz/Paille du broyeur Femag.	154

Bibliographie

- [1] D. Tabor, "The physical meaning of indentation and scratch hardness," *British Journal Of Applied Physics*, vol. 7, pp. 159–166, 1956.
- [2] J. Kimberley, K. T. Ramesh, and O. S. Barnouin, "Visualization of the failure of quartz under quasi-static and dynamic compression," *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, vol. 115, no. 8, pp. 1–13, 2010.
- [3] J. Baillon and J. Dorlot, *Des matériaux*. Presses Internationales Polytechnique, 2000.
- [4] P. Li and Z. F. Zhang, "Standing wave effect and fractal structure in dislocation evolution," *Scientific Reports*, vol. 7, no. 1, pp. 1–6, 2017.
- [5] A. Pedernana, M. D. García-Antón, and A. Ollé, "Structural study of two quartzite varieties from the Utrillas facies formation (Olmos de Atapuerca, Burgos, Spain) : From a petrographic characterisation to a functional analysis design," *Quaternary International*, vol. 433, pp. 163–178, 2017.
- [6] C. Mayer-Laigle, N. Blanc, R. K. Rajaonarivony, and X. Rouau, "Comminution of dry lignocellulosic biomass, a review : Part i. from fundamental mechanisms to milling behaviour," *Bioengineering*, vol. 5, no. 2, 2018.
- [7] C. Wyman, *Handbook on Bioethanol : Production and Utilization*. Applied Energy Technology Series, Taylor & Francis, 1996.
- [8] G. Dorez, L. Ferry, R. Sonnier, A. Taguet, and J. M. Lopez-Cuesta, "Effect of cellulose, hemicellulose and lignin contents on pyrolysis and combustion of natural fibers," *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, vol. 107, pp. 323–331, 2014.
- [9] M. Sain and D. Fortier, "Flax shives refining, chemical modification and hydrophobisation for paper production," *Industrial Crops and Products*, vol. 15, no. 1, pp. 1–13, 2002.
- [10] A. U. Buranov and G. Mazza, "Extraction and characterization of hemicelluloses from flax shives by different methods," *Carbohydrate Polymers*, vol. 79, no. 1, pp. 17–25, 2010.
- [11] N. Brosse, A. Dufour, X. Meng, Q. Sun, and A. Ragauskas, "Miscanthus : a fast-growing crop for biofuels and chemicals production," *Biofuels, Bioproducts and Biorefining*, vol. 6, no. 5, pp. 580–598, 2012.
- [12] T. Khan and U. Mubeen, "Wheat straw : A pragmatic overview," *Current Research Journal of Biological Sciences*, vol. 4, 11 2012.
- [13] G. Ghizzi Damasceno da Silva, *Fractionnement par voie sèche de la biomasse ligno-cellulosique : broyage poussé de la paille de blé et effets sur ses bioconversions*. PhD thesis, 2011. 2011NSAM0031.
- [14] B. Monties, *Les polymères végétaux : polymères pariétaux et alimentaires non azotés*. Biochimie appliquée, Gauthier-Villars, 1980.
- [15] S. Mussatto and G. Dragone, "Chapter 1 - biomass pretreatment, biorefineries, and potential products for a bioeconomy development," in *Biomass Fractionation Technologies for a Lignocellulosic Feedstock Based Biorefinery* (S. I. Mussatto, ed.), pp. 1 – 22, Amsterdam : Elsevier, 2016.
- [16] Q. Guo, X. Chen, and H. Liu, "Experimental research on shape and size distribution of biomass particle," *Fuel*, vol. 94, pp. 551–555, 2012.
- [17] R. J. Ross, *Wood handbook : wood as an engineering material*. General Technical Report (GTR), 2010.
- [18] S.-Y. Zhang, B.-H. Fei, Y. Yu, H.-T. Cheng, and C.-G. Wang, "Effect of the amount of lignin on tensile properties of single wood fibers," *Forest Science and Practice*, vol. 15, no. 1, pp. 56–60, 2013.

