

# **PRÉDICTION ET COMPRÉHENSION DE LA DENSIFICATION DES POUDRES COMMERCIALES D'ALUMINE ET DE FER GRÂCE À UNE APPROCHE PAR RÉSEAU DE NEURONES ARTIFICIELS**

THÈSE N° 3021 (2004)

PRÉSENTÉE À LA FACULTÉ SCIENCES ET TECHNIQUES DE L'INGÉNIEUR

Institut des matériaux

SECTION DES MATÉRIAUX

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES TECHNIQUES

PAR

**Violaine GUERIN**

ingénieur en sciences et génie des matériaux, Université J. Fourier, Grenoble, France  
et de nationalité française

acceptée sur proposition du jury:

Prof. H. Hofmann, directeur de thèse

Dr P. Bowen, rapporteur

Prof. C. Carry, rapporteur

Prof. K. Scrivener, rapporteur

Dr M. Staiger, rapporteur

Lausanne, EPFL  
2004



*À Lou, Lilou et Lolo...*



# Remerciements

Je profite de ces quelques lignes imparties, pour adresser ma gratitude et mes remerciements à tous ceux qui m'ont aidé, sous quelque forme que ce soit, à réaliser ce travail de longue haleine que constitue une thèse. Tous ceux sans qui ce chapitre de ma vie n'aurait probablement pu être écrit.

Merci donc aux personnes suivantes :

- Prof. H.Hofmann, directeur du Laboratoire de Technologie des Poudres et directeur de ma thèse, pour m'avoir accueillie au sein de son équipe et pour son appui scientifique.
- Paul Bowen, pour sa disponibilité à toute heure de la journée, pour ses conseils avisés et ses connaissances approfondies en technologie des poudres.
- Yvonne Axmann, Annie Ferrari & Alke Petri pour leur amitié, gentillesse et gaieté apportées en toute circonstance.
- Mathieu Chastellain & Frédéric Juillerat, pour leur duo toujours accompagné de bonne humeur et d'enjouement.
- Raymond Oesch et Carlos Morais pour leur aide technologique précieuse et leur sympathie.
- A tous les autres membres du LTP avec qui mes contacts ont été aussi divers qu'enrichissants.
- A toute ma famille et mes amis pour l'immuabilité de leur soutien moral et pour avoir toujours cru en moi.
- Et enfin à tous ceux que j'aurais pu oublier.



# *Abstract*

The influence of the properties of commercial powders on the densification during their packing, compaction and sintering process is still not understood in detail. With regard to the sintering process, neither the well-known sintering equation for the first sintering step nor the relation between the density and grain size at the final sintering step can describe the influence of powder characteristics on its densification behaviour. For improving the sintered density of a ceramic powder, it is known to be crucial to start with a highly dense and homogeneous green body. Therefore, the powder has to fulfil different requirements such as being agglomerate free, reasonably spherical and having a narrow size distribution (but not mono-dispersed).

The aim of this work is to develop a better understanding of the relation between the powder properties and the densification behaviour during the packing, compaction and sintering process, of commercial, micron sized, metallic and ceramic powders. Another aim of this work is to evaluate if prediction of the packed, green and sintered densities based only on the known powder characteristics is possible via a neural network approach.

The presented results show that a well learnt neural network is a useful tool for the prediction of green and sintered densities of granulated alumina powder produced either by milling (Bayer process) or by chemical processes. Moreover, the simulated influences of characteristics, on the green and sintered densifications, fit well literature models behaviours and intrinsic properties of such powders. Concerning the green densification, Bayer powders are denser for coarser particles and/or a broader size distribution. Relating to the chemically produced powders, those tendencies are inversed, due a stronger agglomeration with a broader size distribution and coarser particles. Regarding the sintered density, the neuronal approach highlights a better sinterability for finer powders.

Limits of the artificial neural network tool are emphasized with its application to metallic powders: the learning stage seems to be primeval and simulated results are to be analysed and interpreted with care and inside the validity domain of each specific artificial neural network.





# *Version abrégée*

L'influence des caractéristiques des poudres commerciales sur leur comportement à la densification lors de l'empilement, du compactage et du frittage n'est toujours pas connue en détail. Par exemple, concernant le frittage, ni l'équation bien connue régissant la première étape du frittage, ni la relation entre la densité et la taille de grain de l'étape finale ne peut décrire l'influence des caractéristiques physiques d'une poudre sur son comportement à la densification. Il est certes connu, qu'un paramètre très important pour améliorer la densité frittée d'une poudre céramique, est de commencer le frittage avec un corps vert très dense et homogène. Et que pour fabriquer de tels corps verts par compression à sec, cette poudre céramique doit remplir différentes conditions telles qu'être exempte d'agglomérats, avoir une forme de particule relativement sphérique et avoir une distribution de taille étroite mais non monodisperse.

Le but de cette étude est de développer une meilleure compréhension des relations entre propriétés physiques des poudres et densification lors de l'empilement, le compactage et le frittage de poudres commerciales microniques céramiques et métalliques. Un autre but de ce travail est d'évaluer si la prédiction des densités tassée, crue et frittée, basée uniquement sur des caractéristiques connues des poudres, est possible par l'utilisation d'une approche par réseau de neurones.

Les résultats présentés montrent qu'un réseau de neurones artificiels bien éduqué est un outil utile pour la prédiction des densités verte et frittée de poudres d'alumine granulée produite soit par broyage (procédé Bayer), soit par voie chimique. De plus, les tendances, dégagées par l'approche neuronale, des influences des caractéristiques sur la densification verte et frittée de ce type de poudre, sont en accord avec les comportements, mis en évidence dans les modèles de la littérature, et les propriétés intrinsèques de ces poudres. Ainsi, concernant la densification verte, les poudres d'alumine de type Bayer ont une densité verte plus élevée pour des particules plus grosses et dont la distribution en taille est plus large. Pour les poudres d'alumine élaborées par voie chimique, la tendance est inversée, ce qui est expliqué par une agglomération plus forte lors de l'élévation de la taille moyenne des particules et de l'élargissement de la distribution en taille. Concernant la densification frittée, l'approche neuronale met en autre en évidence, une meilleure frittabilité pour les poudres les plus fines.

Les limites de cet outil réseaux de neurones artificiels sont dégagées lors de son application aux poudres métalliques: la phase d'apprentissage est primordiale et les résultats simulés sont à analyser et interpréter avec discernement et dans les limites du domaine de validité du réseau de neurones artificiels créé, spécifique à chaque problématique.



# Table des matières

<b>1. INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
<b>1.1. INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>1</b>
1.1.1. LES DENSITES D'EMPILEMENT, VERTES ET FRITTEES DE POUDRES .....	1
1.1.2. LE RESEAU DE NEURONES .....	2
1.1.2.1. Principe .....	2
1.1.2.2. Applications .....	3
1.1.2.3. L'inspiration biologique .....	3
<b>1.2. PRESENTATION DE LA PROBLEMATIQUE .....</b>	<b>4</b>
<b>1.3. DEROULEMENT DE L'ETUDE .....</b>	<b>4</b>
<b>2. LES MODELES DE LA LITTERATURE .....</b>	<b>6</b>
<b>2.1. DENSIFICATION LORS DE L'EMPILEMENT DES PARTICULES .....</b>	<b>7</b>
2.1.1. MODELES EXPERIMENTAUX, EMPIRIQUES ET SEMI-EMPIRIQUES .....	7
2.1.1.1. Porosité versus sphéricité .....	7
2.1.1.2. Effet de la présence d'agglomérats sur la porosité d'empilement .....	12
2.1.1.3. Densité versus taille $d_{50}$ des particules .....	13
2.1.1.4. Densité en fonction de la distribution en taille des particules .....	16
2.1.2. MODELES NUMERIQUES ET ANALYTIQUES (ASSISTES PAR ORDINATEUR) .....	19
2.1.2.1. Les concepts d'arrangement collectif .....	20
Modèles descriptifs .....	20
Influence de la distribution en taille des particules .....	22
Influence de la taille des particules .....	25
Influence du nombre de coordination des particules .....	26
Influence de la sphéricité des particules .....	27
2.1.2.2. Les algorithmes mathématiques .....	29
2.1.5. TENDANCES GENERALES DEGAGEES PAR LES MODELES .....	31
2.1.5. CONCLUSIONS .....	31
<b>2.2. DENSIFICATION LORS DU COMPACTAGE D'UNE POUDRE .....</b>	<b>33</b>
2.2.1. MODELES EMPIRIQUES .....	34
2.2.1.1. Les alumines .....	34
2.2.1.2. Les poudres métalliques .....	38
2.2.1.3. Les autres poudres .....	43

2.2.2. MODELES THEORIQUES .....	45
2.2.2.1. Modèle de plasticité incrémentale Green & Shima, Brown & Weber, Cam-Clay, Drucker & Prager.....	48
2.2.2.2. Le modèle micromécanique: Lui et al., Akisanya et al., Cocks .....	49
2.2.2.3. Le modèle des états de contraintes hydrostatiques: Helle et al. ....	50
2.2.3. MODELES NUMERIQUES ET ANALYTIQUES (ASSISTES PAR ORDINATEUR) .....	50
2.2.3.1. Modèles basés sur la déformation plastique .....	50
2.2.3.2. Modélisation de la distribution en taille des pores .....	51
2.2.3. CONCLUSION .....	51
<b>2.3. DENSIFICATION LORS DU FRITTAGE D'UN CORPS VERT .....</b>	<b>53</b>
2.3.1. MODELES EMPIRIQUES .....	56
2.3.1.1. 1 <sup>ère</sup> étape du frittage .....	56
2.3.1.2. Etape intermédiaire du frittage .....	59
2.3.1.3. Etape finale du frittage.....	61
2.3.1.4. Frittage de composites .....	67
2.3.2. MODELES SEMI-EMPIRIQUES .....	68
2.3.3. MODELES NUMERIQUES ET ANALYTIQUES .....	70
2.3.4. CONCLUSIONS.....	71
<b><u>3. LE RESEAU DE NEURONES ARTIFICIEL .....</u></b>	<b><u>73</u></b>
<b>3.1. L'INSPIRATION BIOLOGIQUE.....</b>	<b>73</b>
<b>3.2. LE MODELE NEURONAL ET LES ARCHITECTURES DE RESEAUX. ....</b>	<b>75</b>
3.2.1. OBJECTIFS.....	75
3.2.2. THEORIE ET EXEMPLES .....	75
3.2.2.1. Notation .....	75
3.2.2.2. Modèle du neurone .....	75
3.2.2.3. Les architectures de neurones .....	78
<b>3.3. APPRENTISSAGE DU RESEAU DE NEURONES.....</b>	<b>79</b>
<b>3.4. UTILISATION DE L'APPROCHE NEURONALE POUR LA PROBLÉMATIQUE DE CETTE ÉTUDE .....</b>	<b>80</b>
3.4.1. CHOIX DES NEURONES D'ENTREE .....	81
3.4.2. OPTIMISATION DE LA CONFIGURATION DU RESEAU DE NEURONES ARTIFICIEL .....	82
3.4.2.1. Choix du nombre de couches cachées .....	82
3.4.2.2. Choix du nombre de neurones dans la couche cachée.....	82
3.4.2.3. Choix de la fonction de transfert .....	83
3.4.2.3. Choix des paramètres d'apprentissage .....	83

3.4.3. ECHANTILLONNAGE DE LA BASE DE DONNEES D'APPRENTISSAGE .....	82
<b>3.5. EXEMPLES DE LA LITTÉRATURE .....</b>	<b>83</b>
<b><u>4. PARTIE EXPERIMENTALE.....</u></b>	<b><u>86</u></b>
<b>4.1. CHOIX ET CARACTERISATION DES POUDRES .....</b>	<b>86</b>
4.1.1. ALUMINE .....	86
4.1.2. CRÉATION DE POUDRES ARTIFICIELLES .....	89
4.1.3. POUDRES DE FER.....	91
<b>4.2. LE RESEAU DE NEURONES .....</b>	<b>93</b>
4.2.1. OUTIL UTILISE.....	93
4.2.2. LES ALUMINES .....	93
4.2.2.1. Simulation de la densité verte .....	93
4.2.2.2. Simulation de la densité frittée .....	94
4.2.3. LES POUDRES METALLIQUES .....	94
4.2.3.1. Simulation de la densité tassée .....	94
4.2.3.2. Simulation de la densité verte.....	94
4.2.3.3. Simulation de la dureté Brinell des corps frittés.....	95
4.2.3.4. Simulation de la courbe de densification lors du compactage.....	96
<b><u>5. VALIDATION DE LA FIABILITE DU NN .....</u></b>	<b><u>98</u></b>
<b>5.1. OPTIMISATION DES PARAMETRES DE FONCTIONNEMENT DES RESEAUX DE NEURONES .</b>	<b>98</b>
<b>5.2. LES ALUMINES .....</b>	<b>98</b>
5.2.1. PREDICTION DE LA DENSITE VERTE .....	99
5.2.2. PREDICTION DE LA DENSITE FRITTEE.....	101
<b>5.3. LES POUDRES DE FER.....</b>	<b>103</b>
5.3.1. PREDICTION DE LA DENSITE TASSEE RELATIVE .....	103
5.3.2. PREDICTION DE LA POROSITE VERTE RELATIVE (COMPACTEE SOUS 75kN) .....	106
5.3.3. PREDICTION DE LA POROSITE VERTE RELATIVE(COMPACTEE SOUS 135kN) .....	108
5.3.4. PREDICTION DE LA DURETE BRINELL DES CORPS FRITTES .....	111
5.3.5. PREDICTION DE LA COURBE DE DENSIFICATION LORS DU COMPACTAGE DES POUDRES DE FER.....	111
<b>5.4. CONCLUSIONS.....</b>	<b>111</b>
<b><u>6. RESULTATS &amp; DISCUSSIONS.....</u></b>	<b><u>113</u></b>

<b>6.1. ALUMINES.....</b>	<b>113</b>
6.1.1. COMPARAISON DES DENSITES SIMULEES PAR LE RESEAU DE NEURONES ET LES VALEURS DE LA LITTERATURE .....	113
6.1.2. FACTEURS INFLUENTS SUR LA DENSITE VERTE DES POUDRES D'ALUMINE .....	115
6.1.2.1. Comportement à la densification des poudres artificielles de type Bayer.....	115
Influence de la largeur de la distribution en taille des particules.....	118
Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules.....	122
Influence de la surface spécifique BET .....	123
6.1.2.2. Comportement à la densification des poudres artificielles précipitées.....	125
Influence de la largeur de la distribution en taille des particules.....	127
Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules.....	129
6.1.2.3. Conclusions sur les facteurs influant la densification verte des poudres d'alumine.....	129
6.1.3. FACTEURS INFLUENTS SUR LA DENSITE FRITTEE DES POUDRES D'ALUMINE.....	130
6.1.3.1. Comportement à la densification frittée des poudres artificielles Bayer .....	130
Influence de la taille moyenne des particules $d_{50}$ .....	131
Influence de largeur de la distribution en taille des particules $\sigma_g$ .....	132
Influence de la pureté de la poudre : influence de la concentration en silice ..	134
Influence de la surface spécifique BET .....	134
Influence de la densité crue sur le frittage .....	136
6.1.3.2. Comportement à la densification des poudres artificielles précipitées.....	138
Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules.....	138
Influence de largeur de la distribution en taille des particules $\sigma_g$ .....	138
Influence de la pureté de la poudre : influence de la concentration en silice ..	140
Influence de la densité crue après compactage .....	141
6.1.3.3. Conclusions sur les facteurs influant la densification frittée des poudres d'alumine.....	142
<b>6.2. POUDRES DE FER .....</b>	<b>143</b>
<b><u>7. CONCLUSION GENERALE.....</u></b>	<b><u>144</u></b>
<b><u>8. ANNEXES .....</u></b>	<b><u>147</u></b>
<b>8.1. LES MODELES ISSUS DE LA LITTERATURE SUR L'EMPILEMENT, LE COMPACTAGE ET LE FRITTAGE DE POUDRES MULTIMODALES. ....</b>	<b>147</b>
8.1.1. DENSIFICATION LORS DE L'EMPILEMENT DES PARTICULES.....	147
8.1.1.1. Modèles expérimentaux, empiriques et semi-empiriques .....	147

8.1.1.2. Modèles numériques et analytiques.....	154
Les arrangements collectifs.....	154
Les algorithmes mathématiques.....	157
8.1.1.3. Conclusion .....	158
8.1.2. DENSIFICATION LORS DU FRITTAGE D'UN CORPS VERT.....	158
8.1.2.1. 1 <sup>ère</sup> étape du frittage .....	158
8.1.2.2. Conclusion .....	160
<b>8.2. TABLEAUX RECAPITULATIFS DES MODELES DE LA LITTERATURE .....</b>	<b>161</b>
8.2.1. MODELES D'EMPILEMENT .....	161
8.2.2. MODELES DE COMPACTAGE .....	164
8.2.3. MODELES DE FRITTAGE.....	168
<b>8.3. POUDRES COMMERCIALES UTILISEES POUR L'APPRENTISSAGE DU RESEAU DE NEURONES</b>	
.....	<b>171</b>
8.3.1. POUDRES D'ALUMINE .....	171
8.3.2. POUDRES METALLIQUES.....	172
<b>8.4. CREATION DE POUDRES ARTIFICIELLES .....</b>	<b>174</b>
8.4.1. POUDRES D'ALUMINE .....	174
8.4.1.1. Poudre type Bayer.....	174
8.4.1.2. Poudre précipitée .....	176
8.4.2. POUDRES METALLIQUES.....	179
<b>8.5. OPTIMISATION DE L'APPRENTISSAGE DES RESEAUX DE NEURONES ARTIFICIELS.....</b>	<b>184</b>
8.5.1. LES ALUMINES .....	184
8.5.1.1. Prédiction de la densité verte .....	184
8.5.1.2. Prédiction de la densité frittée .....	185
8.5.2. LES POUDRES DE FER .....	186
8.5.2.1. Prédiction de la densité tassée .....	186
8.5.2.2. Prédiction de la densité verte (compactée sous 75kN et sous 135kN).....	187
8.5.2.3. Prédiction de la courbe de densification lors du compactage.....	188
8.5.2.4. Prédiction de la dureté Brinell des corps frittés.....	189
8.5.3. TABLEAU RECAPITULATIF DES PROCEDURES EXPERIMENTALES.....	189
8.5.3.1. Les alumines .....	189
8.5.3.2. Les poudres de fer.....	191
<b>8.6. METHODE STATISTIQUE DEVELOPEE PAR DR. JACQUES LEMAITRE POUR SIMULER LES</b>	
<b>PARAMETRES D'UNE DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE .....</b>	<b>196</b>
<b><u>9. BIBLIOGRAPHIE .....</u></b>	<b><u>199</u></b>





## 1. INTRODUCTION

### *1.1. Introduction générale*

Actuellement, la technologie des poudres représente un domaine important de l'activité industrielle et scientifique. Les secteurs concernés sont divers et variés, allant de l'agriculture (comme l'engrais par exemple) à la chimie (exemples : réactifs, supports de catalyseurs) en passant par le bâtiment (ciment, plâtre), la médecine (prothèses osseuses et dentaires) et l'alimentaire (aliments déshydratés par exemple). Les procédés de fabrication de poudres doivent maîtriser certaines de leurs caractéristiques de base telles que la morphologie des particules de poudre, leur taille, leur distribution en taille, leur surface spécifique auxquelles s'ajoutent des propriétés propres à leurs applications (comme par exemple le contrôle de la réactivité, des propriétés optiques, de la frittabilité).

#### **1.1.1. Les densités d'empilement, vertes et frittées de poudres**

La densité verte est définie comme la densité d'un corps en poudre, mis en forme par compactage ou par coulage en barbotine, pour une application des corps crus. Les mécanismes sous-jacents du pressage restent, aujourd'hui encore, mal compris et leur modélisation par une simple équation physique s'avère impossible : de trop nombreux paramètres entrent en jeu et l'évaluation de leur importance relative reste difficile. Il est désormais connu que l'empilement joue un rôle prépondérant dans la qualité d'un corps cru, et notamment dans sa tenue mécanique et sa capacité de densification, qui sera étudiée par la suite. Ainsi, pour obtenir une densité maximale, les empilements les plus denses sont privilégiés. Dans le cas d'une poudre sphérique monotallée, 2 situations existent:

- La poudre est simplement versée dans un contenant sans agitation ni vibration: l'empilement, appelé empilement libre aléatoire (ou Random Loose Packing RLP), a une densité relative proche de 54% (porosité relative proche de 46%). Il représente la plus faible densité d'empilement stable obtenu sans ordre à longue distance ni déformation. Cette densité est analogue à la densité apparente.
- La poudre est versée dans un contenant qui est soumis à une vibration jusqu'à ce que l'empilement soit stable. La densité relative de cet empilement, appelé empilement aléatoire compact (ou Random Close Packing RCP), est voisine de 64% (porosité relative de 36%), analogue à la densité tassée. Cet empilement est le plus compact possible obtenu sans ordre à longue distance ni déformation.

Seul un arrangement des particules de poudre dans un réseau cristallin permettrait d'augmenter sa densité.

Des empilements plus denses ne peuvent être obtenus que par une poudre non monotallée ou par un mélange de poudre de particules de différentes tailles. L'empilement est donc directement relié à la distribution en taille d'une poudre. Ainsi, pour obtenir un bon corps cru, la poudre doit donc remplir certaines conditions, telles qu'avoir une forme relativement sphérique, une distribution granulométrique étroite mais non monodispersée, être exempte d'agglomérats. Mais dans quelles mesures ces paramètres influent-ils sur la densification lors de l'empilement et du pressage?

La densité frittée est la densité d'un corps vert soumis à un traitement thermique. Les équations physiques régissant le frittage sont dorénavant connues, de l'équation de la première étape [GRE73, SCH92, BER93] à celle de la dernière étape reliant la densité à la taille des grains [BRO85, HAR83]. Mais aucune d'entre elles ne peut décrire le comportement à la densification à partir des caractéristiques de la poudres initiale, telle que la distribution granulométrique. Il est certes connu qu'un corps cru dense et homogène forme un corps fritté dense, mais qu'en est-il, par exemple, d'une poudre ayant une distribution en taille log-normale et une composition chimique connues ? Est-il possible par l'analyse des caractéristiques d'une poudre de prédire sa densité verte et frittée si les conditions de compactage et de frittage sont déterminées ?

C'est pour répondre à toutes ces questions qu'une nouvelle approche a été choisie dans cette étude : l'approche par réseau de neurones artificiels.

### **1.1.2. Le réseau de neurones**

#### *1.1.2.1. Principe*

Au moment où vous lisez ces mots, vous êtes en train d'utiliser un réseau biologique complexe de neurones. Plus de  $10^{11}$  neurones interconnectés entrent en jeu pour faciliter votre lecture, votre respiration, vos mouvements et votre pensée. Chacun de ces neurones biologiques, constitué d'un riche assemblage de tissu et de chimie, possède la complexité, si ce n'est la vitesse d'un ordinateur. Une partie de votre structure neuronale est innée, l'autre est acquise.

Les scientifiques commencent seulement à comprendre le fonctionnement de ce réseau biologique. Il est désormais assimilé que toutes les fonctions neuronales biologiques, y compris la mémoire, sont stockées dans les neurones et dans leurs interconnexions. L'apprentissage est interprété comme l'établissement de nouvelles connections entre les

neurones ou la modification de connexions existantes. Cela conduit aux questions suivantes : malgré notre connaissance rudimentaire du fonctionnement des réseaux neuronaux biologiques, est-il possible de construire un petit ensemble de neurones artificiels simples et aussi de l'éduquer afin d'alimenter une fonction utile ? La réponse est oui.

Les réseaux de ces neurones artificiels n'ont certes pas, ne serait-ce qu'une fraction du pouvoir du cerveau humain, mais ils peuvent être entraînés afin d'accomplir une fonction utile.

#### *1.1.2.2. Applications*

Un récent article d'un journal décrit l'utilisation d'un réseau de neurones dans la recherche littéraire de l'université d'Aston [HAG96]. Il établit que "les neurones peuvent être éduqués à la reconnaissance de différents styles d'écriture, et les chercheurs l'utilisent pour comparer les travaux attribués à Shakespeare et ses contemporains". Une émission audiovisuelle scientifique populaire a récemment fait un documentaire sur l'utilisation, par un institut de recherche italien, d'un réseau de neurones permettant de tester la pureté de l'huile d'olive. Ces exemples montrent l'étendue de la gamme d'applications de réseaux de neurones. Ces applications prennent de l'ampleur car les réseaux de neurones sont performants pour résoudre des problèmes non seulement dans l'ingénierie, les sciences et les mathématiques mais aussi en médecine, finance et littérature.

#### *1.1.2.3. L'inspiration biologique*

Le réseau de neurones artificiels est composé de simples éléments opérant en parallèle. Ces éléments s'inspirent des systèmes nerveux biologiques. Comme dans la nature, les fonctions neuronales sont largement déterminées par les connexions entre ces éléments (ces connexions sont appelées poids). Dans un réseau, les neurones sont disposés en couches : la couche d'entrée, la couche de sortie et un nombre variable de couches intermédiaires appelées couches cachées. La nomenclature d'un réseau de neurones est la suivante:

**E-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-...-C<sub>n</sub>-S** où E est le nombre de neurones de la couche d'entrée

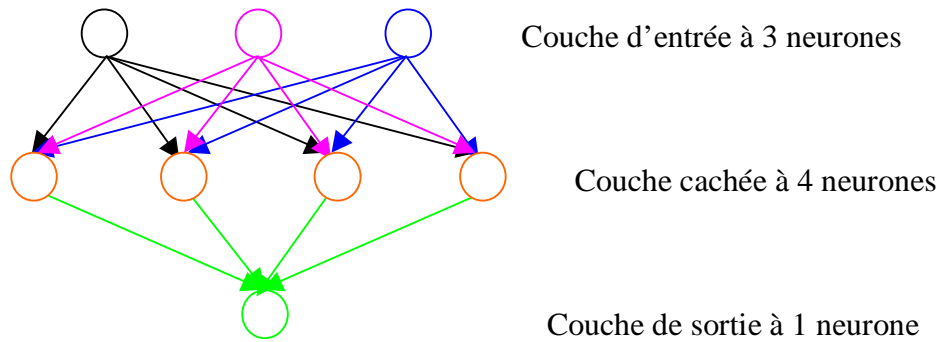
C<sub>1</sub> est le nombre de neurones dans la couche cachée 1

n est le nombre de couches cachées

S est le nombre de neurones de la couche de sortie.

Le réseau de neurones est éduqué en ajustant les valeurs des connexions interneurones de manière à ce qu'une valeur-entrée particulière conduise à une valeur-sortie cible spécifique.

Un exemple de réseau de neurones artificiels est présenté ci-dessous ; il s'agit d'un réseau de type 3-4-1.



Ce type de réseau de neurones, associé à des ordinateurs et des algorithmes de plus en plus rapides, rend possible leur utilisation pour résoudre des problèmes industriels de plus en plus complexes.

### *1.2. Présentation de la problématique*

L'influence des caractéristiques d'une poudre sèche, céramique (alumine granulée) ou métallique (poudre de fer), sur le comportement à la densification lors de l'empilement, du compactage ou du frittage n'est toujours pas connue en détails et son évaluation reste encore difficile.

Pour un industriel spécialisé dans la technologie des poudres, pouvoir connaître la densité verte et frittée d'une poudre, à partir d'une simple analyse de ses caractéristiques, telles que la distribution granulométrique, serait une aide précieuse dans le choix des poudres en fonction de leur application.

Le but de cette étude est donc de développer une meilleure compréhension des relations entre les caractéristiques d'une poudre sèche, d'alumine granulée ou de fer, et sa densification durant l'empilement, le compactage et le frittage. Cette compréhension s'effectue grâce à l'approche par réseau de neurones artificiels. La viabilité de l'utilisation de ce nouvel outil, pour prédire les densités tassées, crue et frittée de poudres de fer et d'alumine, est également évaluée dans ce travail.

### *1.3. Déroulement de l'étude*

Cette étude se déroule en 4 étapes.

La première partie consiste en une revue spécifique critique non exhaustive des articles issus de la littérature modélisant l'empilement, le compactage et le frittage de poudres. L'analyse de ces modèles permettra de les classer en fonction de leur centre d'intérêt et de

domaine d'application. Les plus proches des problématiques étudiées dans cette thèse seront utilisés à titre comparatif.

Dans la seconde partie, le réseau de neurones artificiels et son fonctionnement seront décrits brièvement.

Les expériences réalisées pour cette étude seront présentées dans une troisième partie.

Et enfin, les résultats récoltés seront analysés et discutés en détails.

Une conclusion permettra de dégager les points importants obtenus lors de cette étude et d'envisager les perspectives d'un tel projet.

## 2. LES MODÈLES DE LA LITTÉRATURE

Actuellement, de nombreuses modélisations existent, et sont utilisées pour essayer d'améliorer la compréhension des mécanismes régissant la densification, lors des étapes allant de l'empilement des particules à leur frittage, en passant par leur compactage. Elles peuvent se classer selon 3 catégories :

- Les modélisations empiriques
- Les modélisations semi-empiriques basées sur des équations physiques théoriques
- Les modélisations numériques et analytiques (assistées par ordinateur).

Une présentation succincte de ces divers modèles est reportée dans ce chapitre, qui se décompose en trois parties. Ces dernières portent toutes sur la densification d'une poudre mais à différentes étapes : la première partie concerne celle ayant lieu lors de l'empilement des particules, la seconde porte sur celle du compactage, et enfin la dernière partie traite de celle du frittage.

Les modélisations, utilisées à titre comparatif dans cette étude, sont décrites de façon plus détaillée.

La nomenclature et les abréviations utilisées sont résumées dans le Tableau 1.

Distribution en taille des particules	PSD
Réseau de neurones	NN
Porosité initiale	$\epsilon_0$
Porosité	$\epsilon$
Sphéricité	$\psi$
Densité	$\rho$
Volume spécifique	$V=1- \epsilon$
Fraction volumique des petites/grandes particules	$X_S/X_L$
Diamètre des petites/grandes particules	$d_S/d_L$
Efficacité d'empilement	$P_e$
Rapport en taille	R
Taille médiane	$d_{50}$
Déviatoin standard PSD	$\sigma$
Déviatoin standard PSD absolue	$\sigma_a$
Déviatoin standard PSD géométrique	$\sigma_g$
Volume apparent	$V_a$
Pression de compactage appliquée	P
Densité et porosité crue	$\rho_c, \epsilon_c$
Densité apparente	$\rho_0$
Température	T
Taille diamétrale des grains	G
Densité frittée	$\rho_f$

**Tableau 1 : nomenclature et abréviations utilisées.**

Les poudres seront dites "grosses ou grossières" lorsque le diamètre de leurs particules sera supérieur à 100 $\mu\text{m}$ , et "fines" lorsqu'il sera inférieur à cette valeur, en accord avec les appellations de l'article [YU97].

### *2.1. Densification lors de l'empilement des particules*

Dans la plupart des procédés de mise en forme des poudres, l'empilement des particules joue un rôle essentiel. La densité d'empilement dicte, notamment, le remplissage de la matrice de compactage, la quantité de liant à ajouter et le retrait lors du frittage ; la configuration idéale serait l'obtention d'une forte densité avec des problèmes de traitement minimaux voire inexistantes.

Une des visualisations les plus simples de l'empilement de particules est celui de sphères ordonnées de manière identique à celles des structures cristallines. Ainsi, pour une structure cubique simple, un empilement de sphères monotallées aura une densité relative de 0.524 [DOD85] tandis que pour une structure hexagonale compacte, l'empilement sera plus dense (0.74). Pour un empilement aléatoire de sphères monotallées, la densité relative est également variable selon les conditions utilisées pour obtenir cet empilement. Ainsi, elle pourra atteindre 0.642 pour un empilement RCP ou encore 0.526 pour un empilement RLP.

Cependant, la plupart des poudres réelles ne sont ni monotallées, ni sphériques et l'évaluation de la densité de leur empilement devient plus complexe. De nombreux auteurs se sont penchés sur ce problème afin d'évaluer les paramètres les plus influents sur cette densité d'empilement et de la modéliser le plus réalistement possible.

#### **2.1.1. Modèles expérimentaux, empiriques et semi-empiriques**

Ces modèles évaluent la porosité d'un empilement de particules en fonction de 4 facteurs:

- La sphéricité des particules.
- Le rapport en taille des particules dans les mélanges multimodaux (cf.: annexe).
- La distribution en taille des particules.
- La taille moyenne des particules.

L'effet de la présence d'agglomérats dans la poudre est également évalué.

##### *2.1.1.1. Porosité versus sphéricité*

Plusieurs modèles permettent d'évaluer la porosité d'empilement de poudres non-sphériques [GER89A, BRO50, YU93, YU92B, ZOU96, KNI2001, PHI96, PHI97].

Ils formulent la porosité initiale  $\varepsilon_0$  d'un empilement de particules monotallées (fibres, cylindres, disques) en fonction de leur sphéricité  $\psi$ . Cette sphéricité est généralement définie

comme le rapport de la surface de la sphère  $S_s$ , ayant le même volume  $V_s$  que la particule, sur la surface réelle  $S_p$  de cette particule (cf.: Figure 1).

$$\psi = \frac{S_s}{S_p}$$



**Figure 1: schéma représentatif de la sphéricité**

Les concepts d'empilement appliqués aux sphères sont étendus à des empilements de particules non-sphériques (la différence repose sur la porosité initiale). Pour des particules sphériques, la porosité initiale est une constante tandis que pour des particules non-sphériques, elle varie avec la forme (pour des empilements aléatoires, elle augmente généralement avec la diminution de la sphéricité).

### Protocole expérimental

La poudre homogénéisée (par secousses vigoureuses) est déversée dans un contenant calibré. Ce dernier est placé horizontalement puis est lentement remis en position verticale: un empilement RLP est alors atteint.

Un tassement vertical est effectué jusqu'à ce que le volume ne varie plus pour atteindre un empilement RCP.