- [19] K. L. Pickering, M. G. Efendy, and T. M. Le, "A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 83, pp. 98–112, 2016.
- [20] J. C. Motte, J. Y. Delenne, C. Barron, É. Dubreucq, and C. Mayer-Laigle, "Elastic properties of packing of granulated cork : Effect of particle size," *Industrial Crops and Products*, vol. 99, pp. 126–134, 2017.
- [21] C. Voivret, F. Radjaï, J. Y. Delenne, and M. S. El Youssoufi, "Multiscale force networks in highly polydisperse granular media," *Physical Review Letters*, vol. 102, no. 17, pp. 2–5, 2009.
- [22] S. Chillistone and J. G. Hardman, "Factors affecting drug absorption and distribution," *Anaesthesia and Intensive Care Medicine*, vol. 18, no. 7, pp. 335–339, 2017.
- [23] B. Osbaeck and V. Johansen, "Particle size distribution and rate of strength development of Portland cement," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 72, no. 2, pp. 197–201, 1989.
- [24] M. Rhodes, *Particle Size Reduction*. John Wiley & Sons, Ltd, 2008.
- [25] W. Zhou and Z. Wang, *Scanning Microscopy for Nanotechnology : Techniques and Applications*. Springer ebook collection / Chemistry and Materials Science 2005-2008, Springer New York, 2007.
- [26] I. Vlahinić, E. Andò, G. Viggiani, and J. E. Andrade, "Towards a more accurate characterization of granular media : extracting quantitative descriptors from tomographic images," *Granular Matter*, vol. 16, no. 1, pp. 9–21, 2014.
- [27] P. A. Webb, "A primer on particle sizing by static laser light scattering," *Technical Workshop Series : Introduction to the Latest ANSI/ISO Standard for Laser Technical Workshop Series : Introduction to the Latest ANSI/ISO Standard for Laser Particle Size Analysis*, 2000.
- [28] K. Pye and S. J. Blott, "Particle size analysis of sediments, soils and related particulate materials for forensic purposes using laser granulometry," *Forensic Science International*, vol. 144, no. 1, pp. 19–27, 2004.
- [29] G. Emmanuel, *Approche expérimentale et corrélations dans les systèmes complexes : modes de broyages et réactivités du ciment alumineux fondu*. PhD thesis, Ecole des Mines d'Ales, 1999.
- [30] S. Brunauer, P. H. Emmett, and E. Teller, "Adsorption of gases in multimolecular layers," *Journal of the American Chemical Society*, vol. 60, no. 2, pp. 309–319, 1938.
- [31] E. J. Garboczi, K. A. Riding, and M. Mirzahosseini, "Particle shape effects on particle size measurement for crushed waste glass," *Advanced Powder Technology*, vol. 28, no. 2, pp. 648–657, 2017.
- [32] A. Nouri and A. Sola, "Metal particle shape : A practical perspective," *Metal Powder Report*, vol. xxx, no. xx, pp. 1–7, 2018.
- [33] P. Ming-Zhu, M. Chang-Tong, Z. Xu-Bing, and P. Yun-Lei, "Effects of Rice Straw Fiber Morphology and Content on the Mechanical and Thermal Properties of Rice Straw Fiber-High Density Polyethylene Composites," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 121, pp. 2900–2907, 2011.
- [34] G. Unland, "Chapter 4 The Principles of Single-Particle Crushing," *Handbook of Powder Technology*, vol. 12, no. 07, pp. 117–225, 2007.
- [35] B. Lawn, *Fracture of brittle solids*. 1993.
- [36] A. Griffith, "Vi. the phenomena of rupture and flow in solids," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 221, no. 582-593, pp. 163–198, 1921.
- [37] G. R. Irwin, "Analysis of Stresses and Strains Near the End of a Crack Traversing a Plate," *J. Appl. Mech.*, 1957.
- [38] W. Weibull, "A statistical theory of the strength of materials," 1939.
- [39] G. R. McDowell and A. Amon, "The application of Weibull statistics to the fracture of soil particles," *Soils and Foundations*, vol. 40, no. 5, pp. 133–141, 2000.
- [40] Y. Jianhong, F. Q. Wu, and J. Z. Sun, "Estimation of the tensile elastic modulus using Brazilian disc by applying diametrically opposed concentrated loads," *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, vol. 46, no. 3, pp. 568–576, 2009.

- [41] Y. Kanda and N. Kotake, "Chapter 12 Comminution Energy and Evaluation in Fine Grinding," *Handbook of Powder Technology*, vol. 12, no. 07, pp. 529–550, 2007.
- [42] G. Hondros, "The evaluation of poisson's ratio and the modulus of materials of a low tensile resistance by the brazilian (indirect tensile) test with particular reference to concrete," *Australian Journal Of Applied Science*, vol. 10, no. 3, pp. 243–268, 1959.
- [43] L. Tavares and R. King, "Single-particle fracture under impact loading," *International Journal of Mineral Processing*, 1998.
- [44] S. Yashima, Y. Kanda, and S. Sano, "Relationships between particle size and fracture energy or impact velocity required to fracture as estimated from single particle crushing," *Powder Technology*, vol. 51, no. 3, pp. 277–282, 1987.
- [45] G. R. McDowell and M. D. Bolton, "On the micromechanics of crushable aggregates," *Géotechnique*, vol. 48, pp. 667–679, oct 1998.
- [46] B. Epstein, "Statistical aspects of fracture problems," *Journal of Applied Physics*, vol. 19, no. 2, pp. 140–147, 1948.
- [47] K. Kendall, "The impossibility of comminuting small particles by compression," 1978.
- [48] J. T. Hagan, "Micromechanics of crack nucleation during indentations," *Journal of Materials Science*, vol. 14, no. 12, pp. 2975–2980, 1979.
- [49] N. Arbiter, C. Harris, and G. A. Stamboltzis, "Single Fracture of Brittle Spheres," *Transactions of the Society of Mining Engineers, AIME*, vol. 244, pp. 118–244, 1969.
- [50] D. E. Lambert and C. A. Ross, "Strain rate effects on dynamic fracture and strength," *International Journal of Impact Engineering*, vol. 24, no. 10, pp. 985–998, 2000.
- [51] J. Rodriguez, C. Navarro, and V. Sanchezgalvez, "Splitting tests : an Alternative To Determine the Dynamic Tensile Strength of Ceramic Materials," *Journal De Physique Iv*, vol. 4, no. C8, pp. 101–106, 1994.
- [52] L. M. Tavares, "Chapter 1 Breakage of Single Particles : Quasi-Static," *Handbook of Powder Technology*, vol. 12, no. 21, pp. 3–68, 2007.
- [53] A. Olsson and L. Salmen, "Viscoelasticity of in-situ lignin as affected by structure : softwood vs. hardwood.," *ACS Symposium Series 489*, pp. 133–143, 1992.
- [54] D. Sedan, C. Pagnoux, A. Smith, and T. Chotard, "Mechanical properties of hemp fibre reinforced cement : Influence of the fibre/matrix interaction," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 28, no. 1, pp. 183–192, 2008.
- [55] M. Neumann, J. Herter, B. O. Droste, and S. Hartwig, "Compressive behaviour of axially loaded spruce wood under large deformations at different strain rates," *European Journal of Wood and Wood Products*, vol. 69, no. 3, pp. 345–357, 2011.
- [56] T. Saksala, M. Hokka, V. T. Kuokkala, and J. Mäkinen, "Numerical modeling and experimentation of dynamic Brazilian disc test on Kuru granite," *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, vol. 59, pp. 128–138, 2013.
- [57] S. Z. Wu and K. T. Chau, "Dynamic response of an elastic sphere under diametral impacts," *Mechanics of Materials*, vol. 38, no. 11, pp. 1039–1060, 2006.
- [58] M. Hasan, S. Palaniandy, M. Hilden, and M. Powell, "Calculating breakage parameters of a batch vertical stirred mill," *Minerals Engineering*, vol. 111, pp. 229–237, 2017.
- [59] P. O. Bouchard, F. Bay, Y. Chastel, and I. Tovina, "Crack propagation modelling using an advanced remeshing technique," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 189, no. 3, pp. 723–742, 2000.
- [60] F. Perales, S. Bourgeois, A. Chrysochoos, Y. Monerie, F. Perales, S. Bourgeois, A. Chrysochoos, and Y. Monerie, "Two field multibody method for periodic homogenization in fracture mechanics of nonlinear heterogeneous materials," *Engineering Fracture Mechanics*, vol. 75, no. 11, 2008.

- [61] E. Bitzek, J. R. Kermode, and P. Gumbsch, "Atomistic aspects of fracture," *International Journal of Fracture*, vol. 191, no. 1-2, pp. 13–30, 2015.
- [62] N. Sator, S. Mechkov, and F. Sausset, "Generic behaviours in impact fragmentation," *Epl*, vol. 81, no. 4, 2008.
- [63] P. A. Cundall and O. D. L. Strack, "A discrete numerical model for granular assemblies," *Géotechnique*, vol. 29, no. 1, pp. 47–65, 1979.
- [64] M. Paulick, M. Morgeneyer, and A. Kwade, "Review on the influence of elastic particle properties on DEM simulation results," *Powder Technology*, 2015.
- [65] M. Jean, "The non-smooth contact dynamics method," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 177, no. 3-4, pp. 235–257, 1999.
- [66] J. J. Moreau, "Some numerical methods in multibody dynamics : application to granular materials," *European Journal of Mechanics - A/Solids*, vol. 13, no. 4 - suppl, pp. 93–114, 1994.
- [67] J. J. Moreau, "Contact et frottement en dynamique des systèmes de corps rigides," *Revue Européenne des Elements Finis*, vol. 9, no. 1-3, pp. 9–28, 2000.
- [68] G. Timár, J. Blömer, F. Kun, and H. J. Herrmann, "New universality class for the fragmentation of plastic materials," *Physical Review Letters*, vol. 104, no. 9, pp. 1–4, 2010.
- [69] D. Cantor, E. Azéma, P. Sornay, and F. Radjai, "Three-dimensional bonded-cell model for grain fragmentation," *Computational Particle Mechanics*, vol. 4, no. 4, pp. 441–450, 2017.
- [70] D.-H. Nguyen, E. Azéma, P. Sornay, and F. Radjai, "Bonded-cell model for particle fracture," *Physical Review E*, vol. 91, no. 2, p. 022203, 2015.
- [71] E. Schlangen and E. J. E. Garboczi, "Fracture Simulations of concrete Using Lattice Models : Computational Aspects," *Engineering Fracture Mechanics*, vol. 57, no. 2, pp. 319–332, 1997.
- [72] J. K.-W. Wong, K. Soga, X. Xu, and J.-Y. Delenne, "Modelling fracturing process of geomaterial using Lattice Element Method," *Geomechanics from Micro to Macro*, no. January, pp. 417–422, 2015.
- [73] R. Affes, *Relations microstructure-fissuration-perméabilité dans les milieux granulaires cimentés*. PhD thesis, 2012. Thèse de doctorat dirigée par Radjaï, Farhang et Monerie, Yann Mécanique et Génie civil Montpellier 2 2012.
- [74] V. Topin, *Matériaux granulaires cimentés : modélisation et application a l'albumen de blé*. PhD thesis, 2008. Thèse de doctorat dirigée par Delenne, Jean-Yves Mabilie, Frédéric et Radjaï, Farhang Génie civil et mécanique Montpellier 2 2008.
- [75] F. Radjai, J.-N. Roux, and A. Daouadji, "Modeling granular materials : century-long research across scales," *Journal of Engineering Mechanics*, vol. 143, no. 4, p. 04017002, 2017.
- [76] B. Andreotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen, *Granular media : between fluid and solid*. Cambridge University Press, 2013.
- [77] J. N. Israelachvili, "Chapter 13 - van der waals forces between particles and surfaces," in *Intermolecular and Surface Forces (Third Edition)* (J. N. Israelachvili, ed.), pp. 253 – 289, San Diego : Academic Press, third edition ed., 2011.
- [78] A. Hamaker, "The london van der waals attraction between spherical particles," *Physica*, vol. 10, pp. 1058–1072, 1937.
- [79] A. Gerschel, *Liaisons intermoléculaires*. Paris : InterEditions, CNRS Editions, 1995.
- [80] V. Richefeu, F. Radjai, and M. E. Youssoufi, "Stress transmission in wet granular materials," *Eur. Phys. J. E*, vol. 21, pp. 359–369, 2006.
- [81] V. Richefeu, M. E. Youssoufi, R. Peyroux, and F. Radjai, "A model of capillary cohesion for numerical simulations of 3d polydisperse granular media," *Int. J. Numer. Anal. Meth. Geomech. (accepté)*, 2007.
- [82] C. D. Willett, M. J. Adams, S. A. Johnson, and J. P. Seville, "Capillary bridges between two spherical bodies," *Langmuir*, vol. 16, no. 24, pp. 9396–9405, 2000.