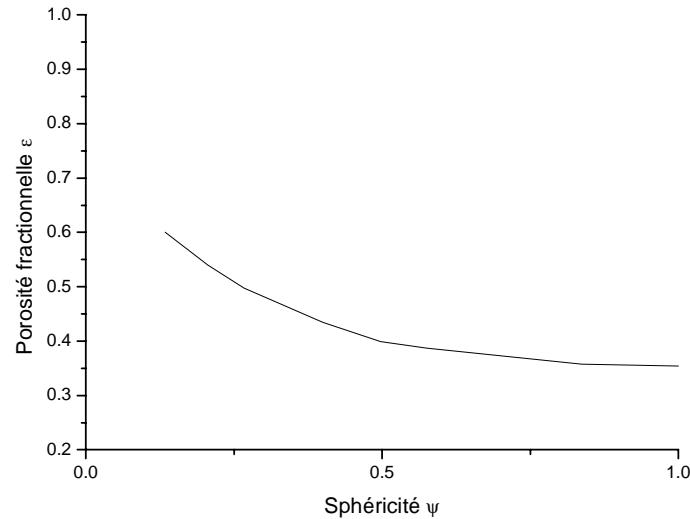
Dans les 2 cas, le contenant est pesé et la hauteur de la poudre mesurée. La valeur de la densité d'empilement en est déduite.

### Résultats

Il est généralement admis [GER89B] que la déviation de la forme sphérique tend à augmenter la porosité de l'empilement aléatoire des particules monotallées (= porosité initiale), ce qui est dû à une plus forte probabilité de former des ponts ou à des frictions interparticulaires plus fortes.

Cette tendance est illustrée par la Figure 2.



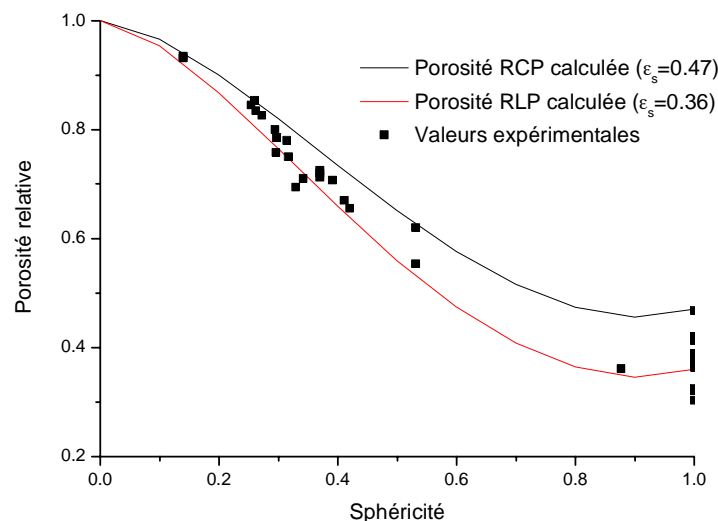


**Figure 2: Porosité fractionnelle en fonction de la sphéricité de particules monotallées empilées aléatoirement [GER89B].**

D'après [YU93], la porosité initiale ne dépend que de la sphéricité (et pas de la taille des particules) pour des grosses particules. Les auteurs utilisent l'expression  $\varepsilon(\psi)$ , dérivée de celle de Brown *et al.*[BRO50]:

$$\varepsilon(\psi) = \varepsilon_s^{1.785\psi^{1.584} - 0.785\psi^{4.897}} \quad (1)$$

où  $\varepsilon(\psi)$ : porosité initiale des particules de sphéricité  $\psi$  et  $\varepsilon_s=0.36$  à  $0.47$  selon les conditions d'empilement ou les différents modes d'empilement. La Figure 3 compare les valeurs de la porosité obtenue par (1) à celles expérimentales d'empilement de particules monotallées.



**Figure 3: Porosité relative en fonction de la sphéricité de la particule pour des empilements de particules monotallées simulés et expérimentaux ([BRO50]).**

Les valeurs expérimentales obtenues à partir d'empilement RCP et RLP sont en bonne adéquation avec les valeurs calculées: la tendance reste la même, la porosité relative de l'empilement diminuant lorsque les particules sont plus sphériques.

Mais selon Yu & Standish [YU92B], l'équation (1) échoue pour des empilements de particules à faible sphéricité ( $<0.6$ ). Dans ce cas, une expression alternative est utilisée:

$$\varepsilon(\psi) = \varepsilon_s^{15.521\psi^{3.853} - 14.521\psi^{4.342}} \quad (2)$$

Où  $\varepsilon_s$  est supposée être 0.38 (moyenne entre 0.36 pour un empilement RCP et 0.40 pour un empilement RLP de sphères).

D'après les auteurs, si la sphéricité est supérieure à une certaine valeur (proche de 0.8), la porosité initiale peut être légèrement plus faible que celle pour un empilement de particules sphériques.

Remarque: malheureusement, aucune explication à ce phénomène n'est donnée dans cet article.

Zou & Yu étudient le comportement de grosses particules (cylindres et disques dont la taille est de l'ordre du mm), ce qui leur permet de s'affranchir de l'effet de taille [ZOU96].

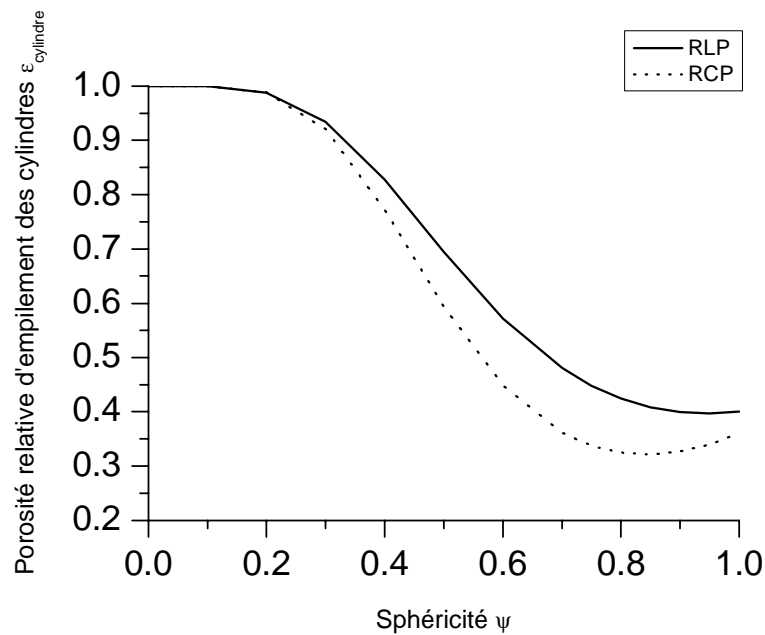
- Différents comportements sont observés selon l'empilement considéré:
  - i. RCP: la porosité diminue jusqu'à un minimum (dû à un empilement ordonné résultant du tassement ou de la vibration), puis augmente lorsque la sphéricité diminue.

$$\begin{aligned} \ln \varepsilon_{cylindre} &= \psi^{6.74} \exp[8(1-\psi)] \ln 0.36 \\ \ln \varepsilon_{disque} &= \psi^{0.63} \exp[0.64(1-\psi)] \ln 0.36 \end{aligned} \quad (3)$$

- ii. RLP: la porosité augmente lorsque la sphéricité diminue.

$$\begin{aligned} \ln \varepsilon_{cylindre} &= \psi^{5.58} \exp[5.89(1-\psi)] \ln 0.4 \\ \ln \varepsilon_{disque} &= \psi^{0.6} \exp[0.23(1-\psi)^{0.45}] \ln 0.4 \end{aligned} \quad (4)$$

La Figure 4 illustre le cas d'un empilement RCP et RLP de particules cylindriques.



**Figure 4: Porosité fractionnelle en fonction de la sphéricité de cylindres empilés aléatoirement [ZOU96].**

La tendance observée est nette: la porosité diminue lorsque la sphéricité diminue. Cette tendance n'est respectée que si la sphéricité de la poudre est faible (par exemple, pour une sphéricité  $\psi < 0.8$  pour un empilement RCP des cylindres).

Conclusion : Que ce soit un empilement RCP ou RLP de disques ou de cylindres, sa densité augmente lorsque la sphéricité des particules augmente (pour une sphéricité  $\psi < 0.8$ ).

Le réarrangement s'avère être facilement atteint pour des particules de large sphéricité mais il reste difficile pour les particules de faible sphéricité.

Philipse [PHI96 et PHI97] étudie l'influence du facteur de forme sur l'empilement de diverses poudres grâce à une équation de contact aléatoire.

Pour des particules arbitraires, cette équation évalue la densité en nombre :

$$\bar{\rho} = \frac{2 \langle c \rangle}{v_{ex}} \quad (5)$$

où  $\langle c \rangle$  est le nombre de contact moyen par particule et  $v_{ex}$  le volume exclus de moyenne orientationnelle. Ce volume est, pour des bâtonnets rigides (minces) :

$$v_{ex} = \frac{\pi}{2} L^2 D + 2\pi D^2 L + \frac{4}{3} \pi D^3 \quad (6)$$

avec D et L le diamètre et la longueur respectifs de la particule.

Le facteur de forme est défini comme le rapport entre la longueur de la particule sur son diamètre.

Pour un empilement aléatoire de bâtonnets, la densité chute radicalement lorsque le facteur de forme augmente. Ce résultat est similaire à ceux obtenus pour les travaux de Milewski [MIL78] et Nardin *et al.* [NAR85].

Conclusions : l'équation du contact aléatoire permet l'obtention de résultats similaires à ceux précédemment observés : plus l'anisotropie de forme est importante, plus la densité d'empilement en est réduite.

Conclusion: dans tous les modèles présentés, la sphéricité joue un rôle important dans la densification des particules lors de l'empilement. La tendance générale est la suivante: plus une particule est sphérique, plus son empilement est facilité et plus sa densité finale sera élevée. Mais il faut utiliser ces modèles semi-empiriques avec précaution car ils ne sont valides que pour des systèmes spécifiques.

#### 2.1.1.2. Effet de la présence d'agglomérats sur la porosité d'empilement

Des produits agglomérés structurants utilisés pour des performances améliorées sont étudiés par P.C. Knight dans [KNI2001].

La densité massique de ce produit est donnée par l'équation suivante:

$$\rho_b = \rho_c (1 - \varepsilon_b)(1 - \varepsilon_a) \quad (7)$$

où  $\rho_c$ : densité du matériau composite,  $\varepsilon_b$ : porosité entre les agglomérats et  $\varepsilon_a$ : porosité au sein des agglomérats.

Lorsque le cas RLP est considéré pour des granules grossières (dont la taille varie de 0.1 à 1mm), les résultats sont les suivants:

- La porosité interagglomérats dépend de la distribution en taille des particules, de la forme et de l'adhésion interparticulaire:  $\varepsilon_b=0.5$  pour des formes irrégulières et des granules cohésives et  $\varepsilon_b=0.4$  pour des formes sphériques et des granules à cohésion faible.
- La porosité au sein des agglomérats dépend de la densité d'empilement des particules constitutives. Elle varie avec le procédé d'agglomération utilisé:
  - Pour un compactage à sec sous une pression suffisante, la porosité est faible  $\varepsilon_a < 0.2$ .
  - Pour une granulation par voie humide, avec un liant fondu,  $\varepsilon_a = 0.05-0.2$ .

Remarque: ces valeurs paraissent trop faibles.

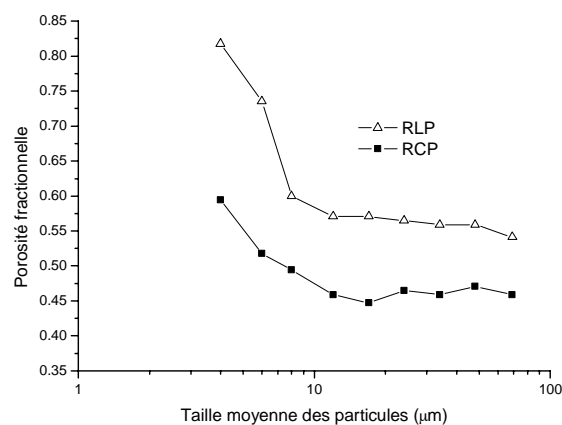
Conclusions : la présence d'agglomérats réduit fortement la densité finale de ces empilements RLP, d'autant plus si la sphéricité des particules est faible. Elle peut alors varier de  $0.4\rho_c$  à  $0.57\rho_c$  correspondant à une densité relative de 40 à 57%.

### 2.1.1.3. Densité versus taille $d_{50}$ des particules

Dans 3 modèles [SUZ2001, WAK75, YU97] étudiant l'influence de la taille moyenne de particules, sphériques ou non, sur la densité d'empilement, les poudres utilisées ne sont plus monotallées. Elles possèdent une distribution en taille plus large et la taille médiane  $d_{50}$  considérée, correspond à la taille de 50% en volume des particules.

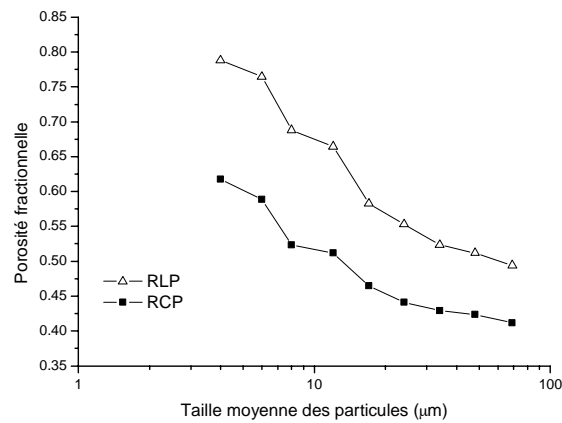
D'autre part, ce sont des poudres fines : l'effet de taille n'est donc plus négligeable. Le protocole expérimental reste similaire.

D'après [SUZ2001] étudiant des poudres quasi monotallées sphériques de silice et des poudres quasi monotallées de cendres volantes de forme irrégulière, les poudres tassées  $N=0$  fois et  $N=1000$  fois sont assimilées respectivement, à un empilement RLP et à un empilement RCP. Pour ces 2 empilements, la porosité fractionnelle diminue lors d'un accroissement de la taille moyenne des particules, comme l'illustrent la Figure 5 et la Figure 6.



**Figure 5: Relation entre la taille  $Dp_{50}$  des particules et la fraction de vide des cendres volantes [SUZ2001].**

Dans le cas des cendres volantes, la porosité fractionnelle chute lorsque la taille des particules augmente. Il est à noter que pour des poudres dont la taille moyenne est supérieure à  $15\mu\text{m}$ , elle reste quasi constante, indépendamment de la taille des particules.



**Figure 6: Relation entre la taille  $D_{p50}$  des particules et la fraction de vide de silice [SUZ2001].**

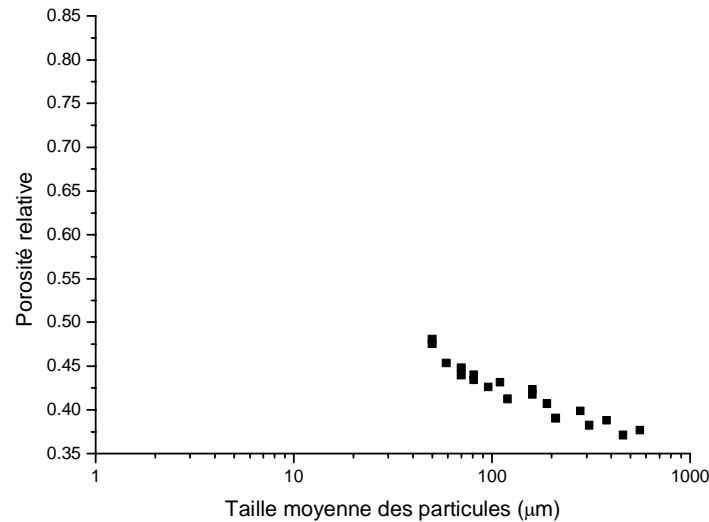
La porosité fractionnelle diminue avec une taille des particules plus grande: les particules fines remplissent l'espace entre les grosses.

Donc, pour les deux types de poudres, cendres volantes et silice, l'empilement se densifie lorsque la taille des particules augmente.

Remarque : Selon les auteurs, les frictions interparticulaires de la silice semblent plus importantes que celles de la poudre de cendres volantes, conduisant ainsi à un empilement RCP et RLP moins dense. Malheureusement, ce phénomène ne semble pas aussi évident lors de l'analyse des deux Figure 5 et Figure 6. Il faut en fait raisonner en terme de porosité relative minimale atteignable pour chacun des systèmes :

- Pour la poudre de cendres volantes, la porosité relative semble constante à partir de  $10\mu\text{m}$  : la porosité minimale est donc atteinte pour ce système..
- Pour la poudre de silice, la porosité relative diminue continuellement : la porosité minimale n'est donc pas atteinte pour ce système.

Pour les empilements RCP et RLP de billes de verre plombé de Wakeman [WAK75], les résultats obtenus sont similaires : la porosité tend à diminuer lors d'un accroissement de la taille des particules, comme l'illustre la Figure 7 pour un empilement lâche RLP.



**Figure 7: Porosité relative en fonction de la taille moyenne des particules [WAK75].**

Ce résultat est attendu puisque la friction, l'adhésion et les autres forces de surface augmentent, relativement aux forces de gravitation /vibration, lors d'une diminution de la taille des particules.

Pour les empilements RCP et RLP d'alumines blanches fondues du modèle de Yu & Bridgewater [YU97], les résultats sont également en adéquation avec ceux des modèles précédents.

Les paramètres des différentes poudres d'alumine utilisées sont répertoriés dans le tableau ci-dessous.

Poudres	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
$d_{0,5}$ (μm)	54.3	44.6	36.4	29.2	22.9	17.5	12.7	9.1	6.2	3.1	2.8
$d_{max}$ (μm)	275	256	255	96	83	59	41	34	22	245	11
$\sigma_s$	3.56	3.73	3.29	2.41	2.23	1.93	1.85	1.61	1.38	2.05	1.22

Remarque :  $d_{50}$  varie de 1 à 80μm et la distribution en taille des particules est représentée par la fonction de distribution de Johnson:

$$F(d) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf}\left(\frac{Z}{\sqrt{2}}\right) \quad (8)$$

Les auteurs relient la porosité initiale à la taille des particules sphériques par l'équation suivante:

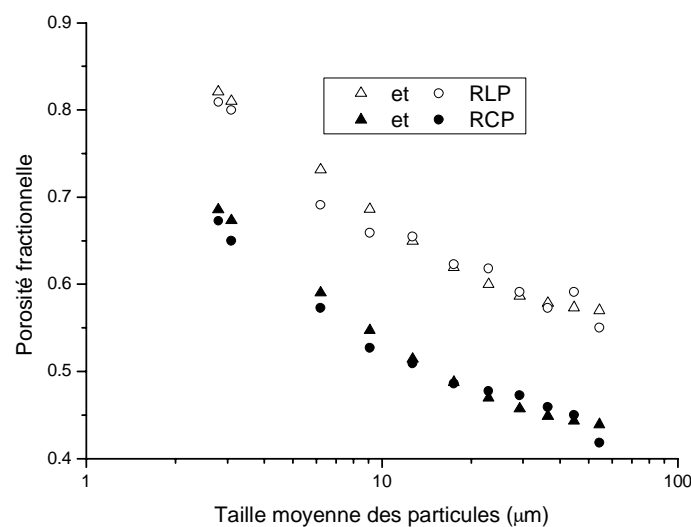
$$\varepsilon_d = \varepsilon_0 + (1 - \varepsilon_0) \exp(-ad^b) \quad (9)$$

où  $d$  est la taille moyenne,  $a$ ,  $b$  et  $\varepsilon_0$  (qui limite la porosité lorsque la gravité prédomine) sont listés dans le tableau ci-dessous.

Paramètre	$\varepsilon_0$	$a$	$b$
Empilement non tassé	0.567	0.247	0.749
Empilement tassé	0.433	0.446	0.579

Remarque: les valeurs de la porosité initiale s'avèrent être plus élevées que les porosités de RCP et RLP de particules sphériques, ce qui peut être attribué à l'effet de la forme des particules.

La Figure 8 montre les porosités expérimentales et calculées par (9) d'empilement RCP et RLP de poudres d'alumine.



**Figure 8: porosité initiale versus taille des particules pour des poudres d'alumine: ○ et ● porosité mesurée, △ et ▲ porosité calculée par l'équation (9) [YU97].**

Là encore, la porosité diminue lorsque la taille des particules augmente, ce qui est dû, d'après les auteurs, à un affaiblissement des effets des forces type Van Der Waals.

Ainsi, pour ces 3 modèles, l'augmentation de la taille des particules induit une densification plus importante des empilements RCP et RLP de poudres.

#### 2.1.1.4. Densité en fonction de la distribution en taille des particules

Deux modèles sont semi-empiriques [SUZ2001, SER2002].

Le premier de ces modèles semi-empiriques permet d'optimiser l'empilement grâce à la distribution en taille des particules. Il s'agit du modèle développé par le groupe Nestlé [SER2002]. L'équation régissant cette optimisation est la suivante:

$$\frac{CPFT}{100\%} = \frac{D^m - D_S^m}{D_L^m - D_S^m} \quad (10)$$



où CPFT: Cumulative Percent Finer Than,  $D$  est le diamètre des particules,  $D_S$  le diamètre des plus petites particules ( $=1\mu\text{m}$ ),  $D_L$  celui des plus grosses ( $=50\mu\text{m}$ ) et  $m$  est le module de la distribution (ce module augmente lorsque la proportion de grosses particules augmente). Pour obtenir un bon empilement,  $m$  doit être compris entre 0.2 et 0.5, avec un empilement maximal atteint pour  $m=0.37$ . Par contre, l'adage "Plus la PSD est large, plus l'empilement est dense" ne semble fonctionner que pour des valeurs  $m < 0.37$ . Il doit donc y avoir toujours plus de grosses particules que de fines.

Suzuki *et al.* [SUZ2001] proposent un modèle de la fraction de vide, présenté ci-après, qui permet de calculer la porosité dans un mélange à multicomposants sphériques. D'après ce modèle, la fraction partielle de vide  $\varepsilon_j$  autour d'une particule  $j$  dans un mélange à  $m$  composants peut être calculé par l'équation:

$$\varepsilon_j = \beta_j \sum_{k=1}^m Sa_k \varepsilon_{j,k} \quad (11)$$

où  $\beta_j$ : constante expérimentale,  $Sa_k$ : fraction surfacique de la particule  $k$ ,  $\varepsilon_{j,k}$ : fraction de vide partielle autour de la particule  $j$  en contact direct avec la particule  $k$ .

Pour des mélanges à multiéléments, la fraction de vide est issue de la somme des produits  $\varepsilon_j$  par la fraction volumique  $Sv_j$  de la particule  $j$ :

$$\varepsilon = \sum_{j=1}^m Sv_j \varepsilon_j \quad (12)$$

Les porosités calculées par ce modèle sont en bonne corrélation avec les résultats des expériences réalisées sur la poudre de silice et de cendres volantes : la porosité des poudres de distribution lognormale diminue lors d'une augmentation de la largeur de la distribution en taille des particules.

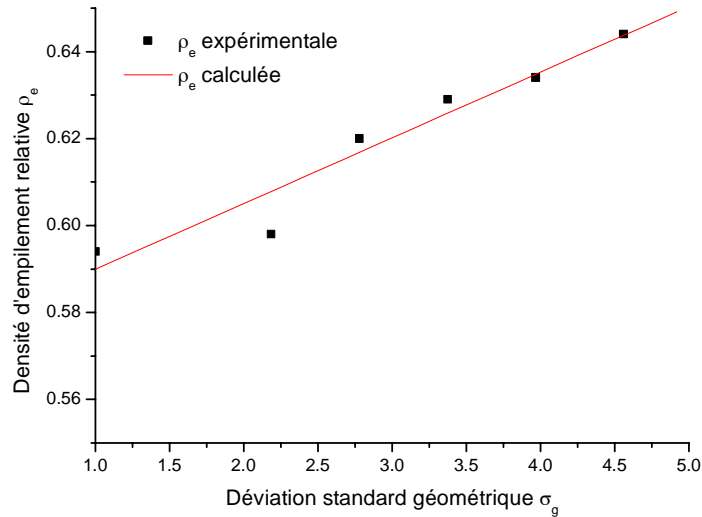
Limite: Dans cette étude, la ségrégation, qui apparaît si la poudre est beaucoup tassée, n'est pas modélisée, ce qui handicape le modèle pour son application à certaines conditions expérimentales. Lorsque la poudre n'est pas tassée ( $N=0$ ), le modèle ne correspond plus aux résultats expérimentaux.

Deux études [DEX72, SOH68] traitent empiriquement de l'influence de la largeur de la distribution en taille log-normale des particules sur leur densité d'empilement.

Dans le cas de l'analyse de la densité d'un empilement RLP de grosses billes en acier, en fonction de la largeur de la distribution en taille des particules, Dexter & Tanner [DEX72]

propose une tendance approximativement linéaire (cf.: Figure 9) dont l'équation est la suivante:

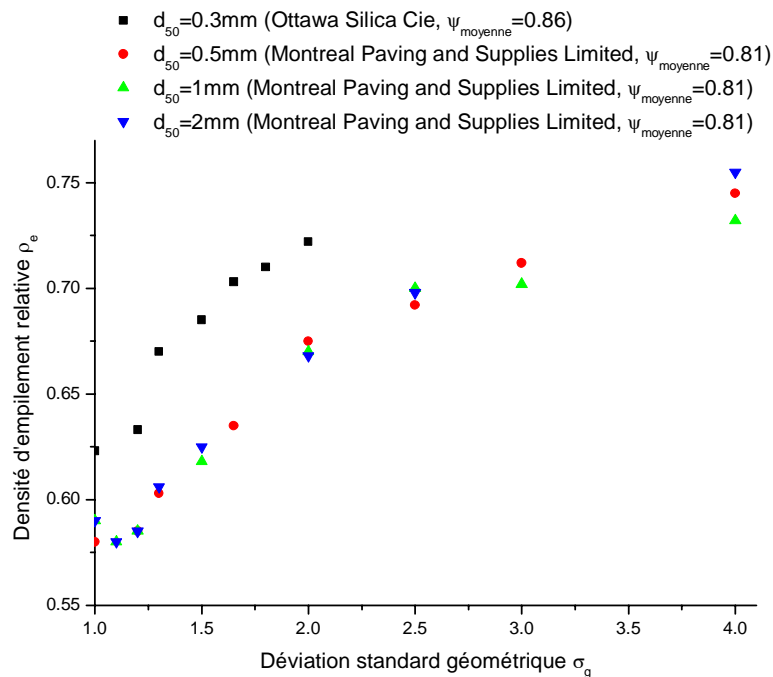
$$\rho = \rho_0 + m\sigma \quad (13) \quad \text{où } \rho_0=0.591 \text{ et } m=0.074$$



**Figure 9: Densité d'empilement en fonction de la déviation standard d'un mélange log-normal de billes d'acier (diamètre variant de 0.238 à 1.746cm), sous des conditions de RLP, dans de petits cylindres lisses [DEX72].**

Ainsi, pour des empilements RLP de grosses poudres sphériques, plus la distribution granulométrique est large, i.e. plus la déviation standard géométrique est grande, plus l'empilement est dense : les petites particules se glissent dans la porosité créée par les plus grosses.

Un résultat similaire est également reporté par Sohn & Moreland [SOH68], qui étudient les empilements RCP de grosses particules de sables non-sphériques, dont la taille moyenne est supérieure à 0.3mm (cf.: Figure 10).



**Figure 10: variation de la densité d'empilement relative avec la déviation standard géométrique pour des systèmes log-normaux (RCP)**

Comme la taille des particules est grande ( $>0.3\text{mm}$ ), la densité d'empilement est insensible à la variation de la taille moyenne géométrique  $d_{50}$  des particules.

La plus forte densité, observée pour les particules de sable Ottawa Silica Cie, s'explique par leur plus grande sphéricité.

Une légère décroissance de la densité initiale est observée dans le cas des sables MR. Elle a également été reportée dans l'étude d'Epstein & Young [EPS62] dans le cas de mélange binaire de sphères ayant un rapport en diamètre faible.

La tendance générale est une densification plus importante avec des poudres ayant une PSD plus large.

Ces 4 derniers modèles mènent donc à une conclusion commune: la densité d'un empilement, RCP ou RLP, de grosses particules, ayant une distribution log-normale, augmente lors d'un accroissement de la largeur granulométrique. Ils seront, par la suite, utilisés à titre comparatif.

### 2.1.2. Modèles numériques et analytiques (assistés par ordinateur)

Il existe 2 catégories de ces modélisations :

- Les concepts dits « d'arrangement collectif »
- Les algorithmes mathématiques

### 2.1.2.1. *Les concepts d'arrangement collectif*

Ces concepts sont basés sur les 2 mécanismes permettant de produire les configurations nécessaires à la densification: des forces à longue distance dues à une forme de compression en combinaison avec la gravité et une répulsion à courte distance due à l'impénétrabilité des particules. Ces 2 mécanismes sont simulés en plaçant initialement les particules en configuration de chevauchement, puis en autorisant des mouvements jusqu'à ce que ce chevauchement devienne insignifiant.

Les différents modèles peuvent être classés en fonction de leur centre d'intérêt :

- Les modèles descriptifs cherchant à simuler le plus réalistement possible des empilements spécifiques
- Les modèles s'intéressant à l'effet de la distribution en taille des particules sur leur densité d'empilement
- Les modèles s'attachant à l'influence de la taille des particules sur leur densité d'empilement
- Les modèles reliant la densité d'empilement des particules à leur nombre de coordination
- Et enfin, les modèles étudiant l'influence de la sphéricité des particules sur la densité de leur empilement.

### Modèles descriptifs

Cesarano III *et al.* [CES95] simulent en langage C++ des empilements 2D (disques) et 3D (sphères) représentant des granules monodisperses séchées par atomisation.

Chaque particule est positionnée selon 3 modes:

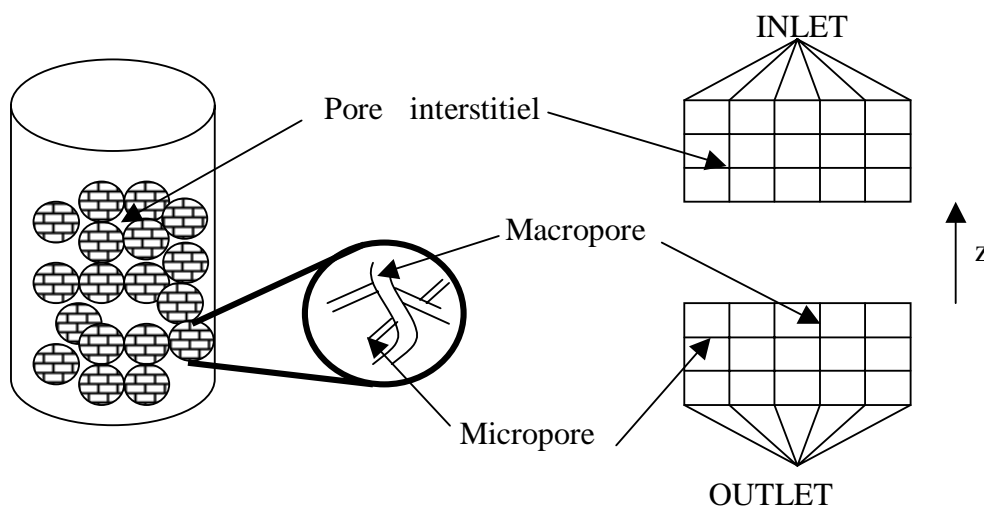
- le mode habituel d'adhésion (pas de rotation): chaque particule adhère physiquement à la première particule qu'il rencontre et sa place est alors fixe. En 2D, la densité d'empilement relative des disques avoisine 51%.
- la rotation simple: la particule effectue une rotation autour de la première particule qu'il rencontre jusqu'à ce qu'il entre en contact avec une autre. En 2D, les disques ainsi empilés offrent une densité d'empilement relative de 75.7%.
- La rotation multiple: la particule effectue une rotation autour des particules placées précédemment jusqu'à ce que la configuration la plus basse soit atteinte. En 2D, la densité d'empilement relative des disques obtenue est 80.2%. En 3D, les sphères ainsi positionnées offrent des densités d'empilement relative proche de

59%, lorsque les effets de bord sont négligeables (i.e. taille du contenant  $\gg$  taille des sphères). Cette densité est proche d'une densité expérimentale RLP de sphères monotallées.

Cette modélisation permet de simuler de manière réaliste des empilements 2D et 3D de particules monotallées.

La structure poreuse existant dans une colonne empilée avec une phase perfusive stationnaire est représentée par modèle de réseau créé par LOH & WANG [LOH95].

Principe: la colonne empilée est représentée par un réseau carré de pores cylindriques interconnectés (macropores et micropores) comme illustré dans la Figure 11.



**Figure 11: représentation schématique du milieu chromatographique pour le modèle de réseau.**

Résultats: le modèle de réseau peut être utilisé pour déduire les paramètres de distribution en taille des pores et leur interconnectivité, en simulant les expériences de porosimétrie au mercure sur le réseau. Les résultats sont cohérents avec les mesures déduites des observations MEB. Le modèle ainsi établi offre un outil efficace pour obtenir la distribution en taille des particules des matériaux poreux quand d'autres méthodes telles que la porosimétrie au mercure entraîne de grosses erreurs d'interprétation et des mesures au TEM et de densimétrie sont trop laborieuses.

L'influence des dynamiques lentes sur le compactage granulaire est simulée par le modèle de Mehta & Barker [MEH99].

Le compactage massif est obtenu par un hybride du modèle de Monte-Carlo.

L'expérience utilise 700 sphères dures uniformes (sans spécification de taille).

Résultats: au début, un empilement RLP est obtenu (fraction d'empilement 0.54). Puis, une vibration est introduite et un empilement RCP est alors atteint.

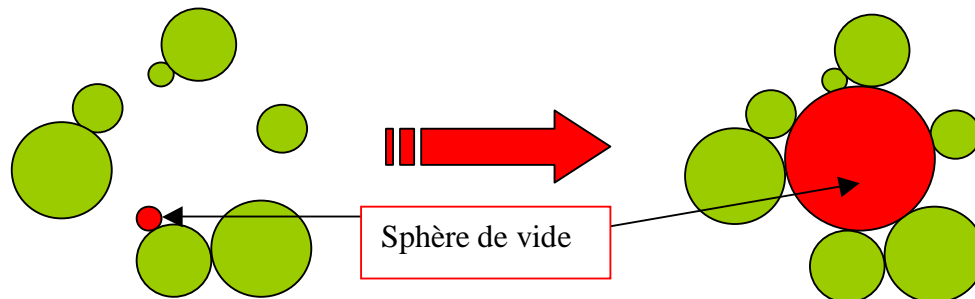
Une bonne simulation des empilements RCP et RLP est obtenue par ce modèle.

### Influence de la distribution en taille des particules

Nolan & Kavanagh étudient la distribution en taille des interstices dans des empilements de sphères [NOL94].

Le but de cette simulation est simple: remplir 2000 interstices situés dans les régions confinées d'un empilement de sphères.

Le principe de cette modélisation est présenté sur le schéma ci-dessous.



La sphère de vide croît jusqu'à ce que sa taille l'empêche d'éliminer son chevauchement.

Résultats: la distribution en taille des canaux augmente avec la déviation standard de la distribution en taille des sphères du réseau ce qui entraîne une densification. Le nombre de percolation distincte diminue avec cette déviation standard.

Dans [NOL93], Nolan & Kavanagh simulent les empilements RCP et RLP de sphères de distribution en taille lognormale.

Le principe est le suivant : des sphères, de distribution en taille log-normale, sont placées aléatoirement dans une boîte en position de chevauchement. Ces sphères sont autorisées à rouler et bouger par un processus itératif, jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de chevauchement et que la structure ainsi formée soit gravitationnellement stable. Ainsi, des empilements RCP et RLP de poudres sphériques log-normales sont modélisés, leur densité est évaluée en fonction de la largeur de la distribution en taille des particules (cf.:Figure 12).

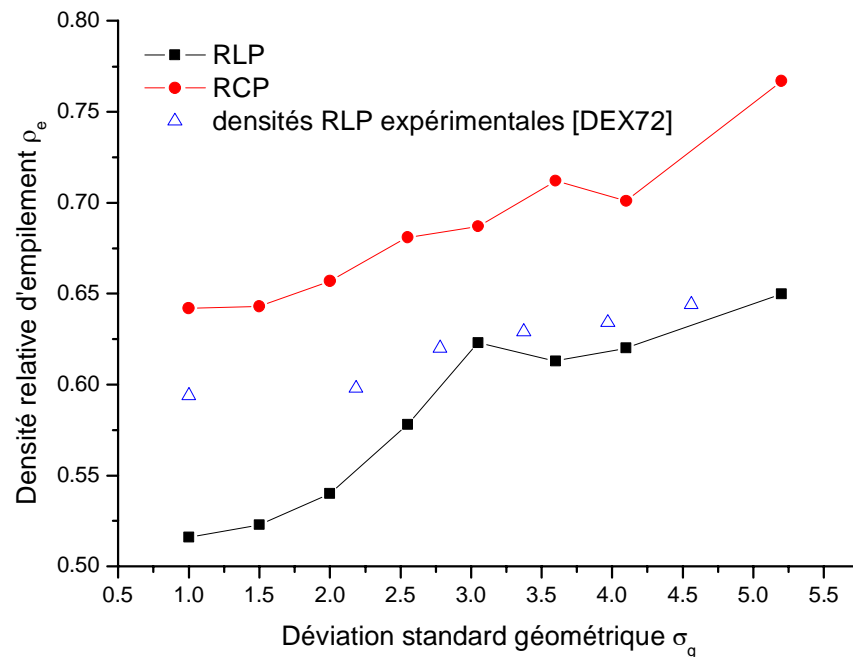
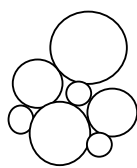
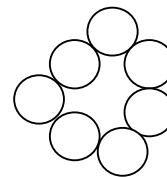


Figure 12: Densité relative des empilements RCP et RLP simulés par Nolan et Kavanagh en fonction de la déviation standard géométrique [NOL93].

- Pour les empilements "RCP": un accroissement de la densité est observée lors d'une augmentation de la largeur de la distribution en taille.
- Pour les empilements "RLP": les résultats expérimentaux obtenus dans [DEX72] valident les résultats de la simulation. Il existe cependant une différence entre résultats expérimentaux et simulations pour une distribution en taille étroite ( $\sigma_g < 2.5$ ): elle est due à un fort degré de pontage comme illustré sur le schéma ci-dessous.



PSD large => densification  
élevée



PSD étroite=> densification  
plus faible

#### Schéma 1 : Effet de pontage pour une PSD étroite

Plus la distribution en taille des particules est large, plus l'effet de pontage diminue.

Conclusion: la tendance est similaire à celle observée pour les modèles empiriques et semi-empiriques (cf.: paragraphe 2.1.1.4): une distribution en taille des particules plus large induit une densification plus importante de l'empilement.

L'algorithme "force-biased" de Moscinski & Bargiel et l'algorithme de sédimentation de Jodrey-Tory sont utilisés dans [BEZ2002] pour générer un empilement aléatoire de sphères lognormales.

Expérience:

1. Algorithme "force-biased" (arrangement collectif)

- des sphères égales (2 diamètres  $d_{in}$  et  $d_{out}$ ) se chevauchent dans une configuration initiale.
- l'algorithme tend à réduire le chevauchement entre les sphères en poussant ces dernières ( $\Rightarrow$  augmentation de  $d_{in}$ ) et en contractant graduellement les sphères (ce qui diminue  $d_{out}$ ).

Le temps d'exécution de cet algorithme est contrôlé par le taux de contraction  $\tau$  du diamètre de sortie  $d_{out}$ . Plus ce taux est élevé, plus le nombre d'itération augmente et donc plus le temps d'exécution est long.

2. Algorithme de sédimentation

- une configuration initiale de  $n_0$  sphères est construite.
- une itération permet de laisser tomber petit à petit, dans le système, une nouvelle sphère, qui bouge dans une position prédéfinie (en suivant la gravitation) jusqu'à ce qu'elle heurte une autre sphère. Elle peut alors rouler pour atteindre une position stable.
- l'algorithme stoppe lorsque toutes les sphères prévues sont empilées ou que le contenant est plein.

La Figure 13 montre la variation de la porosité en fonction de la variance de la distribution log-normale du diamètre.

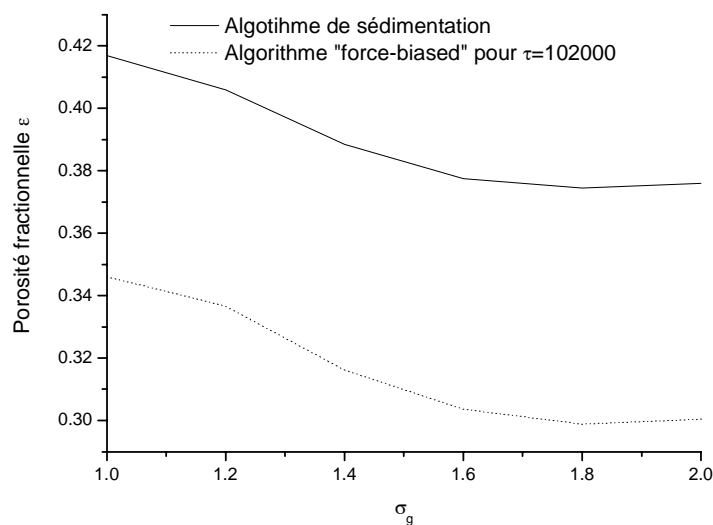


Figure 13: Porosité versus variance logarithmique de la distribution log-normale du diamètre



Là encore, une diminution de la porosité est observée avec l'augmentation de la déviation standard géométrique.

Conclusions: pour chaque modèle analytique ou numérique, une augmentation de la largeur de la distribution en taille des particules résulte en une amélioration de la densité d'un empilement, qu'il soit RCP ou RLP.

### Influence de la taille des particules

Une simulation d'empilement de sphères est obtenue par la méthode des éléments distincts DEM [YAN2000].

Les sphères ont une taille de particule comprise entre 1 et 100 $\mu$ m. Les forces type Van Der Waals sont données comme prédominantes par les auteurs. Ils s'appuient sur l'article [YU97] dans lequel il est dit que pour un diamètre de particule inférieur à 100 $\mu$ m, les forces de Van Der Waals agissent sur l'empilement

Principe:

- Génération aléatoire de sphères monotallées non chevauchées
- Arrangement des sphères par gravité
- Pendant la densification, les particules colloident avec les particules voisines et rebondissent en avant ou en arrière.
- Empilement dynamique: des mouvements rotationnels et translationnels sont effectués jusqu'à l'obtention d'une position stable.

La fonction de distribution radiale, la distribution angulaire de la porosité et le nombre de coordination sont étudiées dans le but de déterminer les effets de la taille des particules sur la densité d'empilement. La porosité est également étudiée en fonction de la distribution des forces, représentée par le rapport  $\chi_v$  des forces de Van Der Waals  $F^V$  sur la gravité:

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + (1 - \varepsilon_0) \exp(\alpha \chi_v^\beta) \quad (14)$$

- Pour  $\alpha = -7.75$  et  $\beta = -0.256$ ,  $\chi_v = \frac{\left| \sum_j F_{ij}^V \right|}{m_i g}$  (15)

- Pour  $\alpha = -14.278$  et  $\beta = -0.2916$ ,  $\chi'_v = \frac{\sum_j |F_{ij}^V|}{m_i g}$  (16)

Résultats:

- Le réseau de contact décroît lors de la diminution de la taille des particules.
- La porosité  $\varepsilon$  diminue lors de l'accroissement de la taille des particules.
- Le nombre de coordination moyen diminue lors de l'augmentation de la porosité.
- La porosité augmente lorsque le rapport des forces  $\chi_v$  augmente. Cette tendance est encore plus significative lorsque  $\chi_v \gg 1$ : les forces de Van Der Waals offrent alors une forte résistance au mouvement relatif entre les particules.

La taille des particules influe donc sur la porosité de leur empilement : les particules de plus grande taille s'empilent plus densément.

Les résultats de cette modélisation sont en accord avec ceux du paragraphe 2.1.1.3.

### Influence du nombre de coordination des particules

Les effets des variables dynamiques sur l'empilement de sphères sont observés par la méthode par éléments discrets [ZHA2001].

Expérience: l'empilement est formé en versant petit à petit 5000 sphères uniformes ( $d=0.10\text{mm}$ ) dans un cylindre de diamètre 24 fois plus grand que la sphère, depuis différentes hauteurs et pour divers taux d'écoulement. Le procédé dynamique est effectué jusqu'à ce qu'une position stable pour toutes les particules soit obtenue.

Résultats:

- La densité d'empilement est reliée au nombre de coordination moyen  $\bar{N}$  par l'équation:

$$\bar{N} = \frac{1}{0.183 - 659.248\rho^{20.961}} \quad (17) \text{ appliqué pour } \rho=0.55 \text{ à } 0.63$$

- La valeur maximale de  $\rho$  est 0.626, ce qui est inférieur à la valeur obtenue pour un empilement RCP ( $\rho=0.637$ ). La raison de cette différence peut être expliquée par:
  - Un réarrangement limité dû à l'absence de tassement ou de vibration.
  - Un rapport diamétral trop faible (=24) entre le contenant et les sphères, ce qui implique un effet de bord, et donc une diminution de la densité  $\rho$ .

Dans l'article [IWA74], la distribution du nombre de coordination est étudié dans un empilement de sphères homogènes. Pour ces auteurs, un empilement aléatoire correspond à un état dévié d'un ou plusieurs empilements réguliers. La procédure est alors simple : des sphères sont ôtées aléatoirement d'un empilement régulier.

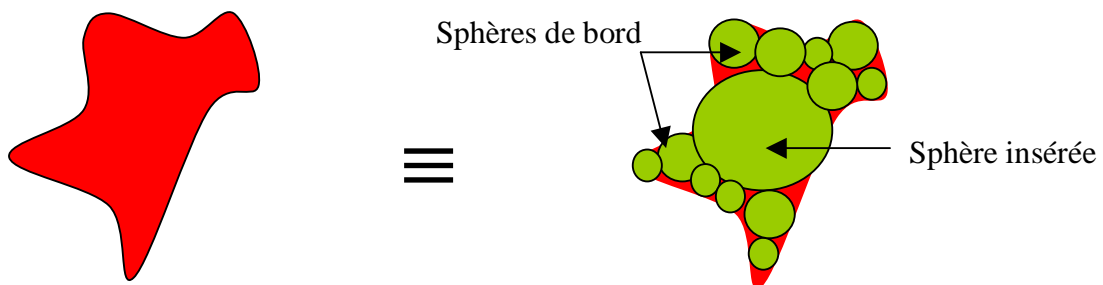
L'influence de cette distribution sur la densité d'empilement n'étant pas étudiée, cet article n'est pas présenté plus en détails.

### Influence de la sphéricité des particules

Le système KBS (=Knowledge Based System) permet la simulation de la morphologie et le comportement d'un empilement de particules irrégulières [SMI97A].

Principe: une construction aléatoire de sphères (Random Sphere Construction=RSC) est combinée avec un algorithme construit aléatoirement. Elle permet de prédire des empilements irréguliers à partir de l'analyse d'image.

Hypothèse: un empilement de particules irrégulières est supposé être similaire à celui de particules sphériques.



Le nombre  $\eta$  de sphères de bord par particule, est relié à la densité fractionnelle d'empilement  $\rho$  selon l'équation:  $\rho=0.0014\eta^2-0.0427\eta+0.696$  (18)

Pour permettre son application,  $\eta$  est relié à l'irrégularité  $\alpha$ :

$$\alpha=-0.0819\eta^2+0.28\eta+1.04 \quad (19) \quad \text{où } \alpha=\frac{\beta^2}{4\pi\gamma} \text{ avec } \beta=\text{périmètre de l'image de la}$$

particule, et  $\gamma$ = l'aire de l'image de la particule.

Ainsi, lorsque la sphéricité des particules diminue, i.e. le nombre de sphères de bord augmente, la densité fractionnelle diminue.

Expérimentalement, des particules de fer, atomisées à l'eau, sont empilées aléatoirement et leur densité fractionnelle est comparée à celle obtenue par l'équation (18).

Dans le cas du fer, les valeurs  $\alpha$ ,  $\eta$  sont:

$$\alpha=2.03 \quad \eta=5.82$$

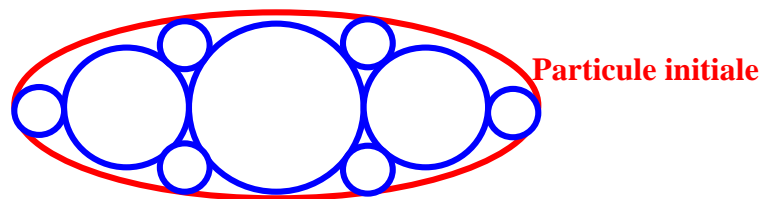
On obtient donc la valeur simulée:  $\rho =0.49$ . Cette valeur est en accord avec la valeur expérimentale obtenue.

Ces résultats sont en parfaite adéquation avec ceux obtenus pour les modèles empiriques et semi-empiriques (cf.: paragraphe 2.1.1.1): la densité d'empilement diminue lorsque la sphéricité de la poudre diminue.

Dans l'article [NOL95], les auteurs Nolan & Kavanagh modélisent des empilements RCP et RLP de particules non sphériques. Selon ces derniers:

- Le diamètre sphérique équivalent est déterminé soit par la transformation de la particule en une sphère de volume équivalent, soit par la valeur moyenne d'ouverture de la forme de la particule: cette simplification est significativement limitée par l'inaptitude à mesurer les propriétés dépendantes de la forme telles que le nombre de coordination.
- Une autre technique consiste à exprimer la forme en fonction de la sphéricité. Cependant les investigations sur l'effet de la non-sphéricité sur l'empilement n'ont pas été effectuées car trop complexes.

Pour palier ces limites, les auteurs modélisent une particule non-sphérique par un assemblage de sphères (cf. Figure 14), la résolution de la forme étant déterminée par le nombre et la taille de ces sphères.

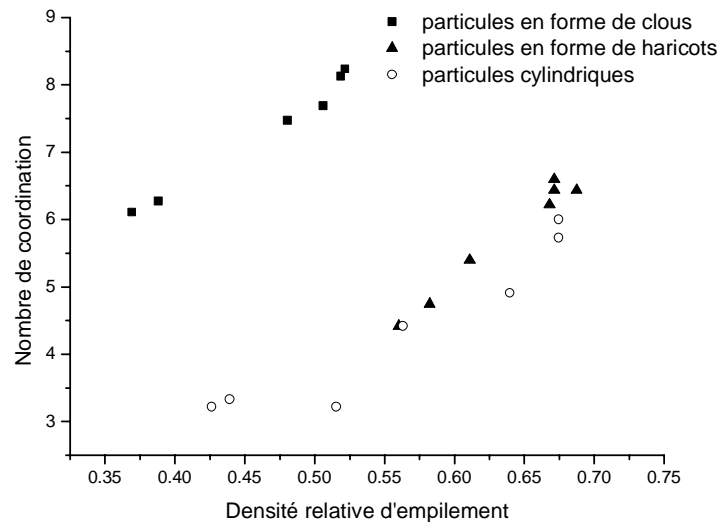


**Figure 14: sphères utilisées pour la détermination de la densité d'empilement des particules de forme allongée [NOL95].**

L'algorithme utilisé pour générer les empilements RCP et RLP est similaire à celui décrit pour les arrangements collectifs.

Résultats:

- Lorsque le nombre de sphères contenues dans la particule initiale augmente, la densité de l'empilement décroît jusqu'à atteindre une valeur limite. Ceci était attendu aux vues des résultats précédents obtenus sur l'influence de la sphéricité sur la densité d'empilement (cf.: paragraphe 2.1.1.1). En effet, une augmentation du nombre de sphères contenues dans une particule équivaut à une diminution de sa sphéricité, ce qui résulte en une diminution de la densité d'empilement.
- La densité d'empilement augmente avec le nombre de coordination, comme l'illustre la Figure 15.

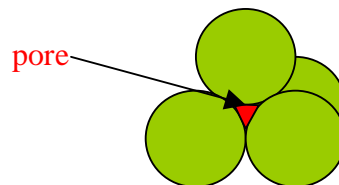


**Figure 15: Nombre de coordination moyen en fonction de la densité d'empilement de particules irrégulières [NOL95]**

### 2.1.2.2. Les algorithmes mathématiques

Ces algorithmes sont divers et variés [AGI84, GUP79]. Ils permettent, par exemple, la modélisation de l'efficacité d'un empilement (modèle de Lee), ou encore la modélisation 3D de l'espace vide entre les particules afin d'évaluer la distribution des pores.

Dans [AGI84], le pore est décrit comme l'espace libre entre la pyramide triangulaire ayant ses angles aux centres des 4 sphères de contact comme décrit sur la Figure 16.



**Figure 16: représentation d'un pore**

Résultats: lorsque la distribution en taille des particules est plus large, la distribution des pores est plus étroite (les grands pores sont remplis par les petites particules). Ce modèle peut être étendu aux particules irrégulières, exceptées celles possédant une anisotropie trop forte telles celles de type aciculaire. Il permet l'obtention de résultats similaires à ceux obtenus dans le paragraphe 2.1.1.4: la porosité est plus faible pour des empilements de particules dont la distribution en taille est plus large.

Une modélisation des empilements de terre est simulée dans [GUP79]. Le but des auteurs de cet article est de prédire la densité de mélanges de multicomposants de terre naturelle.

Principe: deux groupes de particules coexistent, les donneurs et les accepteurs. Le modèle d'empilement est basé sur le fait que des donneurs se trouvent enfermés dans les espaces vides

d'assemblages formés par des accepteurs, lors de l'empilement. Ce modèle calcule la densité massique pour 100g de terre, volume fractionné selon la taille des diamètres de toutes les particules qu'il contient.

- Densité massique maximale: tous les espaces vides de la fraction la plus grande sont remplis par la fraction la plus petite.
- Densité construite aléatoirement: les espaces vides sont complétés aléatoirement ou remplis partiellement avec des donneurs (le reste de vide est rempli d'air)
- Densité massique minimale: les espaces vides de toutes les fractions sont complètement remplis d'air.

#### Prédiction de la densité massique aléatoire $\rho_\gamma$

Une unité est déterminée pour chaque fraction en taille des particules. Chaque unité possède une chance égale d'agir comme une unité de donneurs ou une unité d'accepteurs. Il existe 3 possibilités pour qu'un donneur puisse entrer dans une cavité d'accepteurs:

- $r_{\text{donneur}} > r_{\text{accepteur}} \Rightarrow$  l'unité de donneurs est renvoyé dans le lit (il pourra servir ultérieurement soit en temps que donneur, soit en temps qu'accepteur).
- $r_{\text{donneur}} \leq r_{\text{accepteur}} \Rightarrow$  le volume de donneurs décroît d'un volume égal au volume de vides (unités d'accepteurs)
- si tout le volume de vide d'une unité d'accepteurs n'est pas rempli par les particules de l'unité initiale de donneurs, alors une autre unité de donneurs est sélectionnée aléatoirement et les critères précédents sont de nouveau appliqués.

L'itération cesse lorsque toute la fraction de terre restante est sélectionnée aléatoirement en temps qu'unité d'accepteurs.

#### Prédiction de la densité massique maximale $\rho_\beta$

- $r_{\text{donneur}} \leq r_{\text{accepteur}} \Rightarrow$  le volume de donneurs décroît d'un volume égal au volume de vides (unités d'accepteurs). Les vides vacants de la fraction la plus grossière est tout d'abord considérée comme une fraction d'accepteurs, et chaque fraction plus fine comme des particules de donneurs, jusqu'à ce que tout le vide soit rempli ou qu'il n'y ait plus de donneurs.
- Si le volume de la fraction de donneurs est plus grand que celui du vide, le surplus de donneurs retournent en unités dans le lit pour donner une fraction d'accepteur ou de donneur aux calculs suivants.

- L'itération se poursuit jusqu'à ce que le vide entre les fractions de particules grossières soit rempli par les particules plus fines.

#### Prédiction de la densité massique minimale $\rho_\alpha$

Cet empilement représente l'état lâche de tout mélange de particules.

La comparaison entre les résultats du modèle de Staple [STA75] et les résultats expérimentaux montre une bonne corrélation.

Limites: les particules utilisées dans cette approche sont très grossières.

### **2.1.3. Tendances générales dégagées par les modèles**

La porosité d'empilement de particules est largement influencée par la variation des paramètres suivants:

- La sphéricité: les empilements des grosses particules monotallées sont plus denses lorsque la forme des particules est plus sphérique.
- La présence d'agglomérats semble réduire fortement la densité finale d'empilements RLP, d'autant plus si la sphéricité des particules est faible.
- La taille moyenne des particules: lorsque les particules sont plus grandes, leur densité d'empilement est plus dense grâce à un affaiblissement des effets des forces de type Van Der Waals au profit de ceux des forces gravitationnelles.
- La distribution en taille des particules: une distribution en taille plus large permet aux petites particules de s'insérer au sein des interstices entre les plus grosses particules, ce qui engendre une augmentation de la densité de l'empilement.
- Le nombre de coordination: plus il est élevé, plus la densité de l'empilement augmente.

Ces tendances sont parfaitement modélisées par les modèles issus de la littérature, présentés dans cette partie. En revanche, ces derniers doivent être utilisés avec précaution : leur application est restreinte aux systèmes très spécifiques qu'ils décrivent. Les modèles traitant de mélanges multimodaux sont répertoriés en annexe.

### **2.1.4. Conclusions**

Tous les modèles présentés apportent une aide précieuse à la compréhension des mécanismes régissant l'empilement aléatoire d'une poudre. Certains sont également une source de données permettant des comparaisons qualitatives, voire quantitatives avec les valeurs obtenues par l'approche neuronale, utilisée dans cette étude.

- Pour un système d'empilement de particules ayant une distribution en taille log-normale, les modèles empiriques et numériques de Sohn & Moreland [SOH68], Dexter & Tanner [DEX72] et Nolan & Kavanagh [NOL93] semblent adéquats pour offrir une comparaison quantitative avec les résultats de l'approche neuronale.
- Pour des poudres plus irrégulières et plus spécifiques comme l'alumine, le modèle de [YU97] peut également être utilisé à titre comparatif.



## 2.2. *Densification lors du compactage d'une poudre*

Le compactage d'une poudre peut se décrire en 2 étapes: le réarrangement des particules auquel vient s'ajouter la déformation plastique lorsque la force de compression augmente.

Il est à noter que certaines poudres subissent un séchage par atomisation pour augmenter leur coulabilité et ainsi faciliter non seulement le remplissage des moules de compactage, mais aussi le compactage. Ce procédé est notamment très répandu dans le domaine des poudres dures et fines, dont le principal défaut est l'absence de fluidité libre (exemple: poudres d'alumine). Les poudres ainsi obtenues sont formées d'agglomérats de particules primaires appelés granules, dont la taille typique est aux alentours de 200µm. Ces granules présentent l'avantage d'être sphérique, ce qui, combiné avec leur grande taille, permet d'obtenir une coulabilité acceptable.

Le système consiste en un assemblage

- de particules denses
- de particules poreuses dans le cas de poudre granulée.

Selon si c'est une particule ou une granule, la structure initiale contient de larges vides de l'ordre de la taille de la particule ou de la granule.

Lors de la première étape, les structures ouvertes locales (porosités) s'écroulent et les particules ou granules se réarrangent: les modèles d'empilement d'une poudre, vus dans le paragraphe précédent sont alors applicables.

Durant la seconde étape, la déformation plastique se limite, dans un premier temps, à l'entourage des cous qui se forment et croissent entre les particules en contact. Puis, le réseau de canaux interconnectés se rompt pour former des pores isolés. La réduction des petits vides s'effectue par fracture des particules. Dans le cas des granules (le taux de liant est plus grand), une déformation plastique a lieu et entraîne également une réduction des petits vides. Les particules dépassent la compression élastique ce qui a des conséquences importantes sur la formation de défauts quand le corps est éjecté de la matrice.

Le compactage implique plusieurs mécanismes complexes. Une analyse théorique reste difficile : de nombreuses équations empiriques sont développées mais aucune n'est applicable de façon généralisée.

Une équation a l'avantage d'être simple :

$$P = \alpha + \beta \ln \left( \frac{1}{1 - \rho} \right) \quad (20)$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  sont des constantes dépendants de  $\rho_0$  et de la nature du matériau [RAH95].

Selon GERMAN [GER94], quand la pression augmente, la porosité diminue. La compressibilité d'une poudre est reliée à la densité obtenue à une pression de compactage définie. En 1<sup>ère</sup> approximation pour un compactage en matrice, l'équation est la suivante :

$$\ln\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}\right) = B - \theta P \quad (21)$$

où  $\varepsilon_0$  est la densité apparente, B une constante tenant compte du réarrangement et  $\theta$  dépendant du comportement du matériau.

Cette expression est adaptée au comportement de la plupart des poudres.

### Quelques influences des caractéristiques d'une poudre sur la densité verte

Les particules de petite taille ont plus de difficulté à être pressées car les grands pores s'écroulent sous des pressions plus faibles que les petits pores. D'autre part, l'écrouissage est retardé par une grande taille de particule, les distances de glissement des dislocations étant plus grandes.

Le taux de densification avec la pression est plus fort pour des particules de grande taille.

Les particules spongieuses (avec pores internes) sont difficiles à compacter : il y a, en effet, écroulement des grands pores interparticules. Pendant le compactage initial, il y a un fort taux de compressibilité initial mais résiste au compactage vers de hautes densités.

Dans cette partie sont présentés les modèles de compactage empiriques, théoriques et numériques.

#### **2.2.1. Modèles empiriques**

Les modèles empiriques existants dans la littérature relatent essentiellement la densification lors du compactage de poudres d'alumine ou de poudres métalliques.

##### *2.2.1.1. Les alumines*

Le compactage des alumines est largement référencé dans la littérature [BRI97, FRE84, LUK78, SHU02, TAR96]. L'influence des paramètres tels que, la taille et la forme des particules, le taux d'humidité ou d'agglomération, sur la densité verte des alumines est notamment étudiée [BRI97, FRE84, LUK78].

Les auteurs des articles [BRI97] et [FRE84] utilisent la voie humide pour agglomérer leurs poudres. La poudre est initialement micrométrique,  $d_{50} < 3\mu\text{m}$  et est mélangée à des liants (le PolyEthylène Glycol PEG et le PolyVinyl Alcool PVA). L'agglomération de cette poudre est ensuite obtenue via un séchage par atomisation: la taille des granules obtenues est comprise entre 53 et 212 $\mu\text{m}$ . Un tamisage permet l'obtention de granules quasi monotallées de différentes tailles. Puis la poudre agglomérée est versée dans un cylindre et est soumise à une pression uniaxiale. La densité verte est déduite de la masse et de la géométrie du corps cru obtenu.

Résultats:

- D'après [BRI97], le taux d'humidité est très important pour l'agglomération avec PVA. En effet, l'eau agit comme un plastifiant pour ce liant polymérique: plus sa teneur est importante, plus elle diminue la température de transition vitreuse du PVA. Par contre, il ne joue quasiment aucun rôle lors de la préparation avec PEG. Pour [FRE84], son augmentation entraîne une augmentation de la densité crue quelque soit la pression appliquée.
- Plus la quantité de liant est importante, plus la densité verte est faible pour [BRI97]. Elle a le même effet substantiel selon [FRE84].
- La densité verte moyenne décroît avec l'augmentation du facteur de forme.
- Le taux de compactage n'a pas un effet prépondérant sur le comportement au compactage des agglomérats d'alumine sèche. Il influe plus sur celui des agglomérats humides et plus la quantité de liant est importante, plus cet effet est prononcé.
- Il apparaît que les agglomérats dont la taille est inférieure à 50 $\mu\text{m}$ , possèdent une mauvaise coulabilité ce qui induit des densités tassée et verte plus faibles que celles des agglomérats plus gros [BRI97]. Pour les agglomérats dont la taille est supérieure à 50 $\mu\text{m}$ , il n'y a pas d'effet de taille d'après [FRE84].

Conclusion: le taux d'humidité, la forme et la taille des particules sont autant de paramètres influents sur la densité crue des poudres d'alumine.

Les auteurs de [LUK78] observent les différences entre le compactage d'une poudre massive d'alumine et celle d'une alumine séchée par atomisation (donc granulée). L'effet de la présence d'agglomérats sur la densité crue d'une poudre est ainsi mis en évidence.

Expérience: les agglomérats ont une taille moyenne comprise entre 20 et 86 $\mu$ m et une densité moyenne relative variant de 31 à 57%. Par un compactage uniaxial, des corps crus d'alumine de forme rectangulaire (2.9x0.8x0.5cm) et de disques (2.5x0.25cm) sont obtenus. La densité verte est obtenue à partir des mesures de la masse et des dimensions géométriques de ces corps crus. Une approximation est utilisée: la poudre d'alumine possède une distribution en taille des granules log-normale. La densité fractionnelle crue des 2 types de poudre est observée en fonction de la pression appliquée.

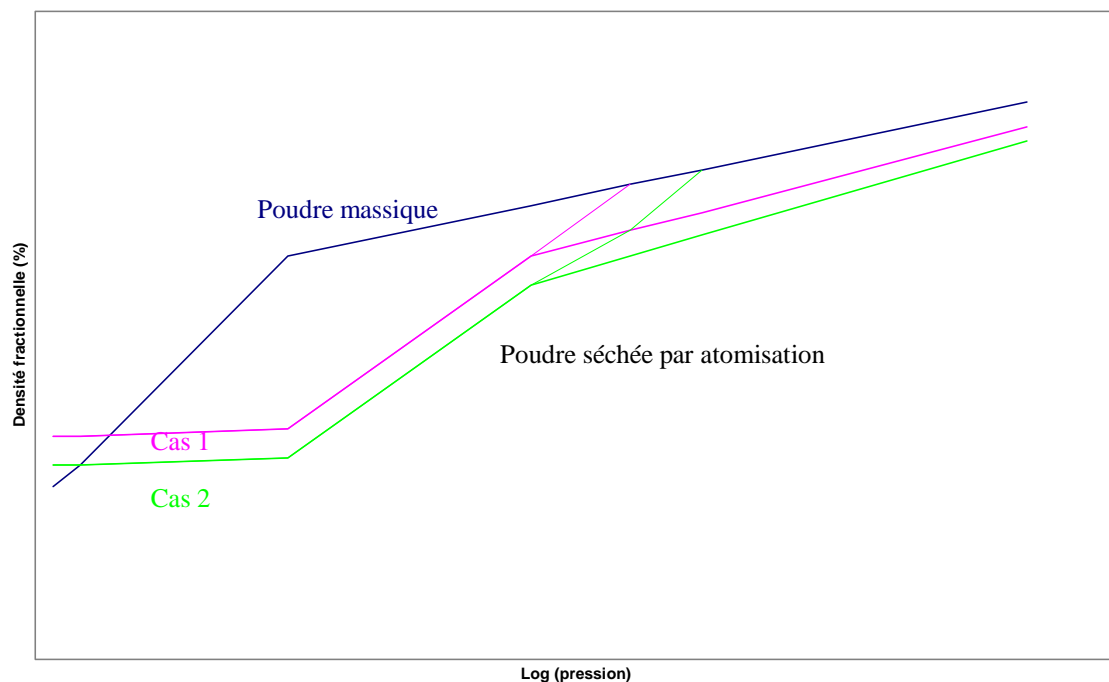
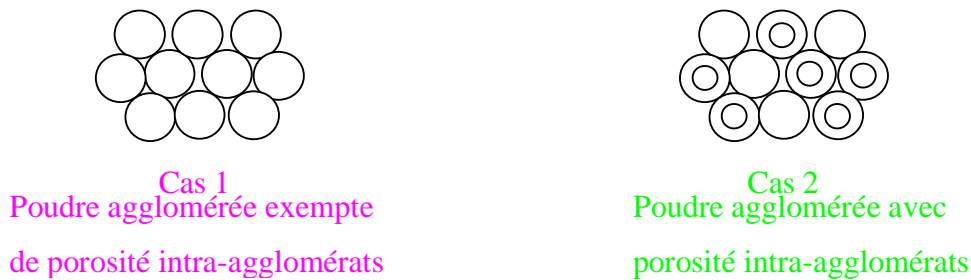


Figure 17: diagramme général de compactage [LUK78]

Les résultats sont les suivants:

- Les densités d'empilement des particules massiques sont plus faibles pour les poudres de grande surface spécifique, i.e. pour les poudres plus fines.
- La réponse de compactage des poudres granulées est toujours en retard comparée à celle de l'alumine massique.
- Lorsque le compactage est supérieur à 1%, les granules se déforment plastiquement à l'intérieur des interstices. A cette pression, la distribution en taille

des pores de l'alumine massive est large et monomodale tandis que celle de la poudre agglomérée est bimodale.