- [83] L. Bocquet, É. Charlaix, and F. Restagno, "Physics of humid granular media," *Comptes Rendus Physique*, vol. 3, no. 2, pp. 207–215, 2002.
- [84] S. Herminghaus, "Dynamics of wet granular matter," *Advances in Physics*, vol. 54, no. 3, pp. 221–261, 2005.
- [85] B. Derjaguin, V. Muller, and Y. Toporov, "Effect of contact deformations on the adhesion of particles," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 53, p. 314, 1975.
- [86] H. Hertz, "Ueber die ber ijhrung fester elastischer k rper.," *Journal f r die reine und angewandte Mathematik*, vol. 92, pp. 156–171, 1882.
- [87] K. L. Johnson, K. Kendall, and A. D. Roberts, "Surface Energy and the Contact of Elastic Solids," *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 324, no. 1558, pp. 301–313, 1971.
- [88] B. Severson, L. Keer, J. Ottino, and R. Snurr, "Mechanical damping using adhesive micro or nano powders," *Powder Technology*, vol. 191, no. 1-2, pp. 143–148, 2009.
- [89] J. Seville, C. Willett, and P. Knight, "Interparticle forces in fluidisation : a review," *Powder Technology*, vol. 113, no. 3, pp. 261 – 268, 2000. Neptis Symposium on Fluidization- Present and Future.
- [90] H. Y. Xie, "The role of interparticle forces in the fluidization of fine particles," *Powder Technology*, vol. 94, no. 2, pp. 99–108, 1997.
- [91] M. Saadatfar, A. P. Sheppard, T. J. Senden, and A. J. Kabla, "Mapping forces in a 3d elastic assembly of grains," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 60, no. 1, pp. 55–66, 2012.
- [92] J. Geng, G. Reydellet, E. Cl ment, and R. Behringer, "Green s function measurements of force transmission in 2d granular materials," *Physica D : Nonlinear Phenomena*, vol. 182, no. 3-4, pp. 274–303, 2003.
- [93] L. Rothenburg and R. Bathurst, "Analytical study of induced anisotropy in idealized granular materials," *Geotechnique*, vol. 39, no. 4, pp. 601–614, 1989.
- [94] F. Radjai, D. E. Wolf, M. Jean, and J.-J. Moreau, "Bimodal character of stress transmission in granular packings," *Physical review letters*, vol. 80, no. 1, p. 61, 1998.
- [95] C. Voivret, F. Radjai, J.-Y. Delenne, and M. S. El Youssofi, "Multiscale force networks in highly polydisperse granular media," *Physical review letters*, vol. 102, no. 17, p. 178001, 2009.
- [96] F. Radjai, S. Roux, and J. J. Moreau, "Contact forces in a granular packing," *Chaos*, vol. 9, no. 3, pp. 544–550, 1999.
- [97] D.-H. Nguyen, E. Az ma, F. Radjai, and P. Sornay, "Compaction d'un milieu granulaire   particules s cables," in *13 mes Journ es de Mati re Condens e (JMC13)*, (Montpellier, France), Aug. 2012.
- [98] C. Voivret, *Texture and behavior of highly polydisperse granular materials*. Theses, Universit  Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, Nov. 2008.
- [99] O. Tsoungui, D. Vallet, and J. C. Charmet, "Numerical model of crushing of grains inside two-dimensional granular materials," *Powder Technology*, vol. 105, no. 1-3, pp. 190–198, 1999.
- [100] V. Richefeu, F. Radjai, and M. S. El Youssofi, "Stress transmission in wet granular materials," *The European Physical Journal E*, vol. 21, no. 4, p. 359, 2006.
- [101] B. Saint-Cyr, K. Szarf, C. Voivret, E. Az ma, V. Richefeu, J.-Y. Delenne, G. Combe, C. Noug ier-Lehon, P. Villard, P. Sornay, *et al.*, "Particle shape dependence in 2d granular media," *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 98, no. 4, p. 44008, 2012.
- [102] K. Szarf, G. Combe, and P. Villard, "Particle shape effect on macroscopic behaviour of underground structures : numerical and experimental study," *Studia Geotechnica et Mechanica*, vol. 36, no. 3, pp. 67–74, 2014.
- [103] P. R. Rittinger, *Lehrbuch der Aufbereitungskunde*. Ernst and Korn, Berlin, 1867.
- [104] M. Temmerman, P. D. Jensen, and J. H bert, "Von Rittinger theory adapted to wood chip and pellet milling, in a laboratory scale hammermill," *Biomass and Bioenergy*, vol. 56, pp. 70–81, 2013.

- [105] Z. Ghorbani, A. A. Masoumi, and A. Hemmat, "Specific energy consumption for reducing the size of alfalfa chops using a hammer mill," *Biosystems Engineering*, vol. 105, no. 1, pp. 34–40, 2010.
- [106] F. C. Bond, "The third theory of comminution," *Transactions on AIME Mining Engineering*, vol. 193, pp. 484–494, 1952.
- [107] N. Magdalinović, "A procedure for rapid determination of the Bond work index," *International Journal of Mineral Processing*, vol. 27, no. 1-2, pp. 125–132, 1989.
- [108] Blazy, "Fragmentation - Aspects théoriques," *Techniques de l'Ingénieur*, 2006.
- [109] R. T. Hukki, "Proposal for a solomnic settlement between theories of von Rittinger, Kick and Bond.," *Transactions of AIME*, p. 223, 1962.
- [110] P. Blazy, E.-a. Jdid, and J. Yvon, "Fragmentation - Technologie," *Techniques de l'Ingénieur*, 2006.
- [111] T. Yokoyama and Y. Inoue, "Chapter 10 Selection of Fine Grinding Mills," *Handbook of Powder Technology*, vol. 12, no. 07, pp. 487–508, 2007.
- [112] H. Mio, J. Kano, F. Saito, and K. Kaneko, "Effects of rotational direction and rotation-to-revolution speed ratio in planetary ball milling," *Materials Science and Engineering A*, vol. 332, no. 1-2, pp. 75–80, 2002.
- [113] H. Watanabe, "Critical rotation speed for ball-milling," *Powder Technology*, vol. 104, no. 1, pp. 95–99, 1999.
- [114] K. Shoji, L. G. Austin, F. Smaila, K. Brame, and P. T. Luckie, "Further studies of ball and powder filling effects in ball milling," *Powder Technology*, vol. 31, no. 1, pp. 121–126, 1982.
- [115] L. Austin, R. Klimpel, and P. Luckie, *Process Engineering of Size Reduction : Ball Milling*. Society of Mining Engineers of the AIME, 1984.
- [116] V. Deniz and T. Onur, "Investigation of the breakage kinetics of pumice samples as dependent on powder filling in a ball mill," *International Journal of Mineral Processing*, vol. 67, no. 1-4, pp. 71–78, 2002.
- [117] D. Touil, S. Belaadi, and C. Frances, "The specific selection function effect on clinker grinding efficiency in a dry batch ball mill," *International Journal of Mineral Processing*, vol. 87, no. 3-4, pp. 141–145, 2008.
- [118] R. Y. Yang, A. B. Yu, L. McElroy, and J. Bao, "Numerical simulation of particle dynamics in different flow regimes in a rotating drum," *Powder Technology*, vol. 188, no. 2, pp. 170–177, 2008.
- [119] S. A. Silling, "Reformulation of elasticity theory for discontinuities and long-range forces," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 48, no. 1, pp. 175–209, 2000.
- [120] W. Gerstle, N. Sau, and S. Silling, "Peridynamic modeling of concrete structures," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 237, no. 12-13, pp. 1250–1258, 2007.
- [121] E. Celik, I. Guven, and E. Madenci, "Simulations of nanowire bend tests for extracting mechanical properties," *Theoretical and Applied Fracture Mechanics*, vol. 55, no. 3, pp. 185–191, 2011.
- [122] P. Perré, G. Almeida, M. Ayouz, and X. Frank, "New modelling approaches to predict wood properties from its cellular structure : image-based representation and meshless methods," *Annals of Forest Science*, vol. 73, no. 1, pp. 147–162, 2016.
- [123] Y. D. Ha and F. Bobaru, "Characteristics of dynamic brittle fracture captured with peridynamics," *Engineering Fracture Mechanics*, vol. 78, no. 6, pp. 1156–1168, 2011.
- [124] M. Allen and D. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids*. Oxford Science Publ, Clarendon Press, 1989.
- [125] J. Kertész, "8 - dielectric breakdown and single crack models," in *Statistical Models for the Fracture of Disordered Media* (H. J. Herrmann and S. Roux, eds.), Random Materials and Processes, pp. 261 – 290, Amsterdam : North-Holland, 1990.
- [126] V. Topin, J. Y. Delenne, F. Radjai, L. Brendel, and F. Mabilie, "Strength and failure of cemented granular matter," *European Physical Journal E*, vol. 23, no. 4, pp. 413–429, 2007.