- Les agrégats de cristallites à l'intérieur des granules retardent le compactage et l'obtention d'une gamme étroite de taille de pore.

Conclusion: la taille des particules et la présence d'agglomérats jouent un rôle important dans la densification lors du compactage de poudres.

Dans l'article [SHU02], l'influence de la méthode de compactage sur la densité crue est étudiée.

Définition: le facteur de forme est défini comme étant le rapport entre la longueur maximale et la longueur normale à cette direction maximale. Il est calculé sur un échantillon de 500 particules observées au SEM.

Deux types de poudres d'alumine sont étudiés :

- Une poudre d'alumine légèrement allongée : le facteur de forme varie de 1 à 3,4 avec une moyenne de 1,6.
- Une poudre d'alumine très pure quasiment sphérique : le facteur de forme moyen est 1,1.

Ces poudres sont séchées par atomisation puis compactées par un pressage uniaxial (de 10 à 100MPa), puis par compactage isostatique à froid à 100MPa (CIP=Cold Isostatic Pressing) et la densité est mesurée dans chaque cas, à partir des dimensions géométriques et de la masse des échantillons.

Les résultats sont les suivants:

- Pressage uniaxial : une forte augmentation de la densité crue est observée.

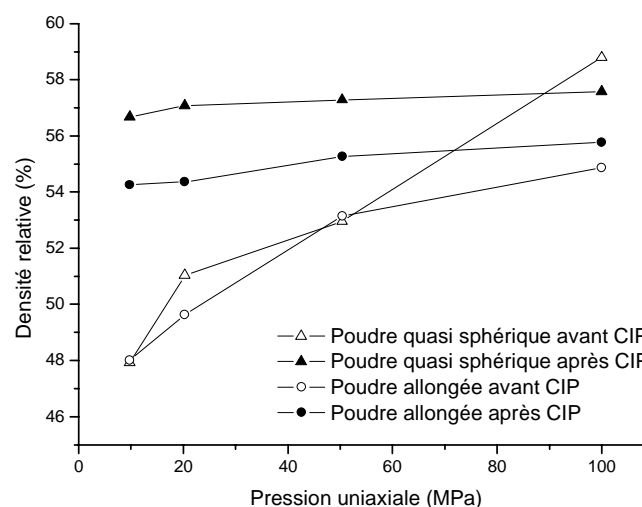


Figure 18: Variation de la densité verte avec la pression uniaxiale appliquée sur 2 types de corps avant et après CIP [SHU02]

Les gradients de densité entre les deux types de poudres sont différents, la densité crue finale de la poudre sphérique étant plus élevée.

- CIP : les gradients de densité restent similaires mais seule une légère augmentation de la densité est observée. La densité crue des sphères est supérieure à celle des particules allongées. L'empilement dépend donc de la forme même si la taille de la poudre est similaire.
- Le CIP permet d'augmenter la densité crue (sauf dans le cas des particules sphériques pour  $P > 90 \text{MPa}$ )

Conclusion: la forme des particules est importante pour la densification lors du compactage, de même que la méthode de compactage utilisée.

L'article [TAR96] traite expérimentalement de cette influence de la méthode de compactage sur la densité verte, et notamment pour des poudres bimodales d'alumine.

Pour cela, 2 poudres sphériques sont utilisées :

- Une poudre grossière, polycristalline dont le diamètre varie de 4 à  $5 \mu\text{m}$  et  $d_{50} = 4.6 \mu\text{m}$  (PSD étroite)
- Une poudre fine, dont la PSD est plus large et la taille moyenne des particules est  $d_{50} = 0.51 \mu\text{m}$

Le mélange bimodal est obtenu avec un rapport 7/3 des particules grosses sur les fines.

Puis le compactage est effectué soit par compression isostatique (98MPa) soit par coulage en barbotine.

La taille des pores obtenue après compactage diffère selon le traitement subi.

Pour un compactage isostatique, elle varie de 0.1 à  $0.5 \mu\text{m}$  tandis que pour les corps coulés en barbotine, elle est inférieure à  $0.2 \mu\text{m}$  et sa distribution en taille est plus étroite.

Conclusion: la méthode de compactage utilisée pour former les corps crus d'alumine joue un rôle prépondérant sur leur densité. Les corps verts coulés sont non seulement plus denses mais possèdent aussi une structure d'empilement plus uniforme que celle des corps pressés.

La présence d'agglomérats semble retarder leur compactage.

### 2.2.1.2. Les poudres métalliques

Plusieurs articles traitent de l'empilement de poudres métalliques [PAG96, POQ2002, KIM2001].

Les auteurs de [PAG96] observent le comportement lors du compactage, de composites métalliques. Le composite étudié est une matrice de fer (75-150 $\mu\text{m}$ ) renforcé avec de fines particules de TiC (5.6-22.5 $\mu\text{m}$ ) : le mélange subit ensuite un compactage isostatique à chaud (HIP= Hot Isostatic Pressing).

La densité relative de la phase matricielle dans le composite est

$$\rho_m = \frac{(1-f)\rho_c}{1-f\rho_c} \quad (22)$$

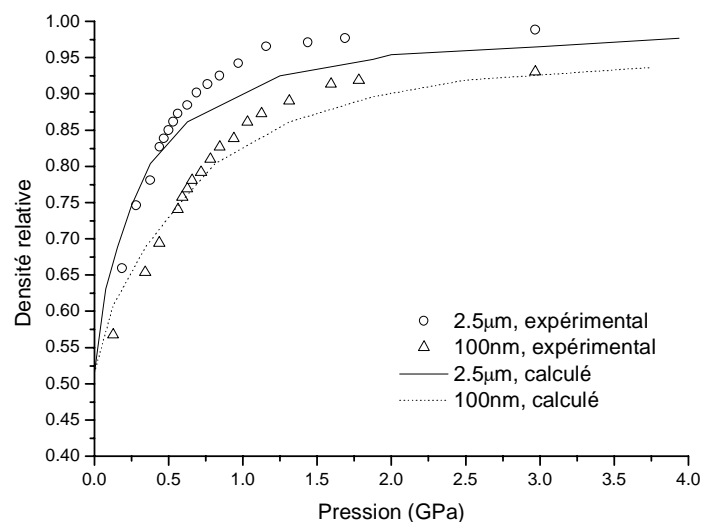
où  $\rho_c$ : la densité relative du composite et  $f$ : le pourcentage volumique des particules de renfort.

Conclusion: il existe un pourcentage volumique  $f$  optimal pour lequel la densité du composite est maximale.

Le modèle constitutif de [KIM01] s'applique à la densification du cuivre. Il est basé sur le modèle de plasticité des matériaux poreux, et combiné avec la description de l'évolution de la densité de dislocations.

Expérience: 2 poudres de cuivre, une non sphérique fine (100nm) et une sphérique plus grossière (2,5 $\mu\text{m}$ ) sont soumis à une compression uniaxiale ( $P > 3\text{GPa}$ ).

La densité relative est observée en fonction de la pression appliquée (cf.: Figure 19).



**Figure 19: comparaison des courbes calculées et expérimentales de compactage de poudres de cuivre fines et grosses [KIM01]**

Les résultats calculés sont en bonne corrélation avec ceux expérimentaux. La Figure 19 montre que lorsque la pression appliquée augmente, la densité relative croît rapidement, puis plus lentement pour arriver à une saturation. Cette tendance peut être expliquée par l'effet combiné de deux facteurs: la saturation de la densité de dislocations et celle de la densité

relative. Il est à noter que les particules fines possèdent une densité de dislocations supérieure à celle des grosses particules.

Les densités calculées sont plus faibles que celles expérimentales: d'autres mécanismes non modélisés, comme la rotation de poudre et sa redistribution, peuvent contribuer à la densification.

Malgré cela, ce modèle semble performant pour simuler la densification de poudres métalliques lors du compactage à froid.

Dans l'article [POQ2002], les auteurs cherchent à modéliser le plus réalistement possible la densification de 2 poudres de fer lors de leur compactage.

Ces 2 poudres sont pressées uniaxialement dans une matrice rectangulaire (32.36x13.28mm) ou cylindriques ( $\varnothing=10\text{mm}$ ):

- Poudre S: les grains sont plutôt sphériques et correspondent à des agglomérats de taille moyenne 15 $\mu\text{m}$  de petites cristallites de 0.5 à 1 $\mu\text{m}$ .
- Poudre E: les grains irréguliers sont rugueux et spongieux et sont des agglomérats de taille moyenne 30 $\mu\text{m}$  de cristallites métalliques aciculaires enchevêtrées d'1 à 2 $\mu\text{m}$ .

Les conditions du compactage sont les suivantes:

- la pression appliquée sous air varie de 100 à 350MPa et la pression finale est maintenue pendant 2min
- du stéarate de zinc dans une solution acétate est ajouté pour améliorer le compactage

Ainsi, 2 types de corps verts sont obtenus pour chaque poudre utilisée: des cylindres appelés PS et PE, et des barres appelées S et E.

Description de la densification lors du processus de compactage:

1. Cet état de déformation élastique est réversible.
2. Les particules se réarrangent et le glissement des interparticules.
3. Déformation plastique due à entrelacement des particules qui se localisent en premier au niveau des contacts entre les particules.

Les étapes 1 et 2 du compactage sont décrites par le modèle de Cam-Clay (Figure 20) tandis que la troisième étape est modélisée par la loi de puissance.

Hypothèses: la compression est supposée uniforme dans la matrice et l'état de contraintes homogène, avec une symétrie axiale.



Modèle de Cam-Clay: ce modèle a initialement été développé pour simuler le comportement des argiles en tenant compte de la déformation plastique et du glissement des grains les uns sur les autres. Cette approche peut aisément être transposée au compactage des poudres sphériques commerciales de fer.

Comme seule la compression uniaxiale est considérée ici, les équations mécaniques de ce modèle peuvent être simplifiées: la seule déformation possible a lieu le long de l'axe de compression.

$$e_{zz} = \frac{\rho_0}{\rho} - 1 = \text{déformation le long de l'axe de } z \text{ où } \rho_0 \text{ et } \rho \text{ sont respectivement les densités}$$

relatives initiale et actuelle du corps cru.

D'après ce modèle, la réponse du matériau dépend de 5 paramètres:

- deux décrivent l'état initial: le taux de vide initial  $e_0$  et la pression d'écoulement plastique  $P_{i0}$
- trois sont des caractéristiques intrinsèques: la pente de la droite d'état critique  $M = \frac{q_m}{p_m}$  où  $q_m$  et  $p_m$  sont les maxima respectifs de la contrainte déviatrice et de la

contrainte moyenne, la pente de charge et de décharge  $\kappa$  et la pente de charge  $\lambda$  sur la surface de rendement. La Figure 20 permet de visualiser graphiquement les paramètres  $\lambda$  et  $\kappa$ . Dans le modèle de Cam-Clay,  $M$  est constante et indépendante de  $P_{i0}$ . Comme seuls les tests uniaxiaux sont effectués,  $M$  n'est pas évaluée ici.

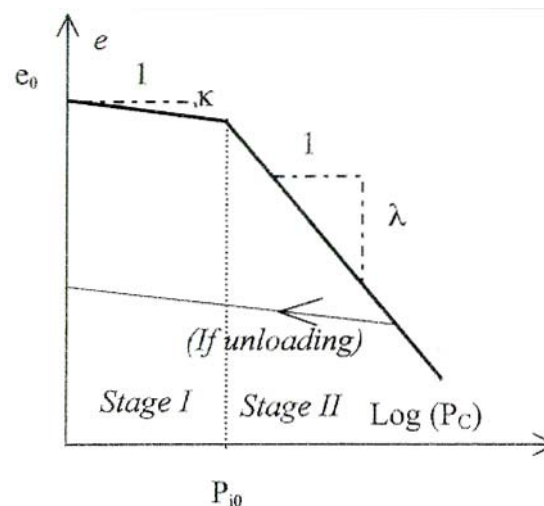


Figure 20: représentation schématique de l'évolution du taux de vide avec la pression de compactage selon le modèle de Cam-Clay. Définition des pentes  $\lambda$  et  $\kappa$  [POQ2002].

La Figure 21 représente schématiquement la réponse du matériau selon le modèle de Cam-Clay.

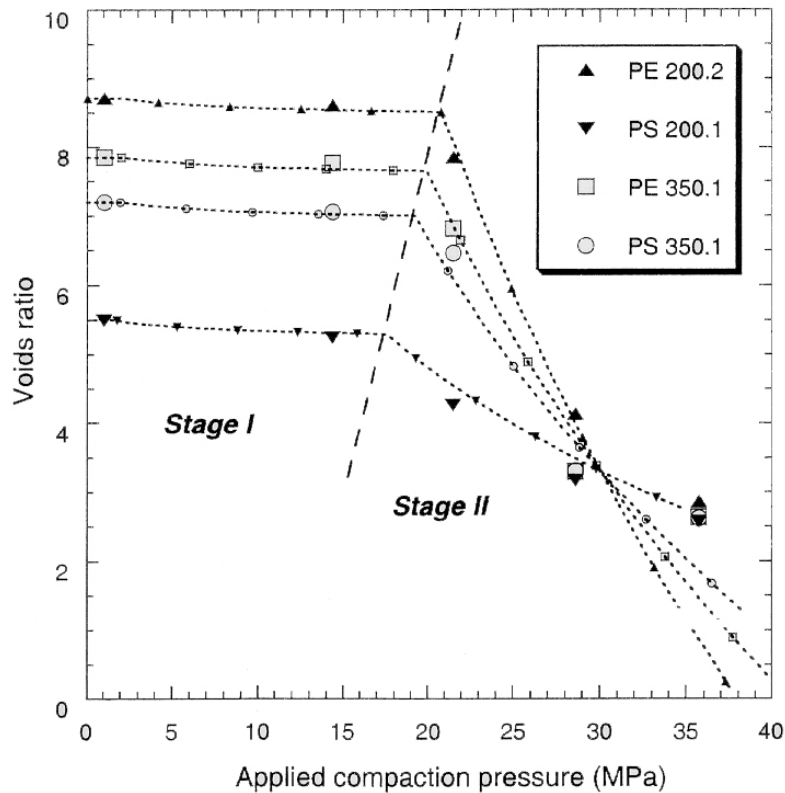


Figure 21: évolution prédite du taux de vide avec la pression de compactage appliquée pendant les étapes 1 et 2 (courbes avec les petits symboles). Comparaison avec les valeurs expérimentales (courbes avec les gros symboles). La ligne pointillée représente la limite entre les étapes 1 et 2 [POQ2002].

- Etape 1: seule la déformation élastique des grains est impliquée: la courbe de décharge est donc similaire à la courbe de charge. La rugosité de surface prévient le glissement des particules. Les tensions réversibles proviennent de la déformation élastique du squelette lors du réarrangement des particules.

$$e = e^0 - \kappa \log_{10}(P_c) \quad (23) \text{ où } \kappa=0.2 \text{ et } P_c \text{ la pression de compactage.}$$

- Etape 2:  $P_{i0}$  est atteint => le taux de vide décroît rapidement dû glissement des grains. Lors de la décharge, la réponse élastique possède la même pente que celle de l'étape 1 mais la déformation totale n'est plus nulle: le glissement des grains n'est plus réversible (cf.: Figure 20).

$$P_{i0}=12+e^0 \quad (24)$$

Remarque: l'équation dimensionnelle (24) est incorrecte mais elle peut être utilisée graphiquement avec la Figure 21.

$$e = e(P_{i0}) - \lambda \log_{10}\left(\frac{P_c}{P_{i0}}\right)$$

$$\lambda = \frac{e^0 - 3.5}{1.48 - \log_{10}(P_{i0})} \quad (25) \text{ et } (26)$$

Les étapes 1 et 2 semblent parfaitement modélisées : les valeurs expérimentales et simulées sont en totale adéquation.

- Etape 3: modèle de la loi de puissance: pour une pression  $P_1=35\text{MPa}$ .

$$\rho = \rho_1 + \alpha(P - P_1)^n \quad (27)$$

où  $P_1$  et  $\rho_1$  sont la pression et la densité à la fin de l'étape 2,  $\alpha$  est la capacité de matériau à se déformer (cette valeur est plus forte pour la poudre E que pour la poudre S) et  $n$  équivaut au coefficient de durcissement (il est égale à 0.55 pour les simulations de fer).

Résultats: Les valeurs calculées par l'équation sont en bonne corrélation avec les résultats expérimentaux. La loi de puissance (27) est bien adaptée à l'étape 3.

Conclusions: Les 3 étapes de la densification d'un compactage uniaxial de poudres de fer sont bien modélisées par le modèle de Cam-Clay et la loi de puissance.

### 2.2.1.3. Les autres poudres

D. BOUVARD s'intéresse au compactage de mélange de poudres pharmaceutiques [BOU01].

Expérience: deux poudres pharmaceutiques sont pressées uniaxialement, permettant une densification incomplète:

- Poudre CS de fécule de maïs, dont la taille de particule est  $20\pm 5\mu\text{m}$ .
- Poudre AC180T d'aspirine tamisée, dont la taille de particule est  $180\pm 30\mu\text{m}$ .

Les auteurs utilisent les modèles quasi chimiques (QC) pour simuler l'évolution de la porosité de ces deux poudres avec la pression appliquée.

Résultats: la relation entre la porosité et la pression est une fonction de l'ordre de la réaction  $a_A$  (correspondant au nombre de lacunes simultanément annihilées) et du facteur de compressibilité  $Kr_A$  ( $\text{MPa}^{-1}$ ). Pour les poudres CS et AC180T, ces paramètres sont:

- $a_{\text{CS}}=a_{\text{AC180T}}=2$
- $Kr_{\text{CS}}=0.041 \text{MPa}^{-1}$  et  $Kr_{\text{AC180T}}=0.3 \text{MPa}^{-1}$

Le modèle est en parfaite corrélation avec les résultats expérimentaux obtenus pour chacune de ces poudres.

La qualité de la prédiction est meilleure pour des systèmes sous pression modérée et forte porosité ( $n=0.25$ ).

Pour modéliser un mélange de poudres A et B, la méthode la plus simple est l'utilisation du modèle des mélanges parfaits.

La densité d'empilement est :  $\rho_m^{-1} = v_A \rho_A^{-1} + (1 - v_A) \rho_B^{-1}$  (28)

où  $v_A$  = fraction volumique de A,  $\rho_A$  et  $\rho_B$ : densité d'empilement respective de A et de B (déterminée expérimentalement via  $a_A$  et  $Kr_A$ ).

Le modèle est assez satisfaisant pour de fortes pressions, i.e. la porosité  $n=0.1$  (i.e. lorsque le phénomène insertion/substitution n'a plus lieu).

Les auteurs de [FOU02] simulent la densification de poudres lors d'un pressage uniaxial suivi d'un frittage par un modèle, construit en 4 étapes:

- La transmission de la contrainte locale est calculée par la relation de Thompson
- Les gradients de la densité crue sont évalués à partir des gradients de contraintes et de la densification d'Heckel
- 2 lois expérimentales permettent de modéliser les effets de l'éjection et du frittage.

Selon cet article, la densification lors du compactage est décrite par 3 domaines:

- Réarrangement macroscopique
- Réarrangement microscopique
- Densification macroscopique

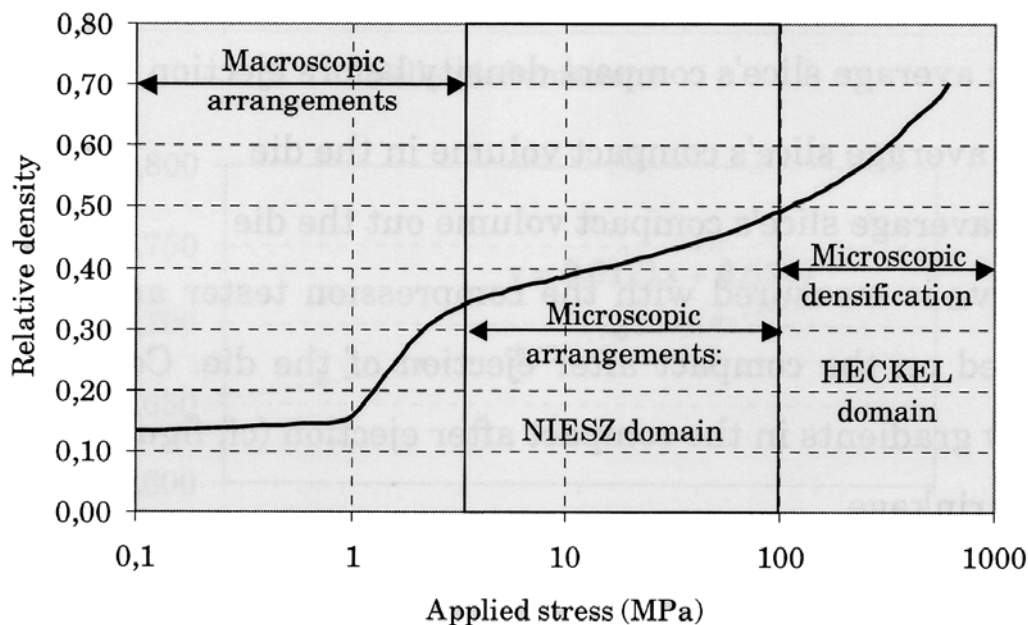


Figure 22: courbe de densification de la poudre  $UO_2$ , lors d'un pressage uniaxial.

Expérience: 2 poudres, une granulée très agglomérée (dont la distribution en taille de ces agglomérats est très large) et l'autre séchée par atomisation agglomérée (dont la distribution en taille de ces agglomérats est relativement étroite), sont versées dans des cylindres puis comprimées sous 600MPa et enfin frittées jusqu'à 95% de leur densité relative.

Résultats: le modèle est validé. Il permet le calcul des gradients de contraintes et de déterminer les gradients de densité crue.

- Poudre granulée: pendant le remplissage, les granules s'empilent mal à cause de la formation de ponts entre elles. Lorsqu'une pression est appliquée, ces ponts résistent puis finissent par se rompre : la densification montre alors une forte augmentation après une pression seuil de quelques MPa correspondant au domaine de réarrangement macroscopique (mouvements des granules).
- Poudre séchée par atomisation: lors du remplissage, les granules s'empilent bien et lorsque la pression est appliquée, il existe peu de mouvements entre elles : la densification est alors lente et progressive.

### 2.2.2. Modèles théoriques

Plusieurs modèles théoriques relient la densité crue  $\rho$  à la pression appliquée  $P$  [SUN99, PAN01, COC01, KIM02, FOU02, KEN96].

L'article de [PAN01] est une revue non-exhaustive des modèles théoriques existants dans la littérature simulant la densification lors du processus de compactage.

Pour toutes ces équations,  $A$  et  $B$  sont des constantes et  $\rho$  la densité relative.

- Equation de Balshin

$$\frac{1}{\rho} = A \ln P + B \quad (29) \text{ où } A: \text{module de pression}$$

- Equation de Heckel

$$\ln \left( \frac{1}{1-\rho} \right) = AP + B \quad (30)$$

où  $A$  représente la capacité d'un corps à se densifier par déformation plastique, et  $B$  le degré d'empilement atteint à basses pressions, dû au réarrangement des particules, avant qu'une quantité non négligeable de ponts interparticulaires ne se forme.

- Modèle de Kawakita et Lüdde

$$\frac{\rho}{\rho - \rho_0} = \frac{A}{P} + B \quad (31)$$

Limites de ce modèle: les fluctuations expérimentales de la densité apparente  $\rho_0$ , obtenue sans pression, rendent délicate son évaluation.

- Equation de Ge

$$\log \left[ \ln \frac{1}{1-\rho} \right] = A \log P + B \quad (32)$$

- Equation d'Ambrozio Filho & Panelli

$$\ln \left[ \frac{1}{1-\rho} \right] = A\sqrt{P} + B \quad (33)$$

où A représente la capacité de la déformation plastique et B, la densité en l'absence de pression.

Parmi toutes ces équations, celle de Panelli *et al.* semble être la meilleure modélisation de la densité de compactage des poudres réelles, le coefficient de régression entre les valeurs expérimentales et calculées étant quasiment égal à 1 pour diverses poudres expérimentales.

Une modélisation du compactage à froid de poudres céramiques est obtenue par le modèle constitutif modifié de Lee-Kim [KIM02].

Les auteurs comparent les modèles de Shima et Cam-Clay avec l'étude expérimentale de poudres de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Une forme générale de la fonction de rendement est la suivante:

$$AJ_2' + BJ_1^2 = C\sigma_S^2 = \sigma_R^2 \quad (34)$$

où J<sub>1</sub> et J<sub>2</sub>' sont les 1<sup>er</sup> et 2<sup>ème</sup> invariants respectifs de la contrainte et de la contrainte déviatrice, σ<sub>R</sub> est la limite apparent de contrainte ou la contrainte de flux de la poudre ou du matériau poreux, σ<sub>S</sub> la limite de contrainte du matériau solide de référence (non poreux) et C le terme géométrique de durcissement, fonction de la densité relative ρ.

- Shima & Mimura

$$3J_2' + \frac{J_1^2}{9a(1-\rho)^m} = (\rho^n S)^2 \quad (35) \text{ où } a, m, n, S \text{ sont des constantes.}$$

- Cam-Clay modifié

$$\left( \frac{t}{Ma} \right)^2 + \frac{1}{\beta^2} \left( \frac{J_1}{3a} - 1 \right)^2 = 1 \quad (36)$$

$$\text{où } t = \frac{(3J_2')^{0.5}}{g}, \quad g = \frac{2K}{1 + K + (1-K) \left( \frac{r}{3J_2'} \right)^3}, \quad \text{et } a = \frac{P_c}{(1+\beta)}$$

K: constante programmée par l'utilisateur,  $0.778 \leq K \leq 1$ .

r: 3<sup>ème</sup> invariant de la contrainte

$p_c$ : courbe de consolidation de la compression hydrostatique correspondant à la tension plastique volumétrique  $e_v^{p1}$  pour un matériau poreux.

$\beta$ : paramètre de capsule du modèle.

M: pente de la ligne de la droite d'état critique dans le plan p-t.

- Lee-Kim modifié

$$(2 + \rho^2)J_2' + \left(\frac{1 - \rho^2}{3}\right)J_1^2 = \left(\frac{\rho - \rho_c}{1 - \rho_c}\right)^N \sigma_s^2 = \sigma_\rho^2 \quad (37)$$

où  $\rho_c$ : paramètre expérimental interprété comme la densité relative critique en dessous de laquelle la contrainte d'écoulement de la poudre est nulle ( $\sigma_\rho=0$  lorsque  $\rho < \rho_c$ ) et N: paramètre empirique relié au taux de densification. Ces deux paramètres sont issus des expériences.

Résultats: les 3 modèles présentés sont en assez bonne corrélation avec le compactage à froid de  $Si_3N_4$ .

Limites: des expériences sont nécessaires à l'obtention des paramètres  $\rho_c$  et N ainsi que d'autres constantes.

L'article [KEN96] présente un modèle théorique pour le compactage des matériaux granulaires. Deux processus apparaissent simultanément : le réarrangement des particules et le remplissage du vide entre ces particules.

1. le réarrangement est décrit par la probabilité  $f_1 = cste \left[ 1 - \exp\left(-\frac{P}{P_1}\right) \right]$  où  $P_1$

représente la valeur de saturation de la pression P, à partir de laquelle l'augmentation de P n'a plus d'effet sur le processus. Si  $P \ll P_1$ , le nombre de vides remplis varie linéairement avec la pression. Si  $P \gg P_1$ , le nombre de vide remplis est indépendant de la pression appliquée.

2. le remplissage du vide est décrit par la probabilité  $f_2$  d'un sous-système à vaincre une barrière volumique permettant le remplissage du vide. Cette probabilité de type Arrhénius se présente sous la forme suivante

$$f_2 = cste \exp\left(-\frac{P_a}{P}\right) \text{ avec } P_a \text{ la pression nécessaire au franchissement de}$$

cette barrière volumique.

En combinant ces deux équations, la densité  $\rho$  de la poudre compactée peut être prédite :

$$\rho = \frac{\rho_0}{1 - \left( \frac{\rho_\infty - \rho_0}{\rho_\infty} \right) \left\{ \left[ c \left( 1 - \exp\left( \frac{P}{P_l} \right) \right) \right] + (1-c) \exp\left( \frac{P_a}{P} \right) \right\}} \quad (38)$$

où  $\rho_0 = \rho$  et  $\rho_\infty = \rho_{th}$  à  $P=0$

Cette relation est applicable si toutes les granules sont de même taille, de même nature et de même environnement.

Dans [COC01], la modélisation du compactage peut être scindée en 3 parties:

- étape 0: réarrangement des particules
- étape 1: début de la déformation plastique: la porosité est ouverte et la déformation est confinée à la proximité des cous, qui s'initient et croissent entre les particules en contact.
- étape 2: le réseau des canaux interconnectés se rompt pour former une distribution de pores isolés.

D'après les auteurs, pour simuler la déformation plastique lors du compactage, il existe 3 types de modèles :

- Le modèle de la plasticité incrémentale
- Le modèle micromécanique
- Le modèle des états de contraintes hydrostatiques

#### 2.2.2.1. *Modèle de plasticité incrémentale Green & Shima, Brown & Weber, Cam-Clay, Drucker & Prager.*

Dans l'article de [SUN99], les auteurs comparent les 3 modèles théoriques de déformation plastique des matériaux poreux de Shima, Fleck et Cam-Clay présentés ci-dessous, aux résultats expérimentaux, obtenus après compactage de poudres de fer et de cuivre:

- Modèle de Shima

$$\left[ \frac{q}{\sigma_m} \right]^2 + 2.49^2 (1 - \rho)^{1.028} \left[ \frac{p}{\sigma_m} \right]^2 - \rho^5 = 0 \quad (39)$$

où  $p$ : pression hydrostatique,  $q$ : contrainte équivalente de Mises,  $\rho$ : densité relative,  $\sigma_m$ : contrainte flexible de la matrice.

- Modèle de Fleck

$$\left[ \frac{\sqrt{5p}}{3p_y} \right] + \left[ \frac{5q}{18p_y} + \frac{2}{3} \right]^2 - 1 = 0 \quad (40)$$



où  $p_y = 2.97\rho^2 \frac{(\rho - \rho_0)}{(1 - \rho_0)} \sigma_m$  et  $\rho_0$ =densité relative initiale.

- Modèle de Cam-Clay

$$\frac{1}{\beta^2} \left[ \frac{p}{a} - 1 \right]^2 + \left[ \frac{t}{Ma} \right]^2 - 1 = 0 \quad (41)$$

$$\text{où } t = \frac{q}{g'}, \quad g = \frac{2K}{1 + K + (1 - K) \left( \frac{r}{q} \right)^3}, \quad \text{et } a = \frac{p_c}{(1 + \beta)}$$

K: constante programmée par l'utilisateur,  $0.778 \leq K \leq 1$ .

r: invariant de la 3<sup>ème</sup> contrainte

$p_c$ : courbe de consolidation de la compression hydrostatique correspondant à la tension plastique volumétrique  $e_v^{p1}$  pour un matériau poreux.

$\beta$ : paramètre de capsule du modèle.

M: pente de la ligne de la droite d'état critique dans le plan p-t.

Pour une poudre de fer et  $t=q$ ,  $\beta=1$ , ces paramètres sont:

$$M=6.7, \quad p_c = -0.002 + 104.48e_v^{p1} - 115.37(e_v^{p1})^2 + 485.18(e_v^{p1})^3 \text{ MPa}.$$

Et pour une poudre de cuivre :

$$M=6.0, \quad p_c = 0.111 + 214.55e_v^{p1} - 1352(e_v^{p1})^2 + 1206.3(e_v^{p1})^3 \text{ MPa}.$$

Résultats:

- Pour les poudres de fer et de cuivre, les modèles Shima et Fleck ne simulent pas bien les 3 états de charge simultanément.
- Le modèle de Cam-Clay simule bien les 3 états de charge pour les poudres de fer et de cuivre simultanément : il peut donc être utilisé pour simuler le processus de la densification lors de la compactage à froid de poudres métalliques.

Limites: l'identification de la surface de rendement est nécessaire (fonctions en taille et en forme de l'état du matériau).

#### 2.2.2.2. Le modèle micromécanique: Lui et al., Akisanya et al., Cocks

Limites: l'empilement aléatoire initial des sphères monotallées est supposé être dense : il est donc impossible de modéliser l'étape 0, qui consiste en un effondrement des structures locales ouvertes conduisant à un réarrangement des particules.

Lui et al. [LIU94] évaluent l'influence de la forme du pore sur la compressibilité d'un matériau. Ils démontrent que, pour une densité relative donnée, les matériaux contenant des

pores en forme de corne sont plus compressibles que ceux contenant des pores sphériques. Ce résultat est confirmé par l'analyse d'arrangement 2D de particules d'Akisanya *et al* [AKI94].

Cocks s'est intéressé à l'étape 1 du compactage et plus spécifiquement à la réponse rigide et parfaitement plastique des matériaux [COC89].

### 2.2.2.3. Le modèle des états de contraintes hydrostatiques: Helle *et al.*

Helle *et al.* [HEL85] ont démontré que le nombre de coordination et le déplacement relatif de deux particules voisines sont uniquement fonction de la densité relative du corps vert. Dans cette hypothèse limite, la réponse du matériau à la compression peut simplement s'exprimer en terme d'une seule variable, la densité relative. Limite: la combinaison des hypothèses conduit à un modèle isotropique.

Ce modèle a été généralisé aux états de contraintes multiaxiales par Fleck *et al.* [FLE92].