- [127] A. Freimanis and A. Paeglitis, "Mesh Sensitivity in Peridynamic Quasi-static Simulations," *Procedia Engineering*, vol. 172, pp. 284–291, 2017.
- [128] A. Yaghoobi and M. G. Chorzepa, "Meshless modeling framework for fiber reinforced concrete structures," *Computers and Structures*, vol. 161, pp. 43–54, 2015.
- [129] H. Lin, W. Xiong, W. Zhong, and C. Xia, "Location of the Crack Initiation Points in the Brazilian Disc Test," *Geotechnical and Geological Engineering*, vol. 32, no. 5, pp. 1339–1345, 2014.
- [130] A. P. Roberts and E. J. Garboczi, "Elastic properties of model random three-dimensional open-cell solid," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. 50, no. March 2016, pp. 33–55, 2002.
- [131] X. Frank, J.-Y. Delenne, S. Nezamabadi, and F. Radjai, "Peridynamic approach for the failure of porous, granular and cellular materials," *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, (Soumis).
- [132] M. Paterson and T.-f. Wong, *Experimental Rock Deformation - The Brittle Field*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2 ed., 2005.
- [133] L. Vandevenne, "<http://lodev.org/cgtutor/floodfill.html>."
- [134] Z. P. Bažant, "Size effect on structural strength : a review," *Archive of applied Mechanics*, vol. 69, no. 9-10, pp. 703–725, 1999.
- [135] L. Oddershede, P. Dimon, and J. Bohr, "Self-Organized Criticality in Fragmenting," *Physical Review Letters*, vol. 71, no. 19, pp. 3107–3110, 1993.
- [136] A. Meibom and I. Balslev, "Composite power laws in shock fragmentation," *Physical Review Letters*, vol. 76, no. 14, pp. 2492–2494, 1996.
- [137] F. Wittel, F. Kun, H. J. Herrmann, and B. H. Kröplin, "Fragmentation of shells," *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 3, pp. 035504–1, 2004.
- [138] L. Turcotte, "Fractals and Fragmentation," *Journal Of Geophysical Research*, vol. 91, no. B2, pp. 1921–1926, 1986.
- [139] Y. Chen, Y. Ding, D. G. Papadopoulos, and M. Ghadiri, "Energy-Based Analysis of Milling a -Lactose Monohydrate," *Journal Of Pharmaceutical Sciences*, vol. 93, no. 4, pp. 886–895, 2004.
- [140] P. Karinkanta, M. Illikainen, and J. Niinimäki, "Impact-based pulverisation of dried and screened Norway spruce (*Picea abies*) sawdust in an oscillatory ball mill," *Powder Technology*, vol. 233, pp. 286–294, 2013.
- [141] E. C. Arvaniti, M. C. G. Juenger, S. A. Bernal, J. Duchesne, L. Courard, S. Leroy, J. L. Provis, A. Klemm, and N. De Belie, "Determination of particle size, surface area, and shape of supplementary cementitious materials by different techniques," *Materials and Structures*, vol. 48, no. 11, pp. 3687–3701, 2015.
- [142] K. Sing, "The use of nitrogen adsorption for the characterisation of porous materials," *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 187-188, pp. 3–9, 2001.
- [143] M. Gómez-Tena, J. Gilibert, C. Machí, E. Zumaquero, and J. Toledo, "Relationship between the specific surface area parameters determined using different analytical techniques," *Xii Foro Global Del Recubrimiento Cerámico. Qualicer 2014*, no. 1, pp. 1–10, 2014.
- [144] D. W. Fuerstenau and A. Z. Abouzeid, "The energy efficiency of ball milling in comminution," *International Journal of Mineral Processing*, vol. 67, no. 1-4, pp. 161–185, 2002.
- [145] D. A. C. Garcia, *Compaction des matériaux granulaires fragmentables en 3D*. PhD thesis, Laboratoire de Mécanique et Génie Civil, 2017.
- [146] J. T. Hagan, "Impossibility of fragmenting small particles : brittle-ductile transition," *Journal of materials science*, vol. 16, pp. 2909–2911, 1981.
- [147] M. Vaezi, V. Pandey, A. Kumar, and S. Bhattacharyya, "Lignocellulosic biomass particle shape and size distribution analysis using digital image processing for pipeline hydro-transportation," *Biosystems Engineering*, vol. 114, no. 2, pp. 97–112, 2013.

- [148] A. Donev, R. Connelly, F. H. Stillinger, and S. Torquato, "Underconstrained jammed packings of nonspherical hard particles : Ellipses and ellipsoids," *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 75, no. 5, pp. 1–32, 2007.
- [149] E. Azéma and F. Radjaï, "Stress-strain behavior and geometrical properties of packings of elongated particles," *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 81, no. 5, 2010.
- [150] O. Altun, H. Benzer, and U. Enderle, "Effects of operating parameters on the efficiency of dry stirred milling," *Minerals Engineering*, vol. 43-44, pp. 58–66, 2013.
- [151] H. Choi, W. Lee, D. U. Kim, S. Kumar, S. S. Kim, H. S. Chung, J. H. Kim, and Y. C. Ahn, "Effect of grinding aids on the grinding energy consumed during grinding of calcite in a stirred ball mill," *Minerals Engineering*, vol. 23, no. 1, pp. 54–57, 2010.
- [152] J. Zheng, C. C. Harris, and P. Somasundaran, "The effect of additives on stirred media milling of limestone," *Powder Technology*, vol. 91, no. 3, pp. 173–179, 1997.
- [153] C. J. Engelsens, "Quality improvers in cement making - State of the art," tech. rep., 2008.
- [154] R. K. Mishra, R. J. Flatt, and H. Heinz, "Force Field for Tricalcium Silicate and Insight into Nanoscale Properties : Cleavage , Initial Hydration , and Adsorption of Organic Molecules," *Journal of Physical Chemistry C*, 2013.
- [155] G. Micco, P. A. Netti, L. Nicolais, A. Collina, and G. Astarita, "A novel approach for grinding operation scale-up," *Chemical Engineering Science*, vol. 55, no. 8, pp. 1347–1356, 2000.
- [156] A. Jeknavorian, E. Barry, and F. Serafin, "Determination of grinding aids in portland cement by pyrolysis gas chromatography-mass spectrometry," *Cement and Concrete Research*, vol. 28, no. 9, pp. 1335–1345, 1998.
- [157] P. Cassat, *Détermination des mécanismes d'action de deux agents de mouture du ciment par désorption laser couplée à la spectrométrie de masse à transformée de Fourier*. PhD thesis, 1998. 1998METZ045S.
- [158] E. Romilliat, *A study on the action mechanisms of grinding aids used for clinker comminution*. Theses, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, Jan. 2006.
- [159] H. El-Shall and P. Somasundaran, "Physico-chemical aspects of grinding : a review of use of additives," *Powder Technology*, vol. 38, no. 3, pp. 275 – 293, 1984.
- [160] R. R. Klimpel and W. Manfroy, "Chemical grinding aids for increasing throughput in the wet grinding of ores," *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, vol. 17, no. 4, pp. 518–523, 1978.
- [161] N. A. Toprak, O. Altun, N. Aydogan, and H. Benzer, "The influences and selection of grinding chemicals in cement grinding circuits," *Construction and Building Materials*, vol. 68, pp. 199–205, 2014.
- [162] O. Altun, H. Benzer, A. Toprak, and U. Enderle, "Utilization of grinding aids in dry horizontal stirred milling," *Powder Technology*, vol. 286, pp. 610–615, 2015.
- [163] S. K. Moothedath and S. C. Ahluwalia, "Mechanism of action of grinding aids in comminution," *Powder Technology*, vol. 71, no. 3, pp. 229–237, 1992.
- [164] J. Visser, "Van der Waals and other cohesive forces affecting powder fluidization," *Powder Technology*, vol. 58, no. 1, pp. 1–10, 1989.
- [165] A. R. C. Westwood, "Tewksbury lecture : Control and application of environment-sensitive fracture processes," *Journal of Materials Science*, vol. 9, no. 11, pp. 1871–1895, 1974.
- [166] A. R. Westwood, J. S. Ahearn, and J. J. Mills, "Developments in the theory and application of chemomechanical effects," *Colloids and Surfaces*, vol. 2, no. 1, pp. 1–35, 1981.
- [167] E. D. Shchukin, "Physical-chemical mechanics in the studies of Peter A. Rehbinder and his school," *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, vol. 149, no. 1-3, pp. 529–537, 1999.