## 2.2.3. Modèles numériques et analytiques (assistés par ordinateur)

### 2.2.3.1. Modèles basés sur la déformation plastique

Ces modèles [SMI98, ZAH01] utilisent une simulation par éléments finis.

La déformation plastique des métaux poreux est décrite dans [SMI98] par une simulation par éléments finis (ABAQUS).

Expérience:

- Compactage uniaxial de poudres de bronze atomisées par eau
- KBS: ce modèle quantifie la déformation des particules sphériques adjacentes. Une estimation du changement de volume pendant le compactage est donc effectuée. L'applicabilité d'un tel modèle est limitée par la friction entre la poudre et les bords de la matrice. Ce dernier effet est modélisé grâce à l'utilisation d'éléments finis (ABAQUS) qui emploie le modèle de compactage plastique des métaux poreux.

Les résultats calculés par ce modèle sont en bonne corrélation avec ceux expérimentaux.

Limites: ce modèle ne tient pas compte de la friction interparticulaire et il reste invalide pour les faibles forces de compression (début du cycle de compactage).

Le modèle constitutif modifié de Drucker & Prager [ZAH01] est utilisé pour la modélisation de la distribution de la densité obtenue après compactage de poudres pyrotechniques.

Expérience: des composants énergétiques organiques (explosifs), présentant une faible cohésion, sont mélangés. Limites: la valeur arbitraire 0.1 est choisie comme coefficient de friction de Coulomb à toutes les interfaces.

#### 2.2.3.2. Modélisation de la distribution en taille des pores

Sweeney & Martin [SWE03] modélise l'évolution lors du compactage, de la microstructure par une voxelisation (un voxel est un pixel en 3D) DEM, d'un empilement RCP de 4000 sphères monotailles. Des forces de contact élastique et plastique sont appliquées ainsi que des forces de frottement pour chaque contact. Deux types de pores sont observés :

- les pores dits "de chambre" : les sphères locales les plus grandes sont utilisées pour la distribution en taille de ces pores (comme dans le modèle de Nolan & Kavanagh)
- les pores dits "de gorge" : les plus grandes sphères connectables à la surface sont utilisées pour la distribution en taille de ces pores. Cette modélisation rejoint celle en 2D de Garboczi & Bentz qui consiste à former le cercle le plus large pouvant se propager à travers une structure et connecter une partie d'un pore à la surface d'un échantillon (la modélisation étant étendue à 3D par Lewis *et al.*).

L'évolution de la taille des ces deux types de pores est suivie lors du compactage. Les auteurs observent ainsi une taille moyenne de pores "de chambre" 33% plus grande que celle des pores "de la gorge" avant le compactage. Cet écart augmente lors du compactage.

#### 2.2.4. Conclusion

La littérature est donc riche concernant les études sur la densification d'une poudre lors de son compactage. Cette dernière s'effectue en 2 étapes: le réarrangement des particules (pour cette étape, les modèles présentés dans la partie 2.1 sont valables) auquel vient s'ajouter la déformation plastique lorsque la pression appliquée augmente.

Les articles présentés dans cette partie permettent de dégager quelques facteurs importants, influents sur la densification lors du compactage de poudres.

- L'alumine massique étant un matériau très dur, la déformation plastique n'a pas lieu lors du compactage. Pour ces poudres, la forme des particules et la méthode de compactage utilisée semblent relativement importantes. Par exemple, un coulage en barbotine permet souvent l'obtention de corps crus plus denses avec une structure plus homogène qu'un compactage par pression isostatique, similaire à celui utilisé pour les poudres d'alumines de cette étude. Cela reste vrai pour les

poudres métalliques pour lesquelles le procédé MIM (Metal Injection Molding) densifie moins certaines pièces que le coulage.

- L'alumine granulée, par contre, peut se déformer plastiquement lors du compactage. Pour ce type de poudres, le taux d'humidité, la quantité de liant, et la taille et la forme des particules sont autant de paramètres actifs lors du compactage. La présence d'agglomérats semble également être un facteur influant la densification : constitués de particules de petite taille et irrégulières, ils semblent freiner la densification lorsqu'une pression est appliquée.
- Pour les poudres métalliques (généralement plus ductiles que les céramiques), la déformation plastique est effective et elle apparaît dans les équations modélisant la densification en fonction de la pression appliquée. La taille et la forme des particules, la présence d'agglomérats jouent un rôle important dans la première étape de la densification.

Tous ces modèles permettent une meilleure compréhension des mécanismes régissant la densification verte, des poudres d'alumine et de fer, étudiée ici. Par contre, la vaste étendue de données qu'ils utilisent, est obtenue dans des conditions trop différentes de celles utilisées par l'approche neuronale: ces données ne peuvent donc pas être utilisées à titre quantitatif, ni même qualitatif. De plus, aucun modèle présenté dans ces articles ne nous permet d'évaluer directement l'influence des caractéristiques de la poudre, telles que la distribution granulométrique en taille des particules sur la densité verte obtenue.

### *2.3. Densification lors du frittage d'un corps vert*

Le frittage est la liaison entre les particules à haute température. Il peut avoir lieu à  $T < T_m$  (=température de fusion) par des transports atomiques à l'état solide mais souvent, il implique la formation d'une phase liquide. À l'échelle microscopique, la liaison a lieu lorsque des cous cohésifs croissent au niveau des contacts entre les particules.

Les particules frittent par des mouvements atomiques qui éliminent les hautes énergies en surface associées à la poudre. L'énergie surfacique par volume dépend de l'inverse du diamètre de la particule. Donc plus la particule est petite, plus sa surface spécifique est grande et plus elle a de l'énergie et fritte rapidement.

Pour un solide cristallin, presque chaque contact de la particule évolue en joint de grain avec une énergie de joint de grains associée. Ces joints, importants dans le mouvement atomique, sont des régions imparfaites avec une forte mobilité atomique.

Pour les poudres métalliques, les mécanismes sont habituellement les processus de diffusion sur la surface, le long des joints de grains ou à travers le réseau cristallin (diffusion en volume). Les étapes du frittage ont souvent une progression géométrique. Ils relient la force motrice aux cinétiques et sont utilisées pour décrire mathématiquement le procédé.

Le changement de structure associé à la formation des cous pendant le frittage dépend des mécanismes de transport, qui sont principalement des procédés de diffusion. La diffusion est activée thermiquement signifiant que l'énergie spécifique est nécessaire au mouvement atomique. Le mouvement dépend de l'atome atteignant une énergie égale ou supérieure à l'énergie d'activation pour se libérer de son site actuel et aller dans un site vacant. La population des sites atomiques vacants et du nombre d'atomes ayant une énergie suffisante pour se mouvoir dans d'autres sites varie selon la relation d'Arrhenius.

Le frittage est plus rapide à haute température car le nombre de sites disponibles ou d'atomes activés augmente.

Généralement, le frittage peut être décrit par trois étapes :

#### Étape 1

Elle est caractérisée par un retrait faible, un rapport en taille des cous faible et une taille de grain égale à la taille de grain initiale.

Les modèles résultant de cette étape se concentrent sur la croissance isothermale des cous à travers le rapport en taille des cous  $X/D$  :

$$\left(\frac{X}{D}\right)^n = \frac{Bt}{D^m} \quad (42)$$

où X est le diamètre du cou, D le diamètre de la particule, t le temps de frittage isothermal et B une collection de constantes géométriques et du matériau.

Pour une taille de particule plus faible, la diffusion en surface et aux joints de grains est favorisés par rapport aux autres processus

La température apparaît comme un terme exponentiel : un faible changement de température peut engendrer un fort effet.

### Étape 2

Durant cette étape, la densité varie entre 70 et 92 % de la densité théorique et la croissance des grains débute. La structure poreuse devient plus lisse et a, plus ou moins, une nature cylindrique interconnectée. Il est fréquent pour la croissance des grains d'avoir lieu dans la dernière partie de l'étape 2, donnant une plus grande taille moyenne de grains avec moins de grains. Ceci est accompagné par de possible isolement de pores et un taux de frittage plus lent.

Le taux de densification dépend de la diffusion des lacunes en dehors des pores.

$$\frac{d\rho}{dt} = JAN\Omega \quad (43)$$

où J est le flux en diffusion (en atomes par unité de temps et de surface), A la surface sur laquelle la diffusion agit,  $\Omega$  le volume atomique et N le nombre de pores par unité de volume.

Si le processus d'élimination du pore est supposé être par diffusion en volume, alors la combinaison de la première loi de Fick, la géométrie du pore et l'équation de Laplace conduit à :

$$\rho_s = \rho_i + B_i \ln\left(\frac{t}{t_i}\right) \quad (44)$$

où  $\rho_s$  est la densité frittée,  $\rho_i$  la densité au début de l'étape intermédiaire,  $B_i$  suit l'équation

$$B = B_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$$

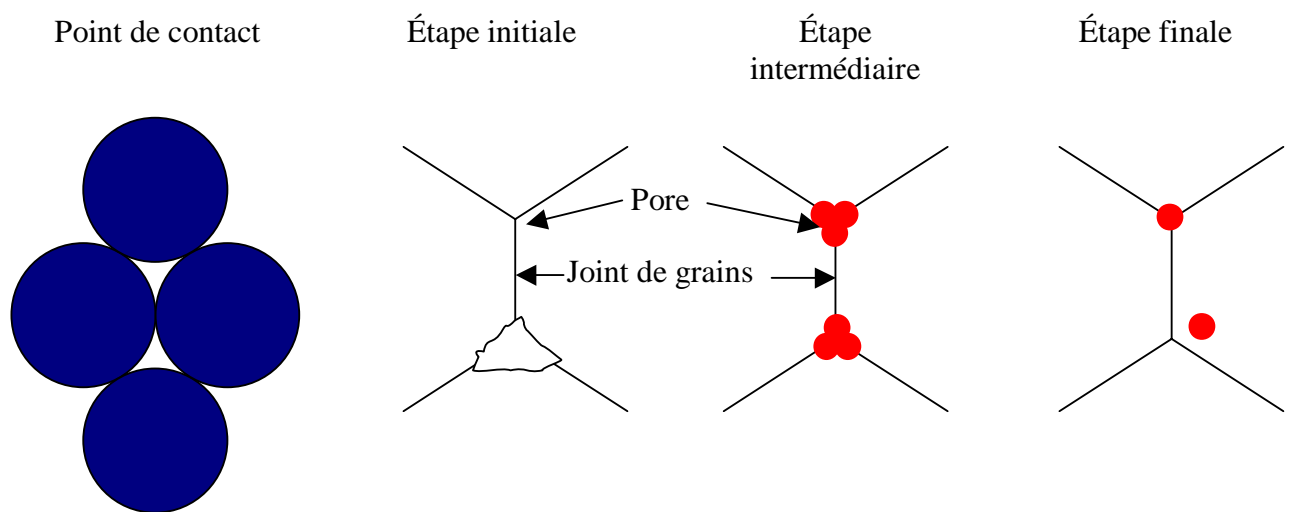
et  $t_i$  temps de départ de l'étape intermédiaire et t le temps de frittage isothermal.

### Étape 3

Le réseau de pores ouverts devient géométriquement instable lorsque la porosité diminue d'environ 8%. À ce stade, les pores cylindriques s'écroulent et deviennent plus sphériques et se rapprochent, et la croissance des grains est nette. L'apparition de pores isolés indiquent l'étape finale du frittage et une densification lente.

Cette étape est un procédé lent dans lequel les pores sphériques isolés se retirent par un mécanisme de diffusion en masse.

Ces différentes étapes sont présentées schématiquement sur la Figure 23.



**Figure 23: Diagramme schématique des modifications de la structure de pore pendant le frittage [GER96].**

Durant l'étape finale, l'interaction entre les pores et les joints de grains peut prendre 3 formes :

- Les pores peuvent retarder la croissance de grains
- Ils peuvent être entraînés par le mouvement des joints de grains durant le frittage (pour des T faibles)
- Les joints de grains peuvent se séparer des pores, les laissant isolés à l'intérieur des grains (pour des T élevées), comme illustré sur la Figure 23.

Ainsi, toutes les équations gouvernant les étapes du frittage sont d'ores et déjà connues en détails. Néanmoins, l'influence des caractéristiques de poudres sur la densité frittée finale n'est pas encore bien quantifiée.

Plusieurs modèles ont été développés pour obtenir un bon outil de prédiction de la densité frittée et par conséquent, pour aider à une meilleure compréhension du comportement à la

densification d'une poudre lors du frittage. Ces modèles sont présentés dans ce paragraphe, scindé en 3 parties:

- La présentation des modèles empiriques
- La présentation des modèles théoriques
- La présentation des modèles numériques

### 2.3.1. Modèles empiriques

Les modèles décrits ci-dessous modélisent les 3 étapes du frittage:

1. la première étape, qui correspond au réarrangement des particules.
2. l'étape intermédiaire, pendant laquelle des cous se forment entre les particules en contact et croissent.
3. l'étape finale: les cous s'étranglent et des pores isolés se créent. La croissance des grains est alors plus prononcée.

#### 2.3.1.1. 1<sup>ère</sup> étape du frittage

La loi expérimentale de [FOU02] est obtenue à partir du frittage de poudres de  $UO_2$ .

Expérience: les corps crus des 2 poudres  $UO_2$  (granulée et séchée par atomisation) sont frittés à plus de 95% de la densité théorique. Le retrait radial ainsi que le diamètre final sont évalués.

Le frittage est modélisé par une loi expérimentale, présentée ci-après.

Le retrait est supposé être isotrope. Le corps cru est décomposé en "tranches" et le diamètre final de chaque tranche est étudié.

$$\Delta\delta = d_{od} \left[ \frac{\bar{\rho}_{od}}{\rho_{end}} - 1 \right] \quad (45)$$

où  $\Delta\delta$ : retrait radial,  $d_{od}$ : diamètre du corps (en dehors de la matrice),  $\rho_{end}$ : densité finale frittée de la pilule, et  $\bar{\rho}_{od}$ : densité moyenne des tranches du corps, déterminée à partir de la loi de conservation de la masse:

$$M = \rho_{id} V_{id} = \rho_{od} V_{od} = \rho_{end} V_{end} \quad (46)$$

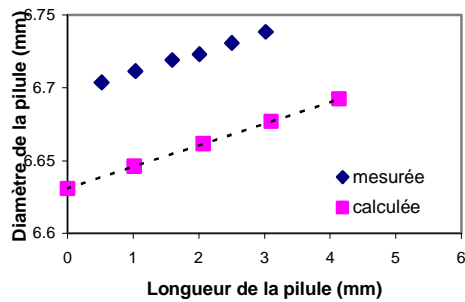
où  $d_{id}$ : densité à l'intérieur de la matrice, dont découle la relation  $\bar{\rho}_{od} = \frac{V_{id}}{V_{od}} \bar{\rho}_{id}$  (47).

Le diamètre final de la pilule après frittage est obtenu grâce à l'équation suivante:

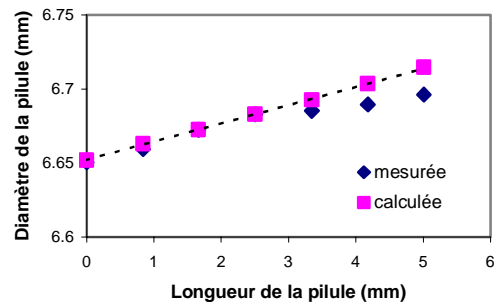
$$d_{end} = d_{od} + \Delta\delta \quad (48)$$

La déformation des pilules des 2 types de poudre est comparée à celle prédite par le modèle.





**Figure 24: Comparaison de la déformation expérimentale et simulée d'une poudre granulée après frittage**



**Figure 25: Comparaison de la déformation expérimentale et simulée d'une poudre séchée par atomisation après frittage**

D'après les figures ci-dessus, les auteurs peuvent affirmer la validité de leur modèle, qui semble plus réaliste dans le cas d'une poudre séchée par atomisation.

Remarque: Malheureusement, les investigations sur l'origine des différences de densification selon les caractéristiques de la poudre n'ont pas été poursuivies par les auteurs.

Conclusion: la déformation finale d'un corps cru après frittage est bien simulée par ce modèle.

D'après les auteurs He et Ma [HE01], l'étape 2 du frittage est l'étape pendant laquelle la porosité est sous forme de canaux interconnectés. Les énergies d'activation de la densification et de la croissance des grains peuvent être déterminées.

Expérience : de la poudre Baikowski d'alumine  $\alpha$ , ultrapure est utilisée. La taille moyenne de ses particules est  $d_{50}=0.9\mu\text{m}$ . Cette poudre subit une compression uniaxiale dans une matrice, puis le corps cru ainsi formé, est fritté selon un cycle thermique variable :

- La température s'élève jusqu'à  $600^{\circ}\text{C}$  à une vitesse de  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  puis jusqu'à 1400, 1450 ou  $1500^{\circ}\text{C}$  à une vitesse de  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$
- Les échantillons sont maintenus à cette température pendant 1, 3, 5, 10 et 15h.

La densité frittée est déduite des dimensions et de la masse de l'échantillon.

Résultats:

- D'après Ashby *et al.* [HE01], le frittage libre d'une alumine est divisé en 2 parties:
  1. étape 2 : il s'agit de l'étape pendant laquelle les pores sont connectés et que des cous discrets existent entre les particules. La densité relative est alors inférieure à 0.9.
  2. étape 3 : pour obtenir une densité relative supérieure à 0.9, les pores se resserrent laissant d'autre pores isolés entre les grains, avec une forme proche de l'équilibre.

- Energie d'activation de la densification  $Q_d=342\text{kJ/mol}$

$$\dot{\epsilon}_0 = \dot{\epsilon}_{00} \exp\left(\frac{-Q_d}{RT}\right) \quad (49)$$

- Energie d'activation de la croissance des grains  $Q_g=476\text{kJ/mol}$

$$\dot{L}_0 = \dot{L}_{00} \exp\left(\frac{-Q_g}{RT}\right) \quad (50)$$

- $Q_d=342\text{kJ/mol} < Q_g=476\text{kJ/mol}$ . Thermodynamiquement, la densification a donc lieu plus facilement.
- La taille des grains augmente lorsque la densité relative augmente.

Une croissance plus lente des grains peut être due aux pores interconnectés lors de l'étape 1, qui provoque un blocage important des joints de grains et restreint le mouvement de ces derniers.

Pour les auteurs, les résultats acceptés sont les suivants :

- Pour des températures élevées et des poudres fines, la diffusion domine le frittage. Elle a généralement lieu le long des joints de grains.
- Un frittage contrôlé par la diffusion aux joints de grains suppose que le joint de grains agit en source parfaite et s'écroule pour les atomes diffusants lors de la diffusion.
- En pratique, de l'énergie est utilisée pour qu'une interstice apparaisse ou disparaisse à un joint de grains: une réaction a donc lieu à l'interface.
- Plus la taille des grains est petite, plus le chemin de transport est court, donc plus la diffusion aux joints de grains est rapide, ce qui induit la réaction à l'interface devient importante.
- D'après Ma : le mécanisme de frittage des poudres fines l'alumine pure, dont  $d_{50} < 3\mu\text{m}$ , est dominé par les réactions d'interface. Le modèle constitutif des réactions à l'interface proposé par Cocks [COC94] décrit bien ce mécanisme.

Conclusion: lorsque la taille des grains est petite, le frittage est plus rapide et dominé par la diffusion aux joints de grain.

### 2.3.1.2. Etape intermédiaire du frittage

Les auteurs de [SHI98] étudient les effets du broyage et de la distribution en taille des particules sur le comportement au frittage de l'alumine.

Expérience: Une poudre très pure  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , dont la taille moyenne des particules est  $0.32\mu\text{m}$ , est utilisée. Elle est pressée uniaxialement dans une matrice cylindrique (diamètre  $1.2\text{cm}$  hauteur  $0.3\text{cm}$ ) sous  $40\text{MPa}$ . Puis elle est frittée sous air avec des vitesses différentes ( $5$ ,  $10$  et  $20^\circ\text{C}/\text{min}$ ).

Deux types de poudre sont produits par centrifugation de la poudre initiale:

- TPS, dont la distribution en taille est étroite et uniforme. La densité verte relative est  $\rho_v=65\%$ .
- TPL, dont la distribution en taille est plus large. La densité verte relative est  $\rho_v=58\%$ .

Chaque poudre est frittée sous des conditions variables:

- TPS:  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  entre  $1250^\circ\text{C}$  et  $1400^\circ\text{C}$
- TPL:  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  entre  $1300^\circ\text{C}$  et  $1550^\circ\text{C}$

Les densités vertes sont évaluées à partir de la géométrie de la pièce et les densités frittées à partir de la technique d'Archimède.

Résultats: l'effet de la distribution en taille des particules, sur l'évolution de la microstructure est observé.

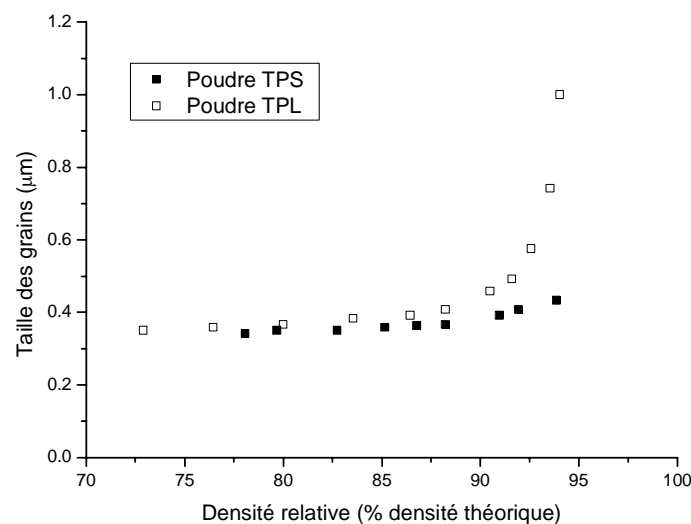
- L'initiation et la portée de l'étranglement des canaux de pores sont influencées par la distribution en taille des particules, qui a une profonde influence sur la morphologie des pores dans l'étape finale du frittage. Ainsi, si la distribution en taille est étroite et uniforme (poudre TPS), l'étranglement des pores commence à une densité relative de  $91\%$  au lieu de  $86\%$  pour une poudre de distribution en taille plus large (TPL). Par contre, cet étranglement est presque complet à une densité relative de  $94\%$  pour les 2 types de poudre.
- L'observation des microstructures obtenues montre que :
  - Pour des poudres fines ayant une distribution en taille des particules étroite et uniforme (poudre TPS): deux pores ne sont jamais côte à côte (pas de pores aux joints), quelle que soit la microstructure lors de l'étape finale du frittage.
  - Pour des poudres ayant une distribution plus large (poudre TPL):
    - $\rho_{f\text{ rel}} < 92\%$ : il n'y a quasi aucun pore aux joints, mais la microstructure devient non uniforme.
    - $\rho_{f\text{ rel}} > 92\%$ : des pores côte à côte apparaissent et de nombreux pores sont piégés dans les grains.

L'emplacement des pores n'est donc pas déterminé par l'énergie nécessaire pour un joint de grains de se détacher des autres pores.

- D'après Svoboda & Riedel, théoriquement, un pore situé aux bords ou aux coins, ne se détache pas des joints de grains, sauf si un des grains de coordination devient suffisamment large. De la même manière, l'échange des pores à un emplacement d'ordre faible est possible lorsque les grains coordonnés sont suffisamment larges. Donc plus la distribution en taille des particules est large, plus les pores devraient avoir l'opportunité de se placer à des sites d'ordre plus faible. Cette tendance est bien observée lors de l'observation de la microstructure des poudres TPS et TPL.

Effets de la distribution en taille des particules:

1. une distribution fine et uniforme prolonge l'étape intermédiaire ce qui inhibe considérablement la croissance des grains.
2. une distribution plus large permet une apparition plus facile des pores aux joints, ces derniers étant plus facilement pris au piège à l'intérieur du grain. La croissance des grains est alors fortement augmentée, ce qui est mis en évidence sur la Figure 26.



**Figure 26: comparaison de la taille des grains après frittage et de la densité relative frittée des poudres TPS (distribution en taille étroite et uniforme) et TPL (distribution en taille large) [SHI98]**

Conclusions:

La distribution en taille des particules affecte non seulement les mécanismes d'étranglement des canaux des pores dans l'étape intermédiaire du frittage, mais aussi les emplacements des pores durant l'étape finale, qui, à leur tour, influencent la microstructure

finale. D'après Brook [BRO69], la taille des grains joue également un rôle important sur la densification lors du frittage.

Les emplacements des pores ne sont pas seulement déterminés par l'énergie nécessaire au détachement des pores des joints de grains, mais sont fortement influencés par la poudre initiale et les conditions de traitement.

### 2.3.1.3. Etape finale du frittage

Plusieurs études traitent de la dernière étape du frittage [HAR, SHI98, DU2001, CIS96, GER96].

Le modèle de Harmer [HAR] décrit la dernière étape du frittage d'un système  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{MgO}$ .

Les mécanismes de densification et de croissance des grains sont modélisés par les équations suivantes:

- Pour une densification contrôlée par la diffusion de volume lors de l'étape finale:

$$\frac{d \ln \rho}{dt} = cst \left[ \frac{1}{\rho} \frac{D_L \gamma_{s/v} \Omega}{G^3 RT} \right] \quad (51)$$

où  $\gamma_{s/v}$  est l'énergie interfaciale solide/vapeur,  $\Omega$ , le volume molaire,  $D_L$  le coefficient de diffusion du volume,  $G$  la taille des grains.

- Pour une croissance des grains normale limitée par l'entrave des pores avec les pores se mouvant par diffusion surfacique.

$$\frac{d \ln G}{dt} = cst \left[ \frac{D_s \delta_s}{RTG^4} \frac{\gamma_{gb} \Omega}{(1-\rho)^{4/3}} \right] \quad (52)$$

où  $\gamma_{gb}$  est l'énergie des joints de grains,  $\delta_s$  la largeur de diffusion en surface et  $D_s$  le coefficient de diffusion en surface.

Pour une densification pure, la courbe taille de grains  $G$  en fonction de la densité  $\rho$  a une trajectoire complètement plate, tandis que pour un grossissement pur, elle possède une trajectoire infiniment abrupte. Sous conditions normales de frittage, cette trajectoire est située quelque part entre ces deux cas extrêmes.

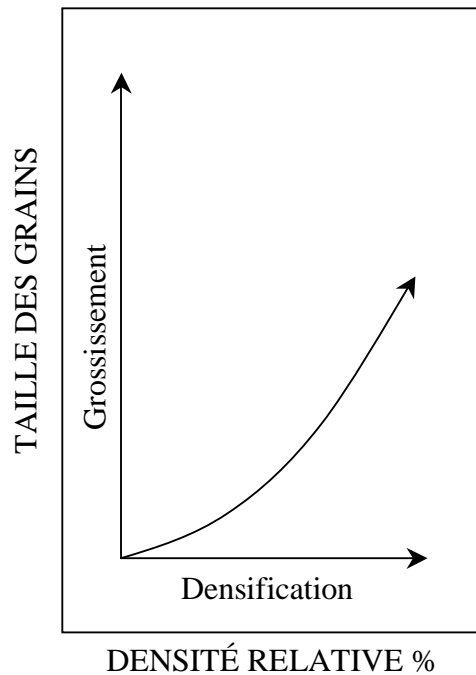
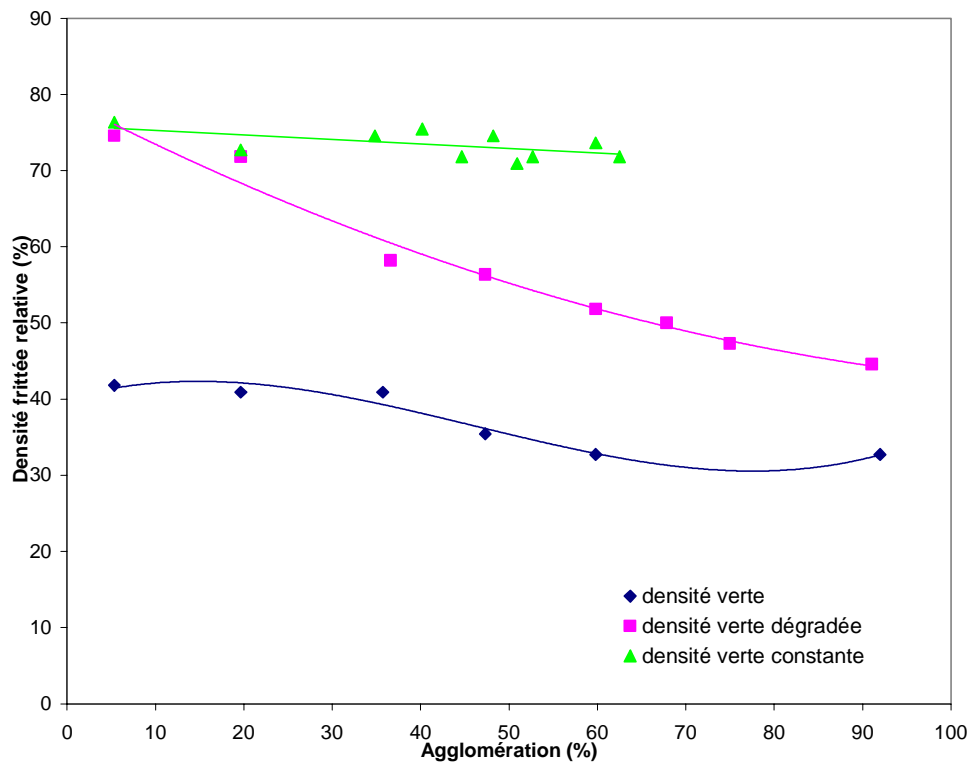


Figure 27: représentation schématique du développement de la microstructure en terme de taille de grains versus densité, d'après Yan *et al.* [YAN81]

Malgré une bonne description de l'effet de MgO, cet article ne nous permet pas d'évaluer directement les effets des caractéristiques initiales de la poudre sur la densité finale frittée. Il ne sera donc pas utile pour notre étude.

Dans l'article [GER96], l'auteur GERMAN étudie la densité de frittage de poudres d'alumines en fonction de l'agglomération pour 2 conditions de densification verte différentes [DUW49]. La poudre d'alumine est compactée puis frittée à 1550°C pendant 1heure. Il est à noter que lorsque le taux de compactage est constant, la densité verte d'une poudre agglomérée est plus faible que pour un compactage sous pressions variables. Il en résulte une densité frittée finale plus faible, comme le montre la Figure 28 ci-dessous.



**Figure 28 : Densité frittée en fonction de l'agglomération d'une poudre d'alumine pour deux compactages différents : un sous pression constante et l'autre sous pression variable [GER96].**

La densité verte, obtenue sous pression de compactage constante, est dégradée par l'agglomération, ce qui réduit le taux de frittage. Par contre, lorsque la densité verte est maintenue constante par des pressions de compactage variables, la densité frittée n'est que très peu dégradée par l'agglomération.

Plus la pression appliquée lors du compactage est forte, plus la densité verte augmente ainsi que le nombre de coordination et la taille des contacts entre les particules, tandis que le taux de croissance des cous et le retrait diminuent. Dans la plupart des cas, le compactage augmente la densification lors du frittage, la porosité verte étant réduite et la surface de contact entre les particules plus grande.

L'effet de la microstructure verte sur la densification de l'alumine s'avère également non négligeable. C'est ce qu'il ressort de l'étude des auteurs de [DU2001], qui traitent de l'évolution de la densification d'un fil en alumine grâce au procédé CFF (Controlled Fracture Forming).

Description du procédé CFF:

1. un corps céramique (alumine) est préfritté et scellé dans un étui métallique, appelé fil.

2. la pièce composite (céramique+fil) à usiner est formée par laminage/martelage, avec différentes réductions en surface (RA: Reduction in Area).
3. les fils composites sont superposés couche après couche puis frittés par pressage à chaud.

Expérience: des alumines très pures, dont la taille des particules est  $0.1\mu\text{m}$ , sont utilisées dans le procédé CFF. Elles sont pressées sous forme cylindrique à 55% de la densité théorique puis préfrittées à 1473K pendant 1 heure sous air, pour atteindre 80% de leur densité théorique.

Les fils composites, formés du corps céramique et de l'étui métallique et laminés avec une RA de 98%, sont particulièrement étudiés. Ils sont dénommés CS-98.

Le nombre de coordination des pores est défini par SEM comme le nombre de particules en contact avec le pore.

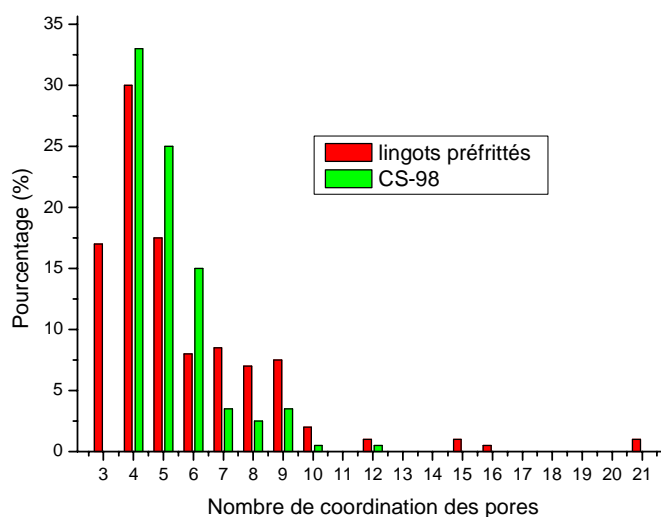
Résultats:

- la morphologie des particules martelées à froid dépend de la densité initiale.
  - Dans le cas, du corps vert (~55% de la densité théorique), la plupart des particules ont à peu près la même taille ( $0.13\mu\text{m}$ ) que celle des particules initiales.
  - Dans le cas d'un lingot préfritté (~79% de la densité théorique), la morphologie des particules montre une distribution bimodale : des particules grosses coexistent avec de petites particules, situées aux surfaces ou dans les interpores des grosses particules. La distribution en taille des particules montre que la taille des grosses particules a diminué : elles ont donc été broyées, ce qui est attribué aux contraintes compressives résultant de la déformation plastique de l'étui durant le martelage. Cela dépend par conséquent, du degré de déformation plastique.
- Les agglomérats et les grands pores, ayant un nombre de coordination élevé dans le lingot préfritté, sont totalement éliminés grâce au flux et au réarrangement des particules broyées.
- D'après Lange [LAN84], les pores ne peuvent être éliminés uniquement si le nombre de coordination des pores est inférieur à une valeur critique. Cette valeur dépend de l'angle diédral  $\phi$  à l'intersection des joints de pores et grains, calculé par la relation de Young :



$\gamma_{gb} = 2\gamma_s \cos \frac{\phi}{2}$  (53) où  $\gamma_{gb}$  et  $\gamma_s$  sont les énergies respectives du joint de grains et de surface.

Dans le cas de l'alumine,  $\phi=150^\circ$  ( $\gamma_{gb}=0.45\text{J.m}^{-2}$  et  $\gamma_s=0.9\text{J.m}^{-2}$ ). Cet angle correspond à un nombre de coordination des pores égal à 12, si les particules entourant le pore sont supposées avoir la même taille. Ces résultats montrent que tous les pores de CS-98 sont thermodynamiquement instables, donc s'éliminent et une densité totale est atteinte. Pour les lingots préfrittés, ~4% des pores ne peuvent pas s'éliminer (le nombre de coordination des pores est supérieur à 12) : la densité finale obtenue n'est alors que ~97.6% de la densité théorique.



**Figure 29: Histogramme de la distribution du nombre de coordination des pores pour les lingots préfrittés et des fils composites CS-98 [DU2001].**

- Le contrôle de la microstructure verte permet de jouer sur la densité finale. Ainsi, une microstructure verte dotée de petits pores et d'une distribution en taille des particules étroite améliore la densification.

Le procédé CFF a le potentiel pour fabriquer des composites à matrices métalliques renforcés avec des fils de céramiques denses.

Les auteurs de [CIS96] s'intéressent à l'influence de la méthode de compactage sur le comportement à la densification lors du frittage d'une poudre très pure  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ . Cette poudre possède une taille moyenne  $d_{50}=0.25\mu\text{m}$  et une taille maximale  $d_{\text{max}}=0.70\mu\text{m}$ . Sa surface spécifique est  $12.52\text{m}^2/\text{g}$  et elle forme des agglomérats irréguliers de 10 à  $20\mu\text{m}$ . Elle est compactée selon deux méthodes différentes :

- Par CIP dont la pression appliquée est 100, 200, 300 et 400MPa. Les cylindres obtenus ont pour dimension 10mm de diamètre x 50mm de hauteur.
- Par coulage en barbotine dans une suspension contenant 20 ou 30%vol de poudre préalablement désagglomérée. Des corps crus de dimension rectangulaire 50x30x7mm<sup>3</sup> sont obtenus.

Ces corps verts sont chauffés à 800°C pendant 1 h puis leur densité verte est évaluée par la méthode d'Archimède.

Ils sont ensuite frittés dans un dilatomètre de 25 à 1600°C avec une vitesse de 10°C/min.

Ces densités vertes et frittées sont ensuite comparées en fonction de la méthode de compactage appliquée.

- Résultats pour la consolidation
  - La densité verte augmente lorsque la pression appliquée augmente. Les échantillons coulés sont plus denses que ceux pressés.
  - La taille moyenne des pores diminue lorsque la densité verte augmente. D'après Lange [LAN89] et Hirata *et al.* [HIR92], ce phénomène est dû à un nombre de coordination plus grand pour les gros pores.
    - Pour les corps pressés, la distribution de la porosité est monomodale. Le compactage réarrange les agglomérats sans les casser : les microstructures obtenues sont donc similaires.
    - Pour les corps coulés, la distribution est plus étroite et bimodale.
  - Tous les corps crus possèdent une petite fraction de pores dont la taille est inférieure à 0.1µm.
  - Les empilements sont différents :
    - Pour les corps coulés, il est régulier
    - Pour les corps pressés, la présence d'agglomérats le rend plus aléatoire.
- Résultats pour le frittage :
  - Une augmentation de la densité verte  $\rho_v$  entraîne une augmentation de la densité frittée  $\rho_f$  et une diminution du retrait total. Si  $\rho_v > 57\%$ , alors  $\rho_f > 99.6\%$ . la densification est alors quasi complète. C'est le cas pour les échantillons pressés à 400MPa et coulés avec 20%vol de poudre : la porosité intergranulaire est alors quasi inexistante et seuls quelques pores restent aux jonctions triples des grains après frittage.

- La taille des grains frittés est similaire dans tous les cas. Mais avec un corps vert de faible densité, l'obtention d'une densité frittée similaire à celle obtenue avec un corps vert dense conduit à une croissance de grains plus élevée.
- Pour le coulage, la densification est plus faible. Cette différence est imputable à la présence de fissures.

Ainsi, une densité verte élevée influe sur 3 paramètres lors du frittage :

1. la 3<sup>ème</sup> étape du frittage commence à une température plus faible et se termine plus rapidement. Ceci est dû à une porosité de taille plus basse, qui diminue le transport de masse nécessaire pour clore les pores.
2. le taux maximal de retrait diminue car le nombre de pores, plus gros que la taille critique (nécessaire à la fermeture des pores), est moins élevé dans les échantillons plus denses (Kingery et François [KIN76]). Les corps crus les plus denses contiennent des pores dont la taille n'excède pas la taille critique.
3. la température de la vitesse de retrait maximal est plus faible car le nombre de coordination des pores, des corps densifiant le mieux, est plus petit que la valeur critique nécessaire à la disparition de ces pores (Lange).

#### 2.3.1.4. Frittage de composites

Dans l'article de [BOU01], les auteurs étudient le frittage de mélange de poudres. Bien que cet article n'ait pas de rapport direct avec le sujet de l'étude présentée ici, il offre un modèle permettant de simuler le frittage avec une phase liquide. Or dans le cas des poudres d'alumine, la présence de silice conduit également à un frittage avec une phase liquide et son influence est connue [BRY01]. Cet article permet donc une meilleure compréhension de cette influence.

Expérience : une poudre composite, constituée d'une phase réfractaire dure (WC ou W) enrobée dans une phase matricielle métallique ductile (Co ou Cu). Le frittage est alors un frittage par voie liquide.

Résultats : la densification a lieu, en partie, lors du chauffage (dans l'état solide) : plus la taille des particules diminue, plus le taux de densification augmente. La phase liante peut se répandre dans les tunnels poreux les plus fins.

- Dans le cas du WCu, cette propagation de la phase liante laisse place à de grands pores.

- Dans le cas de WCCo, la création de ces grands pores est limitée par un réarrangement des particules dures, ce qui améliore la densification.

Cependant, la raison pour laquelle la propagation de la phase liante induit, ou non un réarrangement des particules, n'est pas encore claire.

### 2.3.2. Modèles semi-empiriques

Cocks *et al.* [COC01] étudie un modèle constitutif du frittage de poudres.

Le frittage se décompose en 3 étapes:

- Etape 1 : les particules se réarrangent. Si la poudre est lâche, la densification n'opère que pendant le début du frittage.
- Etape 2 : des cous se forment et croissent entre les particules en contact.
- Etape 3 : par la suite, les cous s'étranglent et créés des pores isolés, qui se retirent lorsque la densité totale est atteinte. La croissance des grains devient plus prononcée.

Résultats :

- Pour une densité donnée, le potentiel de frittage est inversement proportionnel à la taille des particules.
- Les modélisations de l'étape 1 sont basées sur une distribution aléatoire de particules sphériques tandis que celles de l'étape 2 sont basées sur une distribution régulière de pores monotallés.
- Dans les matériaux conventionnels, le potentiel de frittage est plus faible que celui prédit par les modèles. En fait, pendant les premières étapes du frittage, les pores, situés au sein d'agglomérats empilés densément, frittent plus rapidement. La disparition de ces pores est donc facilitée. Les pores interagglomérats sont plus grands et peuvent croître plus pendant ces premières étapes, à cause du frittage inhomogène, dû à la distribution en taille des particules, et des variations des cinétiques de diffusion sur les différentes surfaces et aux régions de contact. Le temps nécessaire à l'obtention d'une densification complète équivaut donc à celui nécessaire à l'élimination de ces grands pores : c'est l'étape dominante du frittage.

Dans cet article, plusieurs modélisations du frittage de poudres sont passées en revue.

- Kellet & Lange [KEL89]: leur étude porte sur l'influence de la stabilité des grands pores sur le frittage. Une disposition régulière de grains uniformes autour d'un pore est étudiée. Les auteurs ont démontré qu'un pore ne peut s'éliminer que s'il possède moins de 7 voisins en 2D. Ils prétendent que pour qu'un grand pore

puisse fritter, la croissance des grains doit avoir lieu et le pore ne s'élimine que lorsque le nombre de coordination en 2D décroît jusqu'à 7. Par conséquent, le frittage est contrôlé par la croissance des grains.

- Slamovitch & Lange [SLA92]: des grands pores sont introduits artificiellement dans 2 poudres. L'une a une taille de particules largement plus petite que la taille des pores, tandis que l'autre possède des grains légèrement plus petits que les pores. Les résultats de ce modèle montrent que des matériaux de taille de grains plus fine frittent plus vite, ce qui est contraire à la prédiction du modèle précédent. Cette différence provient des structures irrégulières des grains autour du pore, qui facilitent le réarrangement. Si le matériau peut trouver un mécanisme grâce auquel le retrait s'accompagne d'une diminution nette de l'énergie, alors ce matériau va fritter. Ce phénomène est illustré par le modèle du frittage des larges pores énoncé ci-dessous.

Modèle du frittage des larges pores.

Un corps contient de larges pores plus grands que la taille moyenne de ses grains.

- Cocks & Searle [COC91]: le pore ne peut pas se retirer par un transport diffusionnel direct de matière dans le pore mais par déformation du réseau de grains qui l'entoure.
- Lorsque la diffusion aux joints de grains est le mécanisme prédominant, la structure polycristalline se déforme par le fluage de Coble : le taux de déformation est proportionnel à la force appliquée, elle-même proportionnelle à la taille des grains au carré.
- Déformation : aux alentours du pore, le matériau environnant est constitué de larges grains inélastiques lorsque le pore s'élimine. Il connaît donc une déformation super plastique : les grains restent équiaxes pendant la déformation du matériau, cette dernière opérant par des échanges de grains. Les grains peuvent donc se réarranger ce qui conduit à une valeur constante de la surface totale.
- Le potentiel de frittage  $\Sigma_s$  est déterminé par l'évaluation de la variation de l'énergie libre de Gibbs  $G$  pour une petite variation volumique du pore, lorsque le corps est soumis à une force moyenne de traction  $\Sigma_m$ .  $\Sigma_s$  est donc simplement la valeur  $\Sigma_m$  pour laquelle la variation de  $G$  est nulle.

$$dG = \gamma_s (1 - \cos \theta) dA - \Sigma_m dV \quad (54)$$

Si le pore reste sphérique pendant sa croissance, alors la variation de l'aire est

$$dA = \frac{2dV}{r} \Rightarrow dG = \left[ \frac{2\gamma_s}{r}(1 - \cos \theta) - \Sigma_m \right] dV \quad (55)$$

$dG$  ne peut être négatif que si  $\Sigma_s = \frac{2\gamma_s}{r}(1 - \cos \theta) \leq \Sigma_m$

$\Sigma_s$  ne dépend donc que de la taille des grands pores.

Plus la taille du pore est grande, plus la valeur de  $\Sigma_s$  est faible et plus le taux de frittage est lent. Ce taux est indépendant de la taille des grains et des mécanismes responsables du procédé de densification.

### 2.3.3. Modèles numériques et analytiques [GAS2000]

Le modèle constitutif dans l'article [GAS2000] simule par éléments finis le frittage de corps compacts.

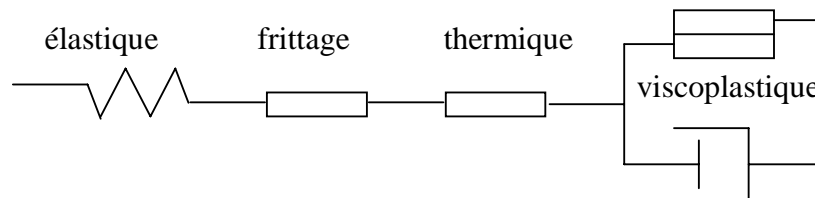
Ce modèle est basé sur la théorie thermique élastoviscoplastique, qui est introduite dans la simulation ABAQUS.

Expérience : des corps crus (diamètre 10mmxhauteur 10mm, 300MPa) sont fabriqués par CIP à partir d'une poudre WC-6%Co. Ils sont ensuite frittés sous flux d'argon, à 1623°K, à une rampe de 5°K/min.

Modèle thermique élastoviscoplastique :

$$d\varepsilon = \{d\varepsilon^E\} + \{d\varepsilon^{V_p}\} + \{d\varepsilon^{\text{sin}}\} + \{d(\alpha T)\} \quad (56)$$

où  $d\varepsilon$  : incrément de la déformation totale,  $d\varepsilon^E$  : incrément de la déformation élastique,  $d\varepsilon^{V_p}$  : incrément de la déformation viscoplastique et  $d\varepsilon^{\text{sin}}$  : incrément de la déformation volumétrique du frittage libre et  $d(\alpha T)$  : incrément de la dilatation thermique.



Conditions initiales et limites :

- La densité initiale relative est 62%
- L'effet de la friction est modélisée par la loi de friction de Coulomb :  $\tau_f = \mu P$  où  $P$  est la pression et  $\mu$ , le coefficient de friction.

- La gravité est ajoutée aux calculs de friction par l'intermédiaire du coefficient isotropique de friction  $\mu=0.2$ .

Résultats :

- L'expansion thermique radiale et axiale domine le chauffage initial entre 600 et 1000°K.
- Lorsque la température augmente, le retrait prédomine largement l'expansion thermique. Le retrait axial est inférieur au retrait radial.
- Le modèle surestime légèrement le retrait axial, ce qui induit un retrait anisotrope. Une meilleure prédiction est obtenue lorsque la distribution réelle des champs de densité verte est connue après le CIP ou le compactage matriciel.
- Les tensions maximales dues aux efforts de traction surviennent au début de l'étape de refroidissement. Les contraintes périphériques élastiques peuvent provoquer des fissures. Les fissures initiales apparaissent préférentiellement le long de la direction radiale.
- Prédiction : les forces maximales surviennent sur les surfaces cylindriques.
- Pendant l'étape de chauffage, une légère expansion due à une expansion interne apparaît.
- La distribution de la température est quasi uniforme grâce à la petite taille des spécimens.

#### 2.3.4. Conclusions

Le frittage se déroule en 3 étapes:

- Étape 1, pendant laquelle les particules se réarrangent
- Étape 2: durant cette étape, la densité varie entre 70 et 92 % et la croissance des grains débute. Des cous se forment et croissent entre les particules en contact.
- Étape 3: À ce stade, les pores cylindriques s'écroulent et deviennent sphériques et proches, et la croissance des grains est nette. L'apparition de pores isolés indique l'étape finale du frittage et une densification lente.

Malheureusement, la plupart des modèles présentés dans cette partie n'évaluent pas l'impact des caractéristiques initiales de la poudre sur la densification lors du frittage.

Les tendances les plus importantes sont les suivantes:

- La taille des particules semble jouer un rôle prépondérant dans la densification lors du frittage de poudre: plus les particules sont fines, plus la frittabilité est améliorée et plus la densité frittée finale sera élevée.

- Le frittage étant contrôlé par des mécanismes diffusionnels, la composition chimique de la poudre devient un paramètre important.
- La distribution en taille des particules et des pores se révèle également très influent sur la densité finale et la microstructure de la pièce frittée, de même que les conditions de compactage appliquées avant le frittage.

Ces modèles issus de la littérature apportent donc également une aide précieuse à la compréhension des mécanismes régissant le frittage de poudres utilisées dans cette étude. Les modèles issus des articles [GER96], [HE2001] et [SHI98] seront notamment utilisés à titre comparatif pour l'étude des paramètres influents sur la densification lors du frittage, dans la suite de ce travail.



### 3. LE RÉSEAU DE NEURONES ARTIFICIEL

Les réseaux de neurones artificiels sont souvent utilisés lorsqu'un phénomène observé est soit trop complexe pour être modéliser par les outils conventionnels, soit non clairement compris.

Dans cette partie seront présentés brièvement les réseaux de neurones artificiels et leur architecture. Quelques exemples issus de la littérature illustreront leur fonctionnement.

#### *3.1. L'inspiration biologique*

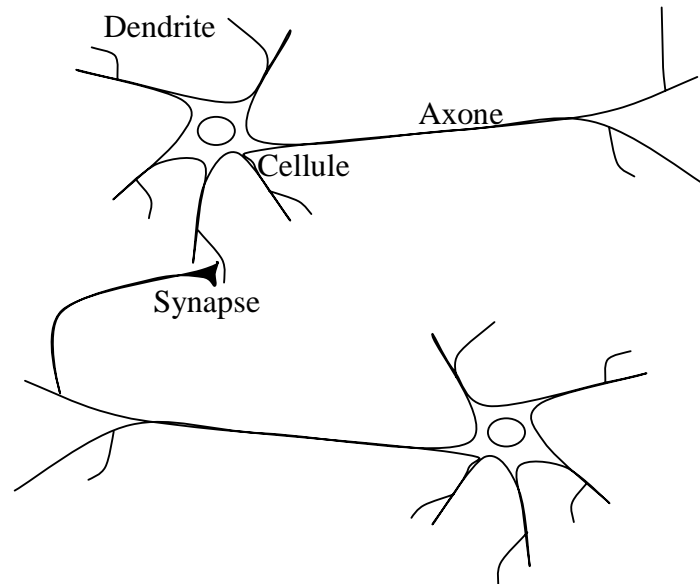
Les réseaux de neurones artificiels présentés s'inspirent leurs homologues biologiques. Dans cette partie, une brève description des caractéristiques du fonctionnement du cerveau est présentée, fonctionnement qui a inspiré le développement des réseaux de neurones artificiels.

Le cerveau est composé d'un grand nombre ( $10^{11}$ ) d'éléments fortement connectés ( $10^4$  connexions par élément), appelés neurones. Ces neurones possèdent 3 composants principaux:

- Les dendrites: ce sont des réseaux réceptifs arborescents de fibres nerveuses qui conduisent les signaux électriques dans la cellule.
- La cellule/ elle somme efficacement les signaux reçus et en fixe le seuil.
- L'axone: c'est une simple fibre longue qui conduit le signal de la cellule aux autres neurones.

Le point de contact entre un axone d'une cellule et une dendrite d'une autre cellule est appelé synapse. C'est l'arrangement des neurones et des forces des synapses individuelles, déterminées par un processus chimique complexe, qui établit la fonction du réseau de neurones.

La Figure 30 est un schéma simplifié de 2 neurones biologiques.



**Figure 30: Schéma simplifié de deux neurones biologiques [HAG96].**

Une partie de la structure neuronale est définie à la naissance. L'autre est développée à travers l'apprentissage, lorsque de nouvelles connections se créent et disparaissent. Ce développement est plus important dans les premières étapes de la vie. Par exemple, il a été démontré que si un jeune chat est privé de l'usage d'un œil pendant une plage temporelle critique, il ne développera plus jamais une vision normale de cet œil.

Les structures neuronales continuent à se modifier tout au long de la vie. Ces derniers changements consistent principalement en un renforcement ou un affaiblissement des jonctions synaptiques. De nos jours, de nouvelles mémoires sont supposées se former par la modification de ces forces synaptiques. Ainsi, le processus d'apprentissage d'un nouveau visage est composé de diverses synapses altérées.

Les réseaux de neurones artificiels ne sont pas aussi complexes que le cerveau. Il existe cependant deux similitudes majeures entre le réseau de neurones biologique et le réseau de neurones artificiel:

1. les blocs de construction des deux réseaux sont de simples mécanismes de calculs fortement interconnectés (même si les réseaux de neurones artificiels sont plus simples que les biologiques).
2. les connections entre les neurones déterminent la fonction du réseau de neurones.

Il est malheureusement à noter que, malgré la lenteur des neurones biologiques (comparativement aux circuits électriques,  $10^{-3}$  s comparé à  $10^{-9}$ s), le cerveau est capable de réaliser de multiples tâches beaucoup plus rapidement que n'importe quel ordinateur

conventionnel. Ceci en partie grâce à la structure massive en parallèle des neurones biologiques, tous ces neurones opérant simultanément.

Les réseaux de neurones artificiels possèdent également cette structure en parallèle. Ce qui leur confère une adaptabilité optimale.

### 3.2. Le modèle neuronal et les architectures de réseaux.

#### 3.2.1. Objectifs

Le modèle simplifié mathématique du neurone est introduit dans cette partie. Il sera expliqué notamment comment les neurones artificiels peuvent être interconnectés pour former une diversité d'architectures de réseaux. De simples exemples serviront à illustrer les opérations de base de ces réseaux de neurones. Les concepts et notations utilisés sont également introduits.

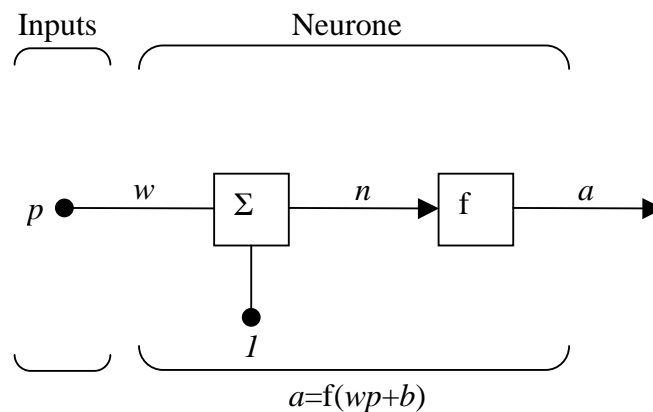
#### 3.2.2. Théorie et exemples

##### 3.2.2.1. Notation

- *Scalaire* : lettres minuscules en italique.
- **Vecteurs**: lettres minuscules en gras
- **MATRICES**: lettres majuscules en gras

##### 3.2.2.2. Modèle du neurone

###### Neurone à entrée simple



**Figure 31: neurone à simple entrée**

Le scalaire d'entrée  $p$  est multiplié par le scalaire poids  $w$  pour former  $wp$ , un des termes de la somme. L'autre entrée,  $1$ , est multipliée par le biais  $b$ , puis introduite dans la somme. La somme de sortie  $n$ , souvent dénommée entrée du réseau, passe dans la fonction de transfert  $f$  qui produit le scalaire de sortie  $a$ .

Si on relie ce simple modèle au neurone biologique, le poids  $w$  correspond à la force de la synapse, la cellule est représentée par la somme et la fonction de transfert, et le neurone de sortie  $a$  correspond au signal de l'axone.

Le neurone de sortie est calculé par l'équation  $a=f(wp+b)$  (57)

Si par exemple,  $w=3$ ,  $p=2$  et  $b=-1.5$ , alors  $a=f(3(2)-1.5)=f(4.5)$ .

La sortie dépend de la fonction de transfert choisie. Le biais est quasi similaire au poids sauf qu'il possède une valeur d'entrée constante égale à 1. il peut cependant être omis selon les conditions choisies par l'utilisateur.

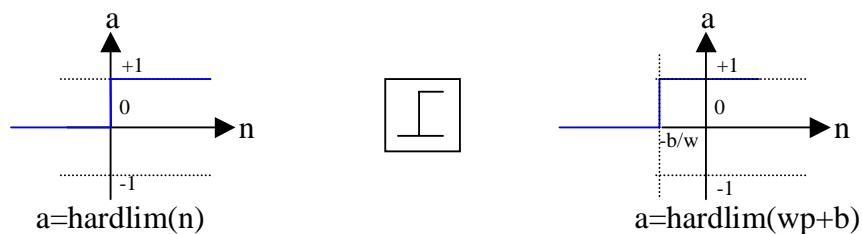
A noter que  $w$  et  $b$  sont tous 2 des paramètres scalaires ajustables du neurone. Typiquement, la fonction de transfert  $f$  est choisie par l'utilisateur et les paramètres  $w$  et  $b$  sont ajustés par des lois d'apprentissage de façon à adapter le neurone entrée/sortie à un but spécifique.

### Fonction de transfert

Cette fonction peut être linéaire ou non. Une fonction particulière est choisie pour satisfaire les spécificités d'un problème que le neurone est appelé à résoudre.

3 des fonctions les plus communes, utilisées par le logiciel mathématique MATLAB, sont présentées.

1. la fonction "hard limit". Elle donne la valeur 0 au neurone de sortie si l'argument de la fonction est négatif, et 1 s'il est positif ou nul, comme l'illustre la Figure 32.



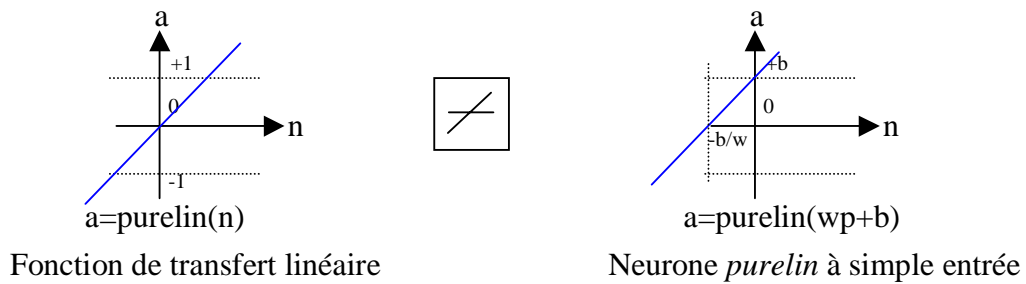
Fonction de transfert "hard limit"

Neurone *hardlim* à simple entrée

**Figure 32: fonction de transfert "hard limit" [HAG96]**

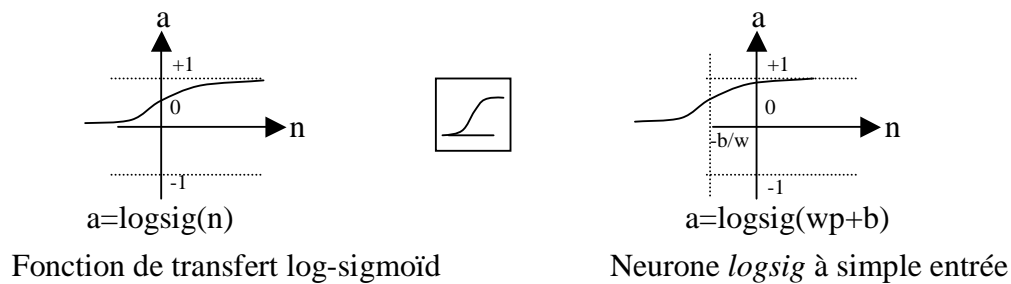
Cette fonction est utilisée pour créer des neurones capables de classifier des entrées en deux catégories distinctes.

2. la fonction linéaire: la valeur de sortie est égale à la valeur d'entrée  $a=n$ , comme l'illustre la Figure 33.



**Figure 33: fonction de transfert linéaire [HAG96]**

3. la fonction log-sigmoïd: elle est communément utilisée dans le réseaux de neurones multicouches éduqués avec un algorithme de rétropropagation.



**Figure 34: fonction de transfert log-sigmoïd [HAG96]**

La valeur d'entrée est comprise entre  $]-\infty; +\infty[$ . La fonction aplatit la valeur de sortie

entre  $[0;1]$  selon l'expression  $a = \frac{1}{1 + e^{-n}}$  (58)

D'autres fonctions existent: elles sont regroupées dans le Tableau 2.

Nom	Relation entrée/sortie	Icône	Fonction MATLAB
Hard limit symétrique	$a = -1 \quad n < 0$ $a = +1 \quad n \geq 0$		Hardlim
Linéaire saturée	$a = 0 \quad n < 0$ $a = n \quad 0 \leq n \leq 1$ $a = 1 \quad n > 1$		Satlin
Linéaire saturée symétrique	$a = -1 \quad n < -1$ $a = n \quad -1 \leq n \leq 1$ $a = 1 \quad n > 1$		Satlins
Tangente sigmoïd hyperbolique	$a = \frac{e^n - e^{-n}}{e^n + e^{-n}}$		Tansig
Linéaire positive	$a = 0 \quad n < 0$ $a = n \quad n \geq 0$		Poslin

Compétitive	a=1 neurone avec max n a=0 tous les autres neurones	C	Compet
-------------	--	---	--------

Tableau 2: fonctions de transfert [HAG96]

Neurone à entrées multiples

Typiquement, un neurone possède plus d'une entrée, comme le montre la **Figure 35**.

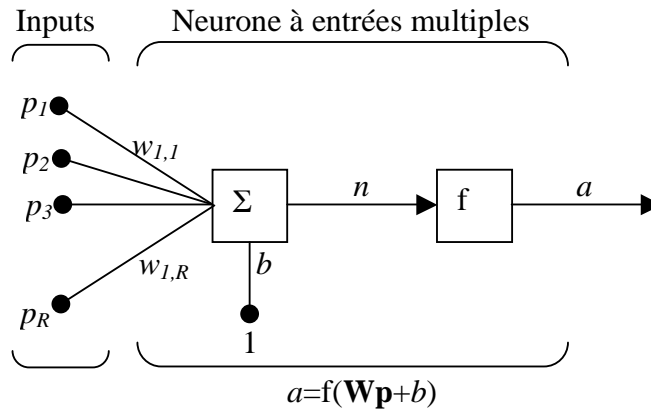


Figure 35: neurone à entrées multiples [HAG96]

Les entrées individuelles  $p_1, p_2, \dots, p_R$  sont pondérées par les éléments  $w_{1,1}, w_{1,2}, \dots, w_{1,R}$  de la matrice  $\mathbf{W}$ .

Le neurone possède un biais  $b$ , sommé avec les entrées pondérées pour former l'entrée  $n$  du réseau:  $n = w_{1,1}p_1 + w_{1,2}p_2 + \dots + w_{1,R}p_R + b$  (59)

L'équation (59) peut être formulée sous forme matricielle:  $n=\mathbf{Wp}+b$  (60).

3.2.2.3. Les architectures de neurones

De manière générale, un neurone, même avec de nombreuses entrées, n'est pas suffisant. Il en faut plusieurs, opérant en parallèle, dans ce qui sera appelé une "couche".

Une couche de neurones

Un réseau à couche simple de  $S$  neurones est présenté sur la Figure 36.

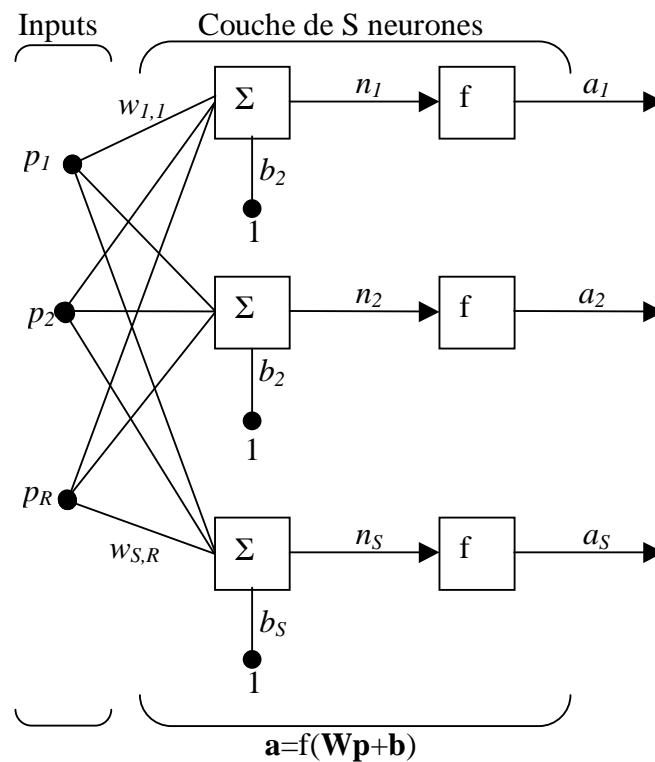


Figure 36: couche de  $S$  neurones [HAG96]

Un réseau de neurones peut posséder plusieurs couches. Une couche dont la sortie correspond à la sortie du réseau est appelée couche de sortie. Les autres couches sont appelées couches cachées.

Les réseaux multicouches sont plus puissants que les réseaux à simple couche. Par exemple, un réseau à 2 couches avec une couche 1 sigmoïde et une couche 2 linéaire peut être éduqué pour approximer convenablement la plupart des fonctions. Un réseau à simple couche ne le peut pas.

Dans la pratique, la plupart des réseaux ne possèdent que 2 ou 3 couches.

Une fois créé, le réseau de neurones est utilisé selon le protocole suivant:

1. Initialisation des poids et des biais
2. Apprentissage avec une base de données connues
3. Simulation avec des nouvelles données.

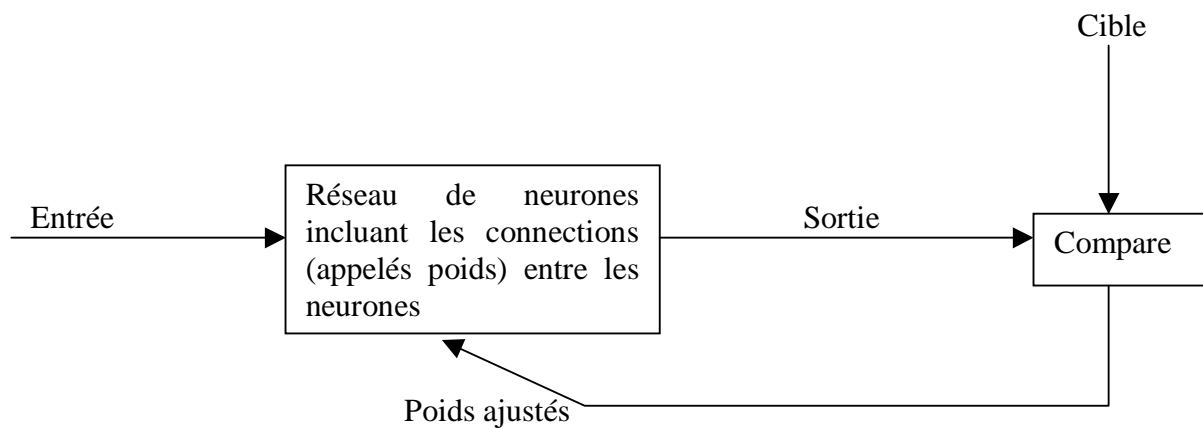
### 3.3. Apprentissage du réseau de neurones

Dans le cas de réseaux de neurones à couches multiples et fonctions de transfert non linéaires, l'apprentissage doit s'effectuer par un algorithme de rétropropagation.