- [168] T. Chataing, C. BAUW, and T. MELKIOR, "Method for finely grinding a carbonated material load with additives added, and associated continuous biomass processing installation and gasification application," Aug. 8 2013. WO Patent App. PCT/IB2013/050,863.
- [169] T. Chataing, C. BAUW, and T. MELKIOR, "Method for finely grinding a feed of carbonaceous material, continuous biomass processing facility, and associated gasification application," Aug. 8 2013. WO Patent App. PCT/IB2013/050,862.
- [170] J. C. Motte, J. Y. Delenne, X. Rouau, and C. Mayer-Laigle, "Mineral-vegetal co-milling : An effective process to improve lignocellulosic biomass fine milling and to increase interweaving between mixed particles," *Bioresource Technology*, vol. 192, pp. 703–710, 2015.
- [171] E. Doroodchi, H. Zulficar, and B. Moghtaderi, "A combined experimental and theoretical study on laboratory-scale comminution of coal and biomass blends," *Powder Technology*, vol. 235, pp. 412–421, 2013.
- [172] L. Axelsson, M. Franzén, M. Ostwald, G. Berndes, G. Lakshmi, and N. H. Ravindranath, "Perspective : Jatropha cultivation in southern India : Assessing farmers' experiences," *Biofuels, Bioproducts and Biorefining*, vol. 6, no. 3, pp. 246–256, 2012.
- [173] D. Boylan, V. Bush, and D. I. Bransby, "Switchgrass cofiring : Pilot scale and field evaluation," *Biomass and Bioenergy*, vol. 19, no. 6, pp. 411–417, 2000.
- [174] Y. Javadzadeh, K. Adibkia, Z. Bozorgmehr, and S. Dastmalchi, "Evaluating retardation and physicochemical properties of co-ground mixture of Na- diclofenac with magnesium stearate," *Powder Technology*, vol. 218, pp. 51–56, 2012.
- [175] M. Vogt, M. Vertzoni, K. Kunath, C. Reppas, and J. B. Dressman, "Cogrinding enhances the oral bioavailability of EMD 57033, a poorly water soluble drug, in dogs," *European Journal of Pharmaceutics and Biopharmaceutics*, vol. 68, no. 2, pp. 338–345, 2008.
- [176] M. Lau, P. M. Young, D. Traini, L. M., Y. P.M., and T. D., "A review of co-milling techniques for the production of high dose dry powder inhaler formulation," *Drug Development and Industrial Pharmacy*, vol. 0, no. 0, pp. 1–10, 2017.
- [177] V. Kovacevic, D. Packham, S. Lucic, D. Hace, and I. Smit, "Composites of Poly(Vinyl Acetate) Filled With Calcium Carbonate : Microscopy, Diffractometry and Thermophysical Properties," *Polymer Engineering and Science*, vol. 39, no. 8, pp. 1433–1443, 1999.
- [178] V. Kovačević, S. Lučić, and Ž. Cerovečki, "Influence of filler surface pre-treatment on the mechanical properties of composites," *International Journal of Adhesion and Adhesives*, vol. 17, no. 3, pp. 239–245, 1997.
- [179] C. Zapata-Massot and N. Le Bolay, "Effect of the mineral filler on the surface properties of co-ground polymeric composites," *Particle and Particle Systems Characterization*, vol. 24, no. 4-5, pp. 339–344, 2007.
- [180] A. Seyni, N. Le Bolay, and A. Lamure, "Matrix-filler interactions in a co-ground ecomposite : Surface properties and behaviour in water," *Powder Technology*, vol. 208, no. 2, pp. 390–398, 2011.
- [181] N. Le Bolay and S. Molina-Boisseau, "Production of PVAc-starch composite materials by co-grinding - Influence of the amylopectin to amylose ratio on the properties," *Powder Technology*, vol. 255, pp. 36–43, 2014.
- [182] C. Lu and Q. Wang, "Preparation of ultrafine polypropylene/iron composite powders through pan-milling," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 145, no. 3, pp. 336–344, 2004.
- [183] C. Suryanarayana, "Mechanical alloying and milling," *Progress in Materials Science*, vol. 46, no. 1-2, pp. 1–184, 2001.
- [184] G. E. Korth and R. L. Williamson, "Dynamic consolidation of metastable nanocrystalline powders," *Metallurgical and Materials Transactions A*, vol. 26, no. 10, pp. 2571–2578, 1995.
- [185] P.-Y. Lee, J. Yang, and H. Lin, "Amorphization behaviour in mechanically alloyed Ni—Ta powders," *Journal of materials science*, vol. 3, no. 1, pp. 235–239, 1998.