De manière générale, les réseaux de neurones éduqué par rétropropagation sont utiles pour:

- La reconnaissance de "motifs": la valeur d'entrée est associée à une valeur de sortie spécifique
- La classification de "motifs": elle permet le tri des valeurs d'entrées en différentes catégories
- L'approximation de fonction (régression non linéaire).

Une fois l'architecture du réseau définie (nombre de couches, de neurones par couche, de leur interconnectivité), le réseau passe par une phase d'apprentissage. Pour cela, il utilise un algorithme de rétropropagation et un nombre suffisamment conséquent de paires entrée/cible. Son fonctionnement, présenté sur le schéma ci-dessous, est simple : à chaque nouvelle entrée, le réseau modifie les poids et les biais de façon à ajuster toutes les sorties (valeurs calculées) aux cibles (valeurs données) et à minimiser les écarts quadratiques entre ces valeurs de sortie simulées et ces valeurs cibles.



**Schéma 2: apprentissage par un algorithme de rétropropagation.**

Une fois l'apprentissage terminé, le réseau de neurones est utilisé avec de nouvelles données. Il est à noter qu'un réseau en parfaite adéquation avec l'ensemble des données d'apprentissage risque d'être moins performant lors de la généralisation des prédictions: le réseau est alors dit instable.

### *3.4. Utilisation de l'approche neuronale pour les problématiques de cette étude*

Dans le travail présenté ici, les problématiques sont basées sur le même principe: évaluer un paramètre en fonction de paramètres d'entrée, ce qui revient à essayer d'approximer une fonction à partir de différents facteurs.

L'un des objectifs premiers de cette approche neuronale est l'utilisation d'un nombre minimal de neurones d'entrée, pour prédire correctement les problématiques de cette étude. Les prédictions par l'approche neuronale doivent pouvoir être généralisées.



### 3.4.1. Choix des neurones d'entrée

Le chapitre précédent a permis, grâce à l'étude des modèles de la littérature, de dégager les caractéristiques des poudres les plus importantes, influant leur densification lors de leur empilement, leur compactage et leur frittage, et notamment pour des poudres d'alumine granulée et de fer, plus spécifiquement étudiées ici.

Ceci facilite le choix des caractéristiques des poudres, utilisées comme valeurs d'entrée pour le réseau de neurones artificiels présenté dans ce travail. De plus, ces neurones d'entrée sont choisis selon leur facilité d'évaluation: ainsi, les valeurs correspondant à ces facteurs seront facilement accessibles par une simple caractérisation de la poudre étudiée.

- facteurs les plus influents sur la densification lors de l'empilement : la distribution en taille des particules semble jouer un rôle prépondérant sur la densité d'empilement, que ce soit pour la poudre d'alumine granulée ou pour la poudre de fer. Pour la poudre céramique, la méthode d'élaboration de la poudre est également importante. Il est à noter que certains des paramètres, jugés influents sur la densité d'empilement, ne sont pourtant pas utilisés dans l'approche neuronale, de façon à minimiser les neurones d'entrée. C'est le cas, par exemple, de la sphéricité des particules, notamment plus difficile à évaluer que la distribution en taille des particules.
- facteurs les plus influents sur la densification lors du compactage : de nouveau, la distribution en taille des particules de la poudre semble active. Pour les poudres céramiques, la méthode d'élaboration de la poudre est prise en compte. Pour les poudres métalliques, la composition chimique s'avère également importante : ainsi, le pourcentage d'équivalent-carbone est utilisé pour essayer de prendre en compte son influence sur la déformation plastique de ce type de poudres.
- facteurs les plus influents sur la densification lors du frittage : la distribution en taille des particules semble toujours jouer un rôle prépondérant. Pour les poudres céramiques, la densité crue et la concentration en silice seront également pris en compte, vue leur influence probable sur la densité frittée. Pour les poudres métalliques, la composition chimique est de nouveau prise en compte.

Une fois les neurones d'entrée choisis, la configuration de l'architecture du réseau doit être optimisée pour chaque problématique.

### 3.4.2. Optimisation de la configuration du réseau de neurones artificiel

Cette optimisation est propre à chaque nouveau réseau de neurones artificiel, appliqué à une problématique spécifique. Cependant, une partie de la configuration optimale de ce réseau est commune à toutes ces problématiques: cette partie est décrite dans ce paragraphe.

La configuration du réseau de neurones est perfectionnée grâce à la phase d'apprentissage: les paramètres de fonctionnement sont déterminés de façon à obtenir une bonne adéquation entre les valeurs simulées et les données d'apprentissage, combinée à une généralisation correcte de ces simulations.

#### 3.4.2.1. Choix du nombre de couches cachées

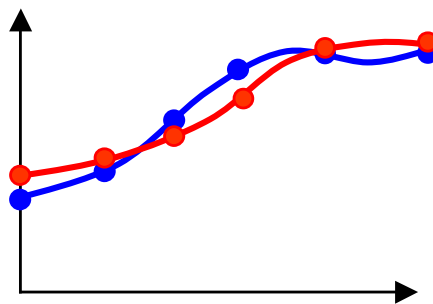
Quelle que soit la problématique étudiée, utiliser une couche cachée unique a permis d'obtenir les configurations des réseaux de neurones les meilleures.

#### 3.4.2.2. Choix du nombre de neurones dans la couche cachée

Le choix de ce nombre est très important. Un graphe simple permet de mieux visualiser son impact. Les points bleus correspondent aux valeurs réelles tandis que les points rouges représentent les valeurs simulées par le réseau de neurones.

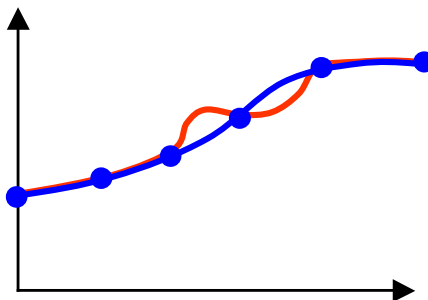
Deux cas extrêmes peuvent se présenter:

- Le nombre de neurones dans la couche cachée est insuffisant.



Comme le montre le graphe ci-dessus, le réseau de neurones n'est pas correctement adapté à la problématique, les valeurs réelles (bleues) et simulées (rouges) ne coïncidant pas les unes avec les autres.

- Le nombre de neurones dans la couche cachée est trop élevé.



Comme le montre le graphe ci-dessus, les prédictions de la problématique par le réseau de neurones sont correctes, mais ne peuvent être généralisées: entre chaque valeur prédite, le signal de prédiction du réseau (rouge) est perturbé et l'interpolation reste impossible.

Pour chacune des problématiques étudiée, le nombre optimal de neurones dans cette couche cachée s'est avéré être le double de celui contenu dans la couche d'entrée.

#### 3.4.2.3. Choix de la fonction de transfert

Les réseaux de neurones les plus adaptés à notre étude ont l'architecture suivante:

- La fonction de transfert tangent sigmoïd hyperbolique (=tansig) pour la couche cachée
- La fonction de transfert linéaire (=purelin) pour la couche de sortie.

#### 3.4.2.4. Choix des paramètres d'apprentissage

Ces paramètres sont également importants et ont permis d'affiner la configuration des réseaux de neurones pour obtenir les meilleures prédictions.

- L'indice de performance choisi est "Mean Square Error"
- L'algorithme de rétropropagation est celui de Levenberg-Marquardt, le rapport vitesse d'exécution sur mémoire requise étant le meilleur. La fonction d'apprentissage Matlab de cet algorithme est *trainlm*.
- La fonction d'apprentissage optimale est le "gradient descent with momentum weigth / bias" (dénommée *learngdm* dans Matlab)

L'optimisation de l'apprentissage du réseau de neurones représente un fragile équilibre entre tous ces paramètres, d'où la difficulté pour l'atteindre. Une fois cet apprentissage achevé, le réseau de neurones devient un outil viable et peut être utilisé pour la simulation de nouvelles données.

#### 3.4.3. Échantillonnage de la base de données d'apprentissage

Des ré-échantillonnages des données d'apprentissage est possible. Elles permettent de retirer les données les plus "exotiques", parfois nécessaires à l'apprentissage du NN. Toutefois, ce ré-échantillonnage restreint le domaine d'application du NN éduqué.

Dans notre cas, vu le nombre de neurones utilisés dans la couche d'entrée et la couche cachée, il s'est avéré impossible d'éduquer un NN avec moins de 25 poudres.

Cette restriction limite les possibilités de retrait de poudres lors de l'apprentissage du NN artificiel, et donc les possibilités d'échantillonnage de la base de données réelle.

### 3.5. Exemples de la littérature

Cette approche neuronale devient de plus en plus populaire, surtout dans le milieu industriel. Les exemples de la littérature se multiplient: seuls quelques-uns sont décrits dans cette partie.

Il existe diverses simulations par réseau de neurones artificiels et notamment celle de Pollock & Eldridge [POL2000], permettant de prédire la hauteur équivalente d'un empilement structuré, à partir de 15 caractéristiques de la poudre telles que la fraction de vide, la surface spécifique, les densités de liquide et de vapeur...

Résultats:

- La prédiction de cette hauteur est meilleure que celle traditionnelle du modèle de Rocha-Bravo-Fair, basé sur la théorie de transfert de masse de 2 films.
- Par contre, le réseau de neurones est moins précis quand il s'agit de prédire une hauteur d'un empilement très différent de celui utilisé lors de l'apprentissage. Après une analyse de sensibilité de chaque input du réseau de neurones, seuls les inputs les plus importants sont conservés. On obtient alors un modèle simplifié permettant toujours une bonne prédiction de la hauteur équivalente à une plaque théorique pour un empilement structuré.

Dans l'article [DRN2000], les auteurs s'intéressent à l'utilisation d'un réseau de neurones artificiel pour décrire avec précision les dimensions d'outil de métallurgie des poudres, et plus particulièrement celles d'anneaux frittés autolubrifiants en bronze.

Le vecteur entrée est composé de 7 éléments: les diamètres intérieurs et extérieurs, et la hauteur de la pièce finie, la densité finale du produit, les ajouts d'apprêtage pour la hauteur et les diamètres intérieurs et extérieurs. Un réseau de neurone rétropropagé est choisi avec une seule couche cachée. Le vecteur sortie est constitué des données descriptives des outils comme la broche et la matrice de pressage, et la broche et la matrice d'apprêtage.

Sur les 159 données expérimentales disponibles, 120 sont utilisées pour l'apprentissage du réseau et les 39 autres pour l'évaluer (ce sont des données test). Les erreurs moyennes sur les résultats simulés de ces données test sont comparés à ceux obtenus par une méthode statistique conventionnelle. Ces erreurs sont plus faibles dans le cas du réseau de neurones: cette approche permet une définition plus précise des dimensions des outils. Ainsi, la précision dimensionnelle des produits finis répond au cahier des charges sans nécessiter d'opérations de finition préalables.

L'utilisation des réseaux de neurones artificiels peut être appliquée à la description des dimensions des outils utilisés dans la métallurgie des poudres.

Dans l'article [CHE2000], l'approche du réseau de neurones artificiels est utilisée pour la sélection de poudres et des paramètres de procédé pour la fabrication de pièces de métallurgie des poudres.

200 données expérimentales sur des poudres de fer atomisée à l'eau (densité apparente= $2.4\text{g.cm}^{-3}$ , et taille moyenne des particules= $100\mu\text{m}$ ) permettent l'apprentissage du réseau et 250 autres indépendantes évaluent sa performance (données test).

3 entrées sont choisies: la résistance à la rupture, l'élongation et la dureté et 6 sorties: la densité frittée, la pression de compactage, la température et l'atmosphère de frittage, les apports en pourcent de carbone et de cuivre. 2 couches cachées possédant 15 et 19 neurones sont utilisées.

Les résultats expérimentaux et simulés des données test sont en assez bonne adéquation (erreur $<15\%$ ).

Les valeurs de sorties de ce premier réseau de neurones sont ensuite utilisées comme entrées d'un 2<sup>nd</sup> réseau, dont les valeurs de sortie sont les variations dimensionnelles et l'index de coût du produit. Là encore, les résultats expérimentaux et simulés des données test sont en assez bonne adéquation (erreur $<15\%$ ).

Les réseaux de neurones artificiels apparaissent donc performants pour la sélection de poudres et des paramètres de fabrication appliquée à la métallurgie des poudres.

## 4. PARTIE EXPÉRIMENTALE

### 4.1. Choix et caractérisation des poudres

Cette étude s'est portée sur deux types de poudres :

- Une poudre céramique d'alumine granulée
- Une poudre métallique de fer pur et peu allié.

Ce choix a notamment été conditionné par la diversité de ces poudres disponible sur le marché.

#### 4.1.1. Alumine

31 poudres d'alumine commerciales provenant de différents fournisseurs (Alcoa, Martinswerk, Showa, VAW, Reynolds, Sumitomo et Baïkowski) sont utilisées pour cette étude. Elles sont fabriquées selon 2 procédés différents : la méthode Bayer et la méthode par voie chimique (précipitation).

Méthode Bayer: ce procédé industriel de production de l'alumine est présenté sur la Figure 1.

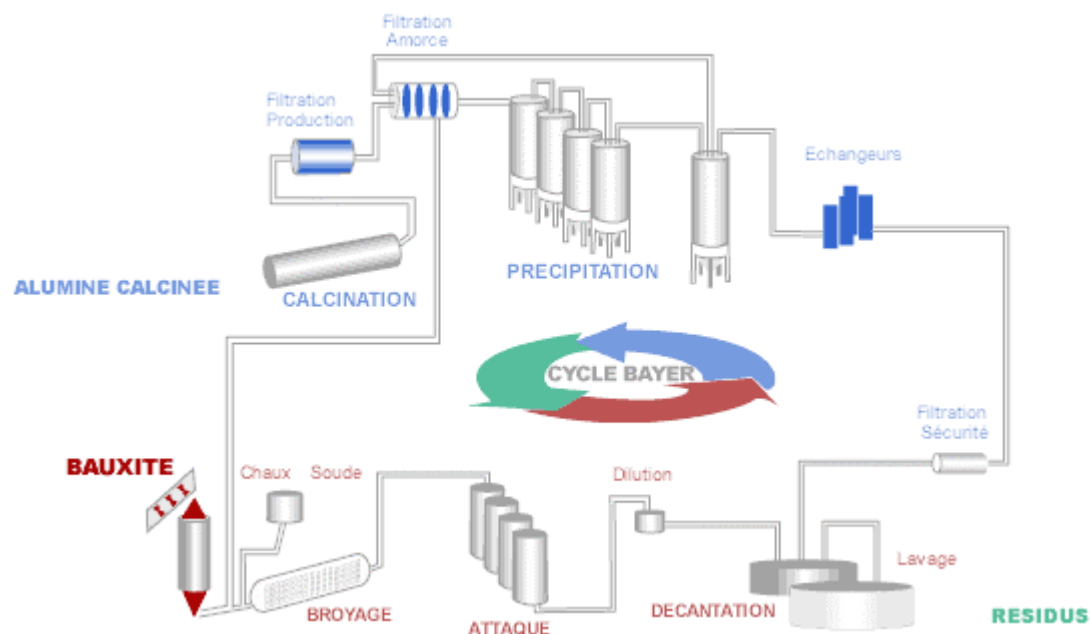
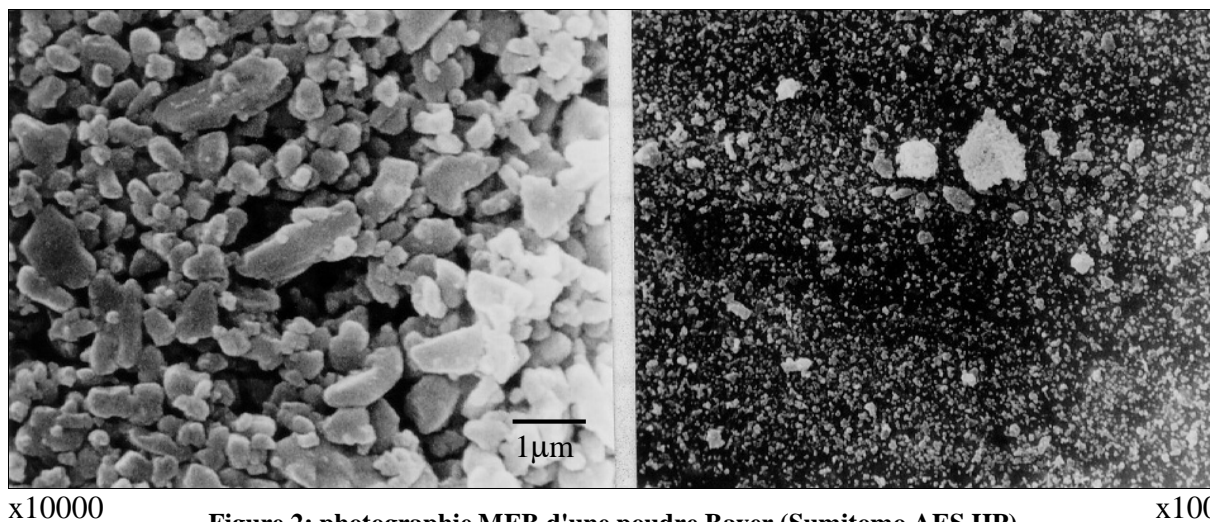


Figure 1: cycle Bayer de production industrielle de l'alumine.

La matière première, la bauxite, est dissoute dans NaOH à température (125-275°C) et pression élevées. Les impuretés insolubles sont filtrées et la gibbsite ( $\text{Al}(\text{OH})_3$ ) est précipitée par ensemencement et diminution de la température. Le filtrat est lavé et filtré, puis calciné pour produire l'alumine. Les poudres de type Bayer présentent des particules micrométriques très denses, avec relativement peu d'agglomérats (cf.: Figure 2).

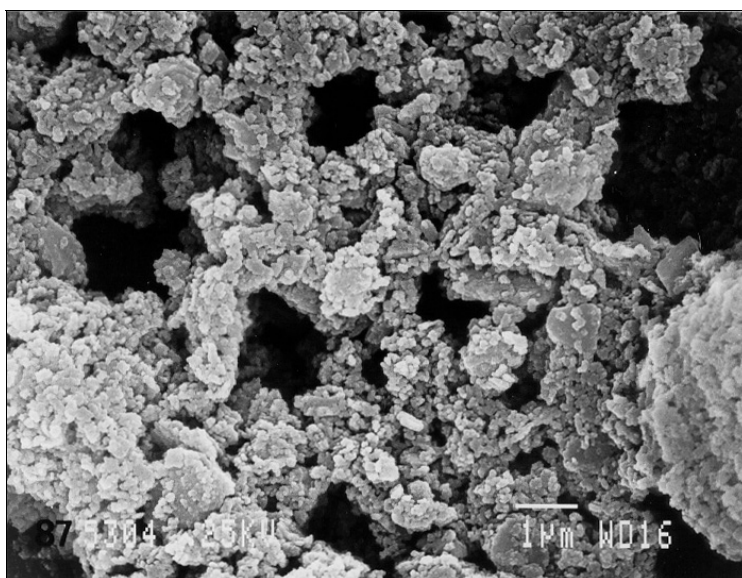


x10000

**Figure 2: photographie MEB d'une poudre Bayer (Sumitomo AES HP)**

x100

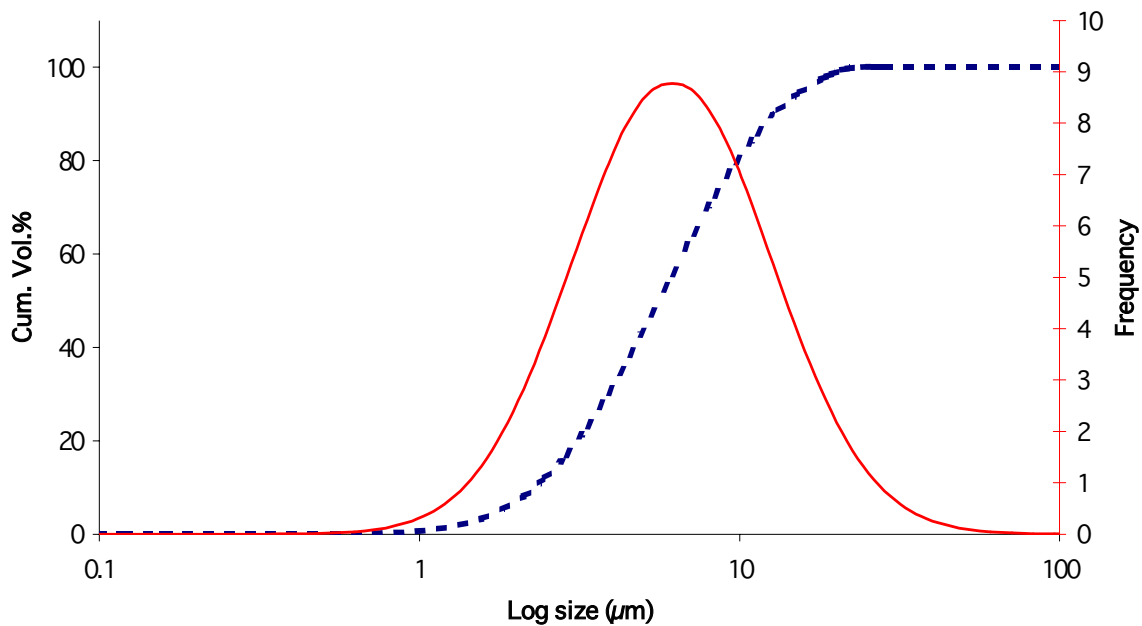
Méthode chimique: elle permet l'obtention d'alumine de grande pureté, grâce à des précipitations, des lavages et séparations supplémentaires (ou différentes). Une des méthodes les plus classiques est la dissolution de la bauxite dans l'acide sulfurique et la cristallisation de l'alun d'ammonium ( $\text{NH}_4\text{Al}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$ ) par réaction avec l'ammoniaque. L'alun est ensuite décomposé thermiquement (environ  $1000^\circ\text{C}$ ) pour produire la phase gamma de surface spécifique BET  $100\text{m}^2/\text{g}$  (ou la phase alpha de surface spécifique BET  $10\text{-}30\text{m}^2/\text{g}$  si la température est encore plus élevée). La poudre obtenue est souvent constituée de particules poreuses fortement agglomérées (cf.: Figure 3).

**Figure 3: photographie MEB d'une poudre précipitée (Alumalux 49SG/  $20\text{m}^2$ )**

Les poudres élaborées par voie chimique (poudres dites précipitées, cf.: Figure 3) sont constituées de particules primaires nettement plus petites que le micromètre mais fortement agglomérées (agglomérats dont la taille moyenne est  $1\mu\text{m} < d_{50} < 5\mu\text{m}$ ).

Leur caractérisation a permis de recueillir les informations suivantes :

- Les tailles des particules  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$  (obtenues par la courbe de la distribution en taille des particules mesurée par un Malvern Mastersizer avant la désagglomération par broyage), correspondant respectivement à la taille des particules pour 90%, 50% et 10% de la courbe cumulative en volume (courbe pointillée de la Figure 4).



**Figure 4: Courbe de distribution en taille des particules mesurée au Malvern Mastersizer**

- la surface spécifique BET déterminée par adsorption de  $N_2$  (Accupyc)
- la composition chimique (et notamment la quantité de silice, phase vitreuse très importante dans la densification lors du frittage).

Des photos obtenues par microscope électronique à balayage (MEB) permettent de mettre en évidence les différences de morphologie de ces poudres selon leur méthode d'élaboration. Ces données correspondent aux caractéristiques choisies pour l'approche par réseau de neurones artificiel, déterminées à partir des modèles de la littérature.

Pour leur préparation, les poudres sont broyées par voie humide pendant 5 heures, dans un moulin à billes avec adjonction de 0.05% poids de MgO et de divers additifs du commerce (Zusoplast, Optapix, Dolapix). Après un séchage par atomisation (Niro Spray Dryer), les poudres sont pressées isostatiquement à 100MPa, sous forme cylindrique de 2cm de diamètre et de 10cm de hauteur. Les mesures de densité crue sont réalisées à partir de la masse et des dimensions géométriques des échantillons.



Les mesures de densité frittée sont effectuées sur ces corps crus après un traitement thermique, d'1 heure à 1500°C dans l'air (la température de traitement est atteinte avec une vitesse de chauffage de 1°C/min).

Le tableau ci-dessous récapitule le domaine couvert par les caractéristiques des 31 poudres d'alumine commerciales (la totalité de ces caractéristiques est fournie en annexe).

	$d_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	BET ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Log[SiO <sub>2</sub> ] (log(ppm))	Densité verte ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Densité frittée ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
<i>Poudres Bayer</i>	0.96- 18.9	0.4-12.5	0.2-3.9	1.4-21.1	2-4.643	2.14-2.61	2.44-3.84
<i>Poudres précipitées</i>	0.6 -14.4	0.25-6.8	0.15-1.3	6.5-26	1.613-2.963	1.41-2.26	2.47-3.86

**Tableau 1: gamme des caractéristiques des 31 poudres d'alumine.**

Ces caractéristiques étant utilisées pour l'apprentissage du réseau de neurones, elles délimitent le domaine de validité de ce réseau, hors duquel ce dernier devient instable.

Sur ces 31 poudres, 3 sont désignées aléatoirement comme poudres-test pour l'évaluation de la performance du réseau de neurones et ne sont donc pas utilisées lors de la phase d'apprentissage: les poudres test 1&3 sont de type Bayer et la poudre test 2 est une poudre précipitée d'alumine. Leurs caractéristiques sont les suivantes :

	$d_{90}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{50}$ ( $\mu\text{m}$ )	$d_{10}$ ( $\mu\text{m}$ )	BET ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Log[SiO <sub>2</sub> ] (log(ppm))	Densité verte ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Densité frittée ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
<i>Test 1</i>	1.8	0.7	0.3	8.9	2.3424	2.33±0.1	3.77±0.1
<i>Test 2</i>	3.7	1.6	0.6	14	2.6902	1.85±0.1	3.65±0.1
<i>Test 3</i>	9.7	3	0.8	1.21	3.0414	2.37±0.1	2.8±0.1

**Tableau 2 : caractéristiques des 3 poudres utilisées comme poudre test.**

#### 4.1.2. Création de poudres artificielles

Le réseau de neurones éduqué est ensuite utilisé comme aide à la compréhension du comportement à la densification des poudres céramiques lors du compactage et du frittage. Il procure, en effet, un outil efficace pour l'évaluation de l'influence de certains paramètres d'entrées sur la valeur sortie densités crue et frittée. L'étude de cette influence nécessite la création de poudres artificielles, basées sur les poudres commerciales réelles. Elle permet la génération de poudres avec une ou deux caractéristiques fixes, les autres restant variables : ce type de poudres, inexistantes dans la base de données commerciales, nécessiterait une fabrication spécifique pas forcément évidente.

Toutes les poudres commerciales utilisées pour l'apprentissage du réseau de neurones possèdent une distribution en taille des particules quasi log-normale. Comme la plupart des modèles existant dans la littérature sont également basés sur des poudres ayant une distribution en taille des particules log-normal, il est apparu plus judicieux de créer des

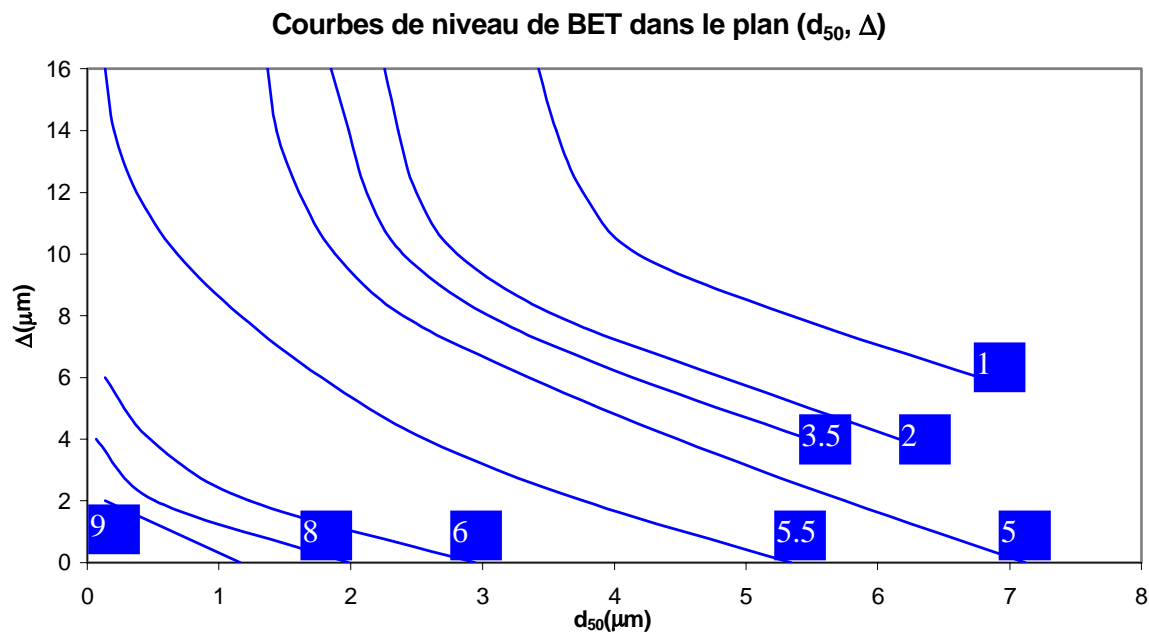
poudres artificielles log-normales. Voici la méthode suivie pour générer ces poudres artificielles.

1. La taille moyenne  $d_{50}$  des particules est fixée :  $d_{50}=0.75, 1.6$  ou  $3.75\mu\text{m}$ .
2. La taille  $d_{90}$  est choisie variable entre  $1.2$  et  $13.70\mu\text{m}$ .
3. La valeur du paramètre  $d_{10}$  est alors déduite de ces 2 tailles  $d_{90}$  et  $d_{50}$  par la relation suivante :  $d_{10} = \exp(2 \ln d_{50} - \ln d_{90})$
4. La concentration en silice est fixée et donnée sous format logarithmique, ce qui évite d'avoir une valeur d'entrée d'un ordre de grandeur trop différent des autres. Sa valeur sera donc :  $\log [\text{SiO}_2]=2, 2.699, 3, 3.699, 4,301$  et  $4.602$  (en  $\log [\text{ppm}]$ ).

Donner une valeur au paramètre BET s'est avéré plus délicat. La relation classique entre BET et  $d_{50}$  ne convient pas aux poudres irrégulières et non monodisperses et donne une valeur moyenne  $d_{90}$  biaisée par rapport à la valeur réelle. Une méthode graphique, développée par Patrice BEAUD [BEA99] a donc été utilisée.

Descriptif de la méthode graphique :

- Traçage des courbes de niveau de surface BET des poudres commerciales sur un papier transparent
- Report de ces courbes dans le plan ( $d_{50}, \Delta = d_{90} - d_{10}$ ) (Figure 5)



**Figure 5: projection des courbes de niveau de la surface spécifique BET (en  $\text{m}^2/\text{g}$ ) pour les poudres Bayer dans le plan ( $d_{50}, \Delta$ ) [BEA98]**

Dans le cas des poudres Bayer, cette méthode est relativement facile à utiliser. Par contre, dans le cas des alumines précipitées, les tendances sont très difficiles à dégager. La valeur

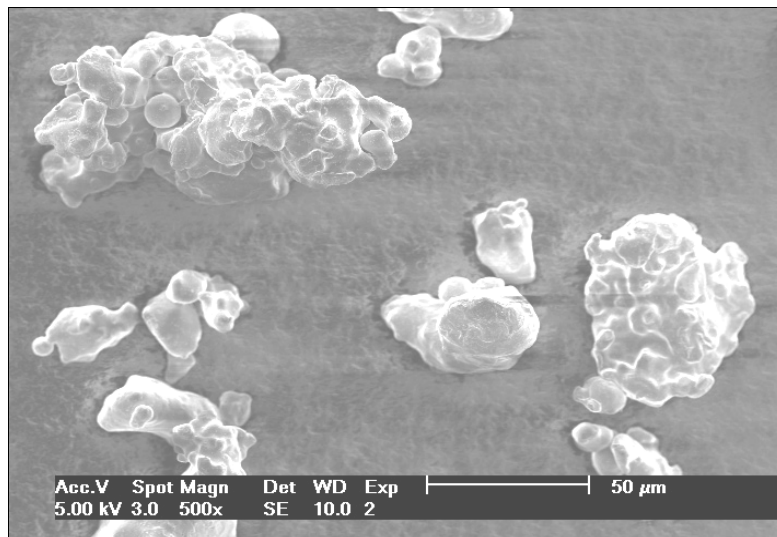
BET de ces poudres est alors choisie constante et égale à la moyenne des valeurs BET des 13 poudres précipitées d'alumines :  $BET=14.1\text{m}^2/\text{g}$ .

L'influence de ce paramètre sur la densification des poudres précipitées lors du compactage et du frittage ne pourra donc évidemment pas être étudiée par le réseau de neurones.

La totalité des caractéristiques des poudres artificielles Bayer et précipitées est regroupée en annexe.