- [186] J. Font, J. Muntasell, and E. Cesari, "BINARY MIXTURES OF SEMICRYSTALLINE/NONCRYSTALLINE POLYMERS FORMED BY BALL MILLING," *Material Research Bulletin*, vol. 34, no. 14-15, pp. 2221-2230, 1999.
- [187] A. Barakat, H. de Vries, and X. Rouau, "Dry fractionation process as an important step in current and future lignocellulose biorefineries : A review," *Bioresource Technology*, vol. 134, pp. 362-373, 2013.
- [188] G. G. D. Silva and S. G. X. Rouau, "Successive centrifugal grinding and sieving of wheat straw," *Powder Technology*, vol. 208, no. 2, pp. 266-270, 2011.
- [189] D. L. Black, M. Q. McQuay, and M. P. Bonin, "Laser-based techniques for particle-size measurement : A review of sizing methods and their industrial applications," *Progress in Energy and Combustion Science*, vol. 22, no. 3, pp. 267-306, 1996.
- [190] C. Voivret, F. Radjaï, J. Y. Delenne, and M. S. El Youssofi, "Space-filling properties of polydisperse granular media," *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, vol. 76, no. 2, pp. 1-12, 2007.
- [191] K. Levenberg, "A method for the solution of certain non-linear problems in least squares," *The Quarterly of Applied Mathematics*, vol. 2, pp. 164-168, 1944.
- [192] D. W. Marquardt, "An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters," 1963.
- [193] F. Devernay, "C/c++ minpack." <http://devernay.free.fr/hacks/cminpack/>, 2007.
- [194] L. M. Popplewell and M. Peleg, "Theoretical kinetic model for particulates disintegration processes that result in bimodal size distributions," *Powder Technology*, vol. 70, no. 1, pp. 21-30, 1992.
- [195] Y. Yang, G. Ji, W. Xiao, and L. Han, "Changes to the physicochemical characteristics of wheat straw by mechanical ultrafine grinding," *Cellulose*, pp. 3257-3268, 2014.
- [196] M. R. Martelli, F. Brygo, A. Sadoudi, P. Delaporte, and C. Barron, "Laser-induced breakdown spectroscopy and chemometrics : A novel potential method to analyze wheat grains," *Journal of Agricultural and Food Chemistry*, vol. 58, no. 12, pp. 7126-7134, 2010.
- [197] B. Epstein, "Logarithmico-Normal Distribution in Breakage of Solids," *Industrial & Engineering Chemistry*, vol. 40, no. 12, pp. 2289-2291, 1948.
- [198] L. G. Austin, "Introduction to the mathematical description of grinding as a rate process," *Powder Technology*, vol. 5, no. 1, pp. 1-17, 1971.
- [199] L. G. Austin and P. T. Luckie, "The estimation of non-normalized breakage distribution parameters from batch grinding tests," *Powder Technology*, vol. 5, no. 5, pp. 267-271, 1972.

Etude de la fragmentation de milieux granulaires : Modélisation numérique à l'échelle du grain et analyse expérimentale du broyage de matières minérales et végétale

Le broyage est une opération couramment réalisée dans de nombreux secteurs industriels. Malgré son apparente simplicité, le broyage met en jeu des phénomènes de fragmentation complexes dépendant à la fois des propriétés de la matière, des sollicitations mécaniques dans le broyeur, et de la dynamique des poudres au sein de celui-ci. Aujourd'hui l'évolution des technologies de broyage repose essentiellement sur un savoir-faire empirique et de nombreux efforts sont encore à déployer pour améliorer leur efficacité énergétique. Cette optimisation ne pourra être réalisée qu'en s'appuyant sur une connaissance fine des phénomènes mis en jeux à plusieurs échelles (échelle sub-particulaire, échelle de la particule, du lit de poudre et du procédé).

L'objectif de ces travaux de thèse est de mettre en évidence les paramètres clés influençant les mécanismes de comminution et l'efficacité énergétique du broyage. Un modèle numérique de rupture de particules présentant des défauts sous forme de clivage a été mis en œuvre. Il a permis notamment d'analyser l'influence de la distribution spatiale des fissures sur la statistique des seuils de rupture en lien avec les chemins de fissures et la taille des fragments. A l'échelle du procédé, une étude expérimentale, réalisée au sein d'un broyeur de laboratoire, a permis de proposer un modèle énergétique s'inspirant de celui de Rittinger mais tenant compte des phénomènes d'agglomération. Ce modèle a ensuite été généralisé à différentes technologies de broyage à media broyant pour comparer leur efficacité énergétique lors du broyage de matières minérales, végétale ainsi qu'en condition de cobroyage.

Study of the fragmentation of granular media: modelisation at the grain scale and experimental analysis of the milling of minerals and vegetal materials

Although grinding is a widespread operation in industrial processes, it remains poorly understood. The difficulty to model grinding not only lies in the complexity of the fragmentation, which depends on material properties and loading dynamics, but also on the stress transmission from the grinder to the particles. The development of grinding technologies has led to an empirical know-how, and much more effort is still needed to understand the mechanisms of the comminution of particles. This objective can be achieved only by increasing knowledge on the phenomena involved at different scales (sub-particle heterogeneities, particle, powder bed and boundary conditions of the process).

In this PhD work, we investigate the key parameters influencing comminution mechanisms and the energetic efficiency of grinding. A numerical model of particle breakage including a subparticle distribution of cleavages was developed. This model allowed us to analyze the cracks patterns, fragment sizes and probability distribution of failure. At the scale of the process, an extensive experimental study of comminution was carried out using a laboratory mill. An energy evolution inspired by Rittinger model but taking into account the agglomeration phenomena was proposed. This model was then extended to other grinding technologies to compare the energy efficiency for grinding minerals, vegetal particles and their comilling.