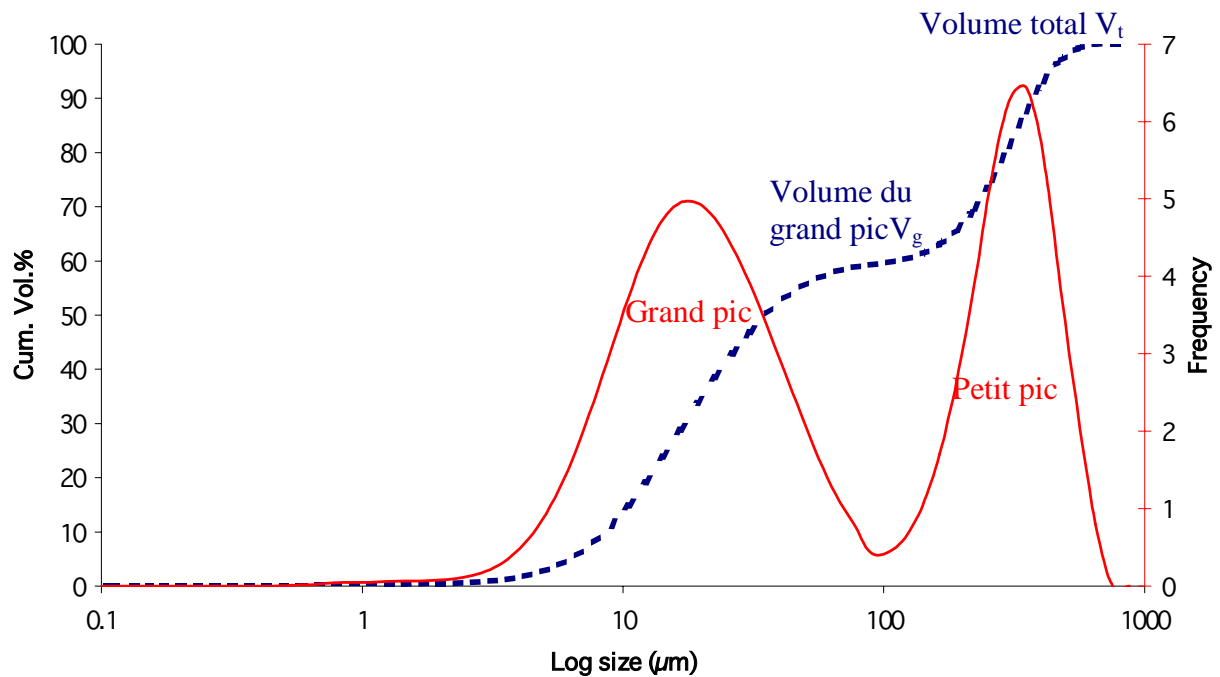
#### 4.1.3. Poudres de fer

40 poudres de fer et d'alliages de fer provenant de divers fournisseurs (OMG, QMP Powders, Fluka, Alfa Aesar) sont également utilisées. Le procédé de fabrication de ces poudres est l'atomisation à l'eau. Cette méthode consiste à soumettre un flux de métal liquide à un jet d'eau permettant un refroidissement rapide des gouttes de métal. La méthode de fabrication étant identique pour toutes les poudres, elles possèdent donc toutes le même type de forme, présenté sur la micrographie MEB Figure 6.



**Figure 6: Micrographie MEB d'une poudre de fer (ATOMET 4401, QMP Powder)**

Leur distribution en taille des particules est soit bimodale, soit monomodale mais dans les deux cas, chaque pic de la distribution est quasi-log-normale (cf.: Figure 7).



**Figure 7 : Allure d'une poudre ayant une distribution en taille bimodale d'une poudre.**

Ces poudres sont caractérisées selon leur distribution en taille :

- mesure des valeurs des tailles moyennes  $d_{50}$  des deux pics
- calcul de la déviation standard géométrique du pic le plus important :  $\sigma_g = \frac{d_{50}}{d_{15.87}}$
- calcul du rapport  $R_v$  des volumes cumulés des deux pics :  $R_v = \frac{V_p}{V_g} = \frac{V_t - V_g}{V_g}$ ,

permettant une évaluation de la fraction volumique des particules du petit pic par rapport à celles du grand pic (cf.: **Figure 7**).

Leur composition chimique est évaluée à travers le pourcentage en équivalent-carbone %CE, selon la formule établie pour les aciers pauvres en carbone [BAR97]

$$\%CE = \%C + \%Si/25 + (\%Mn + \%Cr)/16 + (\%Cr + \%Ni + \%Mo)/20 + \%V/15$$

Ce paramètre peut s'avérer important lors du compactage des poudres de fer, et notamment lors de la déformation plastique de ce type de poudres. Il interfère également fortement dans la dureté de ces métaux.

La mesure des densités vertes est effectuée à partir d'échantillons de 2cm de diamètre et de 1cm environ de hauteur. Ces échantillons sont obtenues par une compaction uniaxiale réalisée à différentes pressions (de 90 à 540Mpa par pas de 50Mpa). Il est à noter que les poudres ont été préalablement mélangées avec du stéarate de zinc (1% poids) pour faciliter le compactage.

Une courbe de densification durant le compactage est ainsi obtenue.

La mesure des densités frittées est réalisée sur ces mêmes échantillons après un traitement thermique de 30min à 1150°C sous atmosphère réductrice de gaz Formier (vitesse de chauffage=4°C/min). Des mesures de la dureté Brinell  $HB_{15,625}$  sont effectuées sur ces corps frittés.

Le tableau ci-dessous récapitule le domaine couvert par les caractéristiques des poudres de fer utilisées (la totalité des caractéristiques des poudres commerciales est fournie en annexe).

Domaine de validité : minima & maxima.

%CE	$d_{50}$ grand pic ( $\mu\text{m}$ )	$d_{50}$ petit pic ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_g$	$R_v$	densité tassée relative (%)	densité cru relative 75kN(%)	densité cru relative 135kN(%)	densité frittée relative 75kN(%)	densité frittée relative 135kN(%)	dureté frittée $HB_{15,625}$ (75kN)	dureté frittée $HB_{15,625}$ (135kN)
0	17,2	7,5	1,34	0,038	35,6	66,4	74,6	67,7	76,0	26,1	37,6
0,258	96,5	457,7	2,36	1	48,3	78,8	86,1	78,8	85,6	78,0	87,0

**Tableau 3 : gamme des caractéristiques des 40 poudres métalliques.**

Là encore, 3 poudres-test sont écartées aléatoirement de l'apprentissage du réseau de neurones et servent à évaluer sa performance.

Le Tableau 4 rassemble les caractéristiques de ces 3 poudres.

Poudres test	%CE	$d_{50}$ grand pic ( $\mu\text{m}$ )	$d_{50}$ petit pic ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_g$	$R_v$	densité tassée relative (%)	densité cru relative 75kN(%)	densité cru relative 135kN(%)	densité frittée relative 75kN(%)	densité frittée relative 135kN(%)	dureté frittée $HB_{15,625}$ (75kN)	dureté frittée $HB_{15,625}$ (135kN)
A	0,017	82,9	82,9	2,23	1	44,7	76,6	85,1	76,5	84,6	26,2	39,6
B	0	39,5	268,7	1,51	0,038	48,3	74,8	84,2	76,3	84,5	27,0	40,0
C	0,258	59,4	59,4	2,08	1	48,2	78,7	85,5	77,7	84,9	53,6	73,4

**Tableau 4 : caractéristiques des 3 poudres utilisées comme poudre test.**

## 4.2. Le réseau de neurones ( $\mathcal{NN}$ )

### 4.2.1. Outil utilisé

Pour construire ce réseau de neurones, le programme commercial, développé par le logiciel Matlab (version 6.5, édité par MathWorks), et appelé « Neural Network Toolbox for the Use of Matlab », est utilisé.

Dans ce paragraphe sont exposées les différentes problématiques soumises à l'approche neuronale artificielle.

### 4.2.2. Les aluminés

#### 4.2.2.1. Simulation de la densité verte

5 neurones d'entrée (=caractéristiques) sont choisis pour cette simulation :

- la méthode de fabrication des poudres (valeurs arbitraires 1 et 10 relatives à, respectivement, la méthode chimique ou la méthode Bayer)
- les 3 valeurs  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$  de la distribution en taille des particules
- la valeur BET de la surface spécifique.

La valeur de la densité verte après compactage est désignée comme la valeur du neurone de sortie.

#### 4.2.2.2. Simulation de la densité frittée

Pour cette prédiction, les 6 neurones choisis pour la couche d'entrée sont :

- Les 3 valeurs  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$  de la distribution en taille
- La valeur BET de la surface spécifique
- Le logarithme de la concentration en silice  $\text{SiO}_2$
- La valeur de la densité verte.

La valeur de la densité frittée est la valeur de sortie.

La méthode de fabrication n'est pas choisie comme neurone de la couche d'entrée puisque ce paramètre est déjà présent via la valeur de la densité verte. Son utilisation aurait donc été redondante dans cette problématique.

### 4.2.3. Les poudres métalliques

#### 4.2.3.1. Simulation de la densité tassée

4 entrées sont utilisées :

- La déviation standard géométrique et la valeur  $d_{50}$  du grand pic de la distribution en taille des particules (cf.:Figure 7).
- Le rapport de volumes cumulés du petit pic sur le grand pic
- La valeur  $d_{50}$  du second pic de la distribution en taille des particules (si la distribution est monomodale, alors cette valeur est identique pour les 2 entrées)

La valeur de la densité tassée est la valeur de sortie.

Pour cette problématique, la composition chimique n'est pas utilisée: elle n'a, en effet, aucun impact sur la densification de la poudre lors de son empilement.

#### 4.2.3.2. Simulation de la densité verte

5 entrées sont utilisées :

- La déviation standard géométrique et la valeur  $d_{50}$  du grand pic de la distribution en taille des particules (cf.:Figure 7).

- La valeur  $d_{50}$  du second pic de la distribution en taille des particules (si la distribution est monomodale, alors les 2 entrées ont une valeur identique)
- Le rapport de volumes cumulés du petit pic sur le grand pic
- La valeur inverse d'équivalent carbone %CE dans la composition de la poudre de fer : 1-%CE, pour refléter l'impact de la déformation plastique des métaux lors du compactage. Cette valeur est choisie préférentiellement à la valeur directe %CE pour éviter des neurones d'entrée nuls dans le cas de poudre de fer pur, qui pourrait perturber l'apprentissage du réseau de neurones artificiel.

La valeur de la porosité verte est la valeur de sortie.

Deux réseaux de neurones artificiels sont créés pour cette simulation:

- Un réseau de neurones pour la prédiction de la densité verte obtenue sous une force de 75kN
- Un réseau de neurones pour la prédiction de la densité verte obtenue sous une force de 135kN

#### 4.2.3.3. Simulation de la dureté Brinell des corps frittés

Les corps frittés obtenues après traitement thermique possèdent tous à peu près la même densité : l'utilisation du NN artificiel s'avère donc impossible pour simuler cette valeur. La mesure de la dureté Brinell de ces corps frittés offre une plus large gamme de valeurs : c'est pourquoi la simulation de cette dureté sera réalisée préférentiellement à la simulation de la densité frittée.

5 entrées sont utilisées :

- La déviation standard géométrique et la valeur  $d_{50}$  du grand pic de la distribution en taille des particules (cf.:Figure 7).
- La valeur  $d_{50}$  du second pic de la distribution en taille des particules (si la distribution est monomodale, alors les 2 entrées ont une valeur identique)
- Le rapport de volumes cumulés du petit pic sur le grand pic
- La valeur inverse d'équivalent carbone %CE dans la composition de la poudre de fer : 1-%CE, pour refléter l'impact de la composition chimique sur la dureté des métaux.

La valeur de la dureté Brinell  $HB_{15,625}$  est la valeur de sortie.

Deux réseaux de neurones artificiels sont créés pour cette simulation:

- Un réseau de neurones pour la prédiction de la dureté Brinell  $HB_{15,625}$  obtenue pour les corps frittés, préalablement compactés sous une force de 75kN

- Un réseau de neurones pour la prédiction de la dureté Brinell  $HB_{15,625}$  obtenue pour les corps frittés, préalablement compactés sous une force de 135kN

#### 4.2.3.4. Simulation de la courbe de densification lors du compactage

Pour une poudre métallique, la courbe de densification lors du compactage est similaire à celle présentée sur les Figure 8 et Figure 9.

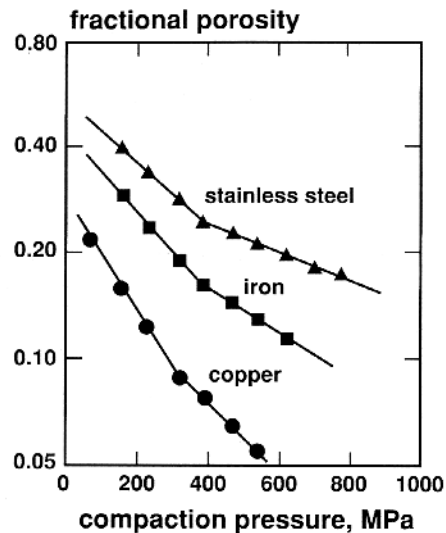


Figure 8 : courbes de densification de poudres métalliques [GER94B]

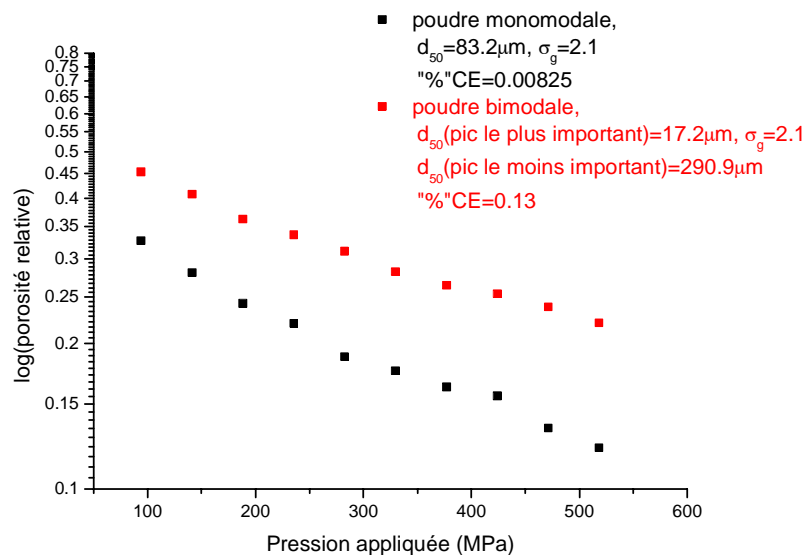


Figure 9 : courbes de densification pour 2 des poudres commerciales utilisées pour l'apprentissage du NN

Pour simuler cette courbe, plusieurs approches ont été réalisées :

- Simulation de la pente et de l'ordonnée à l'origine de chacune des droites (avant et après le point d'inflexion)



- Simulation des coordonnées du point d'inflexion de la courbe combinées à la valeur de la densité crue obtenue en deux points caractéristiques de la poudre (densité obtenue sous 75kN et 135kN).

Pour chacune de ces simulations, 5 entrées sont utilisées :

- La déviation standard géométrique et la valeur  $d_{50}$  du grand pic de la distribution en taille des particules (cf.:Figure 7).
- La valeur  $d_{50}$  du second pic de la distribution en taille des particules (si la distribution est monomodale, alors les 2 entrées ont une valeur identique)
- Le rapport de volumes cumulés du petit pic sur le grand pic
- La valeur inverse d'équivalent carbone %CE dans la composition de la poudre de fer : 1-%CE, pour refléter l'impact de la déformation plastique.

Le détail des paramètres de fonctionnement et des configurations de chaque réseau de neurones ainsi créé est fourni dans la section suivante concernant la validation de la fiabilité du NN. Les procédures expérimentales sont décrites en annexe. Par la suite, l'appellation "meilleur réseau" désignera le réseau de neurones le mieux adapté à la problématique (i.e. le réseau pour lequel les valeurs des poudres test sont les plus proches des valeurs expérimentales et l'apprentissage est correct).

## 5. VALIDATION DE LA FIABILITE DU NN

Utiliser le réseau de neurones pour prédire des densités nécessite une validation préalable de cette approche.

C'est dans ce but que les 3 poudres test sont restées hors apprentissage du réseau.

L'évaluation de la fiabilité du réseau de neurones suit la procédure suivante:

- Dans un premier temps, les paramètres de fonctionnement du réseau sont optimisés de façon à minimiser l'écart quadratique entre les valeurs de sorties et les valeurs cibles. L'apprentissage est estimé correct lorsque cet écart est acceptable.
- Puis le réseau est testé sur les valeurs d'entrées des 3 poudres test afin de tester la fiabilité de l'apprentissage.

Dans cette partie sont présentés les résultats de la simulation des valeurs de sortie pour ces poudres test, ainsi que les paramètres optimaux de fonctionnement du réseau de neurones, utilisé pour chacune des simulations. Les procédures expérimentales permettant l'obtention de ces réseaux de neurones adaptés sont décrites en annexe.

### *5.1. Optimisation des paramètres de fonctionnement des réseaux de neurones.*

Une fois la configuration optimale définie et l'apprentissage effectué, le réseau de neurones est testé sur les poudres test, réservées à cette usage.

Cette procédure est réitérée jusqu'à l'obtention du "meilleur réseau de neurones" pour la problématique étudiée, i.e. le réseau pour lequel les valeurs des simulations des poudres test sont les plus proches des valeurs expérimentales, et l'apprentissage est correct.

Il est à noter que lorsque le réseau devient trop instable (augmentation brutale de l'écart quadratique entre valeurs simulées et valeurs cibles), une ré-initialisation des poids et biais est effectuée. Cette étape est indispensable: si elle n'intervient pas, le réseau sera de plus en plus instable et il sera alors impossible d'obtenir des résultats cohérents.

Ce paragraphe regroupe tous les paramètres de fonctionnement du meilleur réseau obtenu pour chacune des problématiques étudiées.

### *5.2. Les alumines*

Pour ce type de poudres, le paramètre permettant la classification des poudres selon leur méthode de fabrication s'est révélé indispensable (cf.: annexe).

### 5.2.1. Prédiction de la densité verte

La couche cachée du réseau de neurones possède 10 neurones, valeur pour laquelle le réseau s'avère être le plus performant pour cette étude.

La configuration finale du réseau de neurones utilisée pour la prédiction de la densité verte des poudres d'alumine est donc 5-10-1. Elle est schématisée sur la Figure 1.

- Propriétés de la couche 1 (=couche cachée): 10 neurones, fonction de transfert : tansig
- Propriétés de la couche 2 (=couche de sortie): 1 neurone, fonction de transfert : purelin

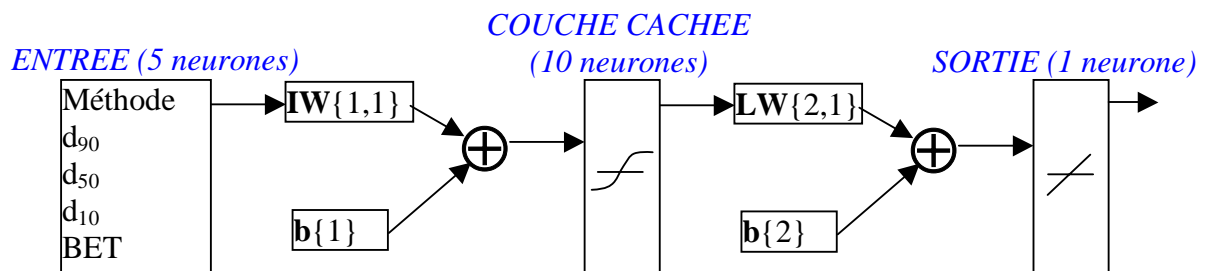


Figure 1: configuration du réseau de neurones utilisé pour prédire la densité crue des poudres d'alumine

Les poids et biais correspondants de cette configuration sont les matrices et vecteurs suivants:

$$\mathbf{IW}\{1,1\} = \begin{pmatrix} -0.10062 & -0.046263 & -1.1295 & 0.11704 & -0.32758 \\ 0.76492 & 0.62479 & 1.1342 & 1.3076 & -0.24098 \\ -0.52304 & -0.50445 & -0.38948 & -0.42351 & -0.4256 \\ 0.10435 & 0.48704 & -0.61366 & 0.32427 & 0.22395 \\ 0.21242 & 0.4224 & 0.18639 & -0.71611 & 0.54753 \\ 0.03519 & 0.28913 & -1.6085 & -0.18166 & -0.017174 \\ 0.61872 & -0.17836 & 0.46908 & -0.055492 & -0.7382 \\ -0.28375 & 0.13763 & -0.15396 & 0.31238 & -0.096029 \\ -0.43448 & 0.28572 & -0.28759 & -0.40275 & -0.039785 \\ 0.29748 & -0.017128 & -0.30643 & 0.97071 & -0.080095 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{LW}\{2,1\} = \begin{pmatrix} -0.74346 & 1.2094 & 0.48485 & -0.22935 & 0.6708 & 0.24555 & 0.49923 & -0.11142 & -0.30291 & -0.4153 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{1\} = \begin{pmatrix} 3.8716 \\ 1.6784 \\ 6.3495 \\ -3.3678 \\ 1.3911 \\ 1.3591 \\ 0.19768 \\ -0.066893 \\ 0.65572 \\ -1.7166 \end{pmatrix}$$

$\mathbf{b}\{2\}=(0.034023)$

La performance obtenue pour l'apprentissage de ce réseau de neurones est  $6,84596.10e-6$ .

Les valeurs de sortie obtenues pour les valeurs cibles sont:

Valeurs cibles Poudres commerciales	Valeurs de sortie simulées	Erreurs absolues
2,35	2.3487	0.0013072
2,5	2.4984	0.0016117
2,41	2.41	5.4373e-006
2,33	2.3289	0.0010735
1,41	1.4092	0.00075278
2,61	2.6081	0.0019167
1,47	1.4707	-0.0007497
2,57	2.5718	-0.0017684
2,5	2.4982	0.0018388
2,33	2.334	-0.0039861
2,39	2.3902	-0.00023081
2,39	2.3906	-0.00056412
2,33	2.3291	0.0008506
2,14	2.1401	-6.6915e-005
2,42	2.4198	0.00020428
2,37	2.3629	0.0071275
2,3	2.3093	-0.0093156
2,26	2.2589	0.001092
1,87	1.8704	-0.00039853
1,84	1.8383	0.0016741
1,99	1.9892	0.00079057
1,85	1.8478	0.0021642
2,2	2.1995	0.00046663
2,18	2.1796	0.00038148
2,02	2.0186	0.001442
2,18	2.1799	0.000123
2,37	2.3719	-0.0018863
1,96	1.9578	0.0021971

L'erreur relative n'excède pas 0.5%. Les écarts quadratiques entre les valeurs simulées et les valeurs cibles s'avèrent donc suffisamment faibles: l'apprentissage est alors jugé correct.

Les simulations de la densité verte des 3 poudres-test d'alumines, présentées dans le tableau ci-dessous, semblent concluantes, les erreurs relatives entre les valeurs expérimentales et simulées étant d'un ordre correct (<8%).

	Densité expérimentale (g/cm <sup>3</sup> )	Densité simulée (g/cm <sup>3</sup> )	Erreur relative entre densité simulée et expérimentale (%)
Poudre test 1	2.33±0.1	2.33	<0.01
Poudre test 2	1.85±0.1	1.99	7.6
Poudre test 3	2.37±0.1	2.50	5.5

Tableau 1: valeurs expérimentales et simulées des densités vertes des poudres-test d'alumines.

Le premier test d'évaluation de la performance du réseau de neurones pour prédire la densité verte de poudre d'alumines semble donc être positif.

### 5.2.2. Prédiction de la densité frittée

La couche cachée utilise 12 neurones et la configuration finale du réseau permettant la prédiction de la densité frittée des alumines est donc 6-12-1.

Elle est schématisée sur la Figure 2.

- Propriétés de la couche 1 (=couche cachée): 12 neurones, fonction de transfert : tansig
- Propriétés de la couche 2 (=couche de sortie): 1 neurone, fonction de transfert : purelin

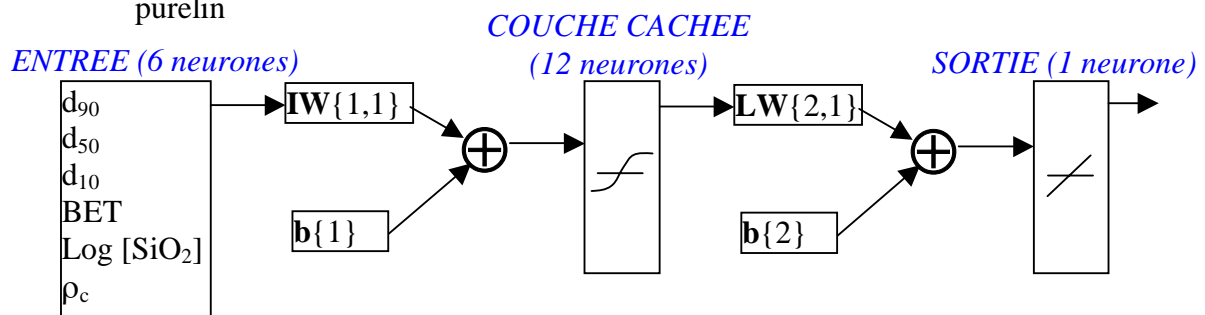


Figure 2: configuration du réseau de neurones utilisé pour prédire la densité frittée des poudres d'alumine

Les poids et biais correspondants à cette configuration sont:

$$\mathbf{IW}\{1,1\} = \begin{pmatrix} -0.21464 & -0.14925 & 0.14921 & -0.11203 & 0.90711 & -0.55184 \\ -0.005968 & -0.34531 & -0.53707 & 0.23471 & -0.15822 & -0.68399 \\ -0.070713 & 0.34142 & 0.71053 & 0.52308 & 0.27374 & 1.7009 \\ -0.11408 & 0.1351 & -0.70416 & 0.0060824 & 0.61696 & 0.39904 \\ 0.29045 & -0.078896 & -0.09185 & 0.46132 & -0.53148 & 0.46428 \\ -0.16348 & -0.27371 & 0.66372 & -0.35462 & -1.0881 & 0.48818 \\ -0.12171 & -0.26076 & -0.26935 & 0.84812 & -0.61857 & -1.7546 \\ 1.0398 & 0.17717 & 0.064515 & -0.688 & 8.3107e-005 & 2.075 \\ 0.64442 & -0.58621 & 0.1743 & -0.35342 & 0.46547 & -1.1924 \\ -0.2404 & -0.31248 & -0.53606 & 0.4644 & -1.2591 & 0.11359 \\ -0.22179 & 0.37301 & 0.60325 & 0.18513 & 1.1811 & -0.075717 \\ 0.19952 & -0.06887 & 0.39142 & -0.032688 & -1.6927 & 1.2069 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{LW}\{2,1\} = \begin{bmatrix} -1.9118 & 0.91196 & -0.18768 & 1.1969 & 1.1847 & 0.27332 & -0.58731 & -0.1512 & -0.57887 & -0.36104 & 0.58855 & 1.2581 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{1\} = \begin{pmatrix} -5.9269 \\ 3.643 \\ -9.5105 \\ -0.70813 \\ 2.7105 \\ -1.1971 \\ 6.9033 \\ -1.0501 \\ 1.0609 \\ 6.0067 \\ -3.192 \\ -0.62719 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{2\} : [0.045229]$$

La performance obtenue pour l'apprentissage de ce réseau de neurones est inférieure à  $10e-6$ .

Les valeurs de sortie obtenues pour les valeurs cibles sont:

Valeurs cibles Poudres commerciales	Valeurs de sortie simulées	Erreurs absolues
2.88	2.8801	0.0001
2.97	2.97	$<10^{-6}$
2.8	2.8	$<10^{-6}$
3.5	3.5	$<10^{-6}$
2.47	2.4701	0.0001
3.22	3.22	$<10^{-6}$
2.66	2.66	$<10^{-6}$
2.97	2.97	$<10^{-6}$
3.24	3.2401	0.0001
3.73	3.73	$<10^{-6}$
3.41	3.41	$<10^{-6}$
3.58	3.58	$<10^{-6}$
3.84	3.84	$<10^{-6}$
3.8	3.8	$<10^{-6}$
2.44	2.44	$<10^{-6}$
3.73	3.73	$<10^{-6}$
3.77	3.77	$<10^{-6}$
3.86	3.86	$<10^{-6}$
3.66	3.66	$<10^{-6}$
3.65	3.6501	0.0001
3.24	3.24	$<10^{-6}$
3.66	3.66	$<10^{-6}$
3.66	3.66	$<10^{-6}$
3.83	3.83	$<10^{-6}$
3.82	3.82	$<10^{-6}$
3.78	3.78	$<10^{-6}$
3.5	3.5	$<10^{-6}$
3.52	3.52	$<10^{-6}$

L'erreur relative n'excède pas  $5.10^{-5}$ . Les écarts quadratiques entre les valeurs simulées et expérimentales de la densité frittée sont donc très faibles: l'apprentissage est alors jugé correct.

Le Tableau 2 rassemble les résultats expérimentaux et simulés de ces densités frittées.

	<i>Densité expérimentale (g/cm<sup>3</sup>)</i>	<i>Densité simulée (g/cm<sup>3</sup>)</i>	<i>Erreur relative entre densité simulée et expérimentale (%)</i>
<i>Poudre Bayer A</i>	3.77±0.1	3.75	0.5
<i>Poudre Bayer B</i>	2.80±0.1	2.85	1.8
<i>Poudre précipitée C</i>	3.65±0.1	3.70	1.4

**Tableau 2: valeurs expérimentales et simulées des densités frittées des poudres-test d'alumines.**

L'erreur relative entre les valeurs expérimentales et simulées est relativement faible (<2%).

Le réseau de neurones, ainsi éduqué, semble adéquat pour prédire la densité frittée des poudres d'alumine.

### *5.3. Les poudres de fer*

Pour ces poudres, la difficulté à obtenir des résultats acceptables a nécessité quelques modifications (cf.: annexe). Entre autres, les densités absolues ont été remplacées par des densités relatives: cela a permis d'avoir des ordres de grandeur entre neurones d'entrée et neurones de sortie plus petits.

Les résultats présentés dans cette partie sont les "moins mauvais" obtenus dans cette étude.

#### **5.3.1. Prédiction de la densité tassée relative**

La configuration optimale du réseau de neurones est 4-8-1.

Elle est schématisée sur la Figure 3.

Propriétés de la couche 1 (=couche cachée):

- 8 neurones
- fonction de transfert : tansig

Propriétés de la couche 2 (=couche de sortie):

- 1 neurone
- fonction de transfert : purelin

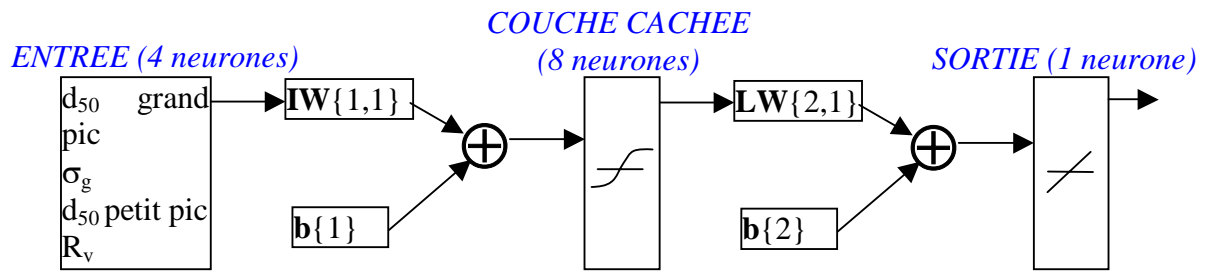


Figure 3: configuration du réseau de neurones utilisé pour prédire la densité tassée relative des poudres métalliques

Les poids et biais de cette configuration sont:

$$\mathbf{IW}\{1,1\} = \begin{pmatrix} 3.4899 & 34.8694 & -1.403 & -125.6903 \\ 2.0734 & -0.83926 & -6.0424 & -3.8154 \\ -5.1995 & -168.9964 & 1.6675 & 16.1156 \\ 0.80003 & -4.0575 & 0.40573 & -2.4051 \\ 8.4052 & 3.5655 & -1.8439 & 0.20638 \\ -2.78 & 11.0785 & 2.4567 & 12.3401 \\ 0.095433 & -7.2208 & 0.035687 & -1.5821 \\ -13.2063 & 1.9469 & 6.9532 & -0.55675 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{LW}\{2,1\} = \begin{bmatrix} -0.64143 & 6.8092 & 1.0028 & 10.5968 & -4.9244 & 7.3805 & 3.1191 & -9.7178 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{1\} = \begin{pmatrix} -120.3073 \\ 0.34738 \\ 26.6542 \\ 2.8033 \\ -6.6548 \\ 15.9736 \\ -0.37044 \\ -3.884 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{2\} : [32.7115]$$

La performance obtenue pour l'apprentissage de ce réseau de neurones est 2.79607.

Les valeurs de sortie obtenues pour les valeurs cibles sont:

Valeurs cibles Poudres commerciales	Valeurs de sortie simulées	Erreurs absolues
37,2	37.5831	-0.36332
43,0	43.8494	-0.81387
44,4	44.4227	0.00042302
41,0	41.8436	-0.8411
43,9	43.9387	-0.0047553
47,6	45.1927	2.4439
45,1	43.9146	1.1756
45,2	45.1927	-0.024933
43,6	45.1927	-1.6285
43,9	43.9126	-0.037163
45,3	45.2666	0.012939



44,8	45.1927	-0.3553
41,2	43.8994	-2.6766
37,1	35.686	1.4449
44,8	43.9098	0.92626
36,1	37.6123	-1.5056
38,1	37.622	0.48215
45,9	45.1927	0.72983
45,9	45.1927	0.73148
42,4	45.1927	-2.7745
48,3	43.7427	4.5073
46,0	45.1927	0.8213
44,4	45.1929	-0.77577
44,6	45.1929	-0.66522
35,6	35.8055	-0.22992
46,3	45.1927	1.0627
41,8	43.9115	-2.0733
42,8	42.7672	-0.00049141
46,0	45.1927	0.77684
45,9	45.193	0.71293
47,9	45.1927	2.74
48,1	45.1927	2.9153
46,0	45.193	0.80576
43,3	45.193	-1.9134
43,6	45.1927	-1.5815
41,2	45.1927	-4.025

Pour certaines poudres, la simulation donne des valeurs trop différentes des valeurs expérimentales. De plus, plusieurs d'entre elles ont une valeur simulée identique, malgré des caractéristiques (valeurs d'entrée) différentes: le réseau de neurones s'apparente plus à un outil de classification plutôt que d'approximation de fonction. Le Tableau 3 rassemble les résultats expérimentaux et simulés des densités tassées des 3 poudres-test de fer.

	<i>Densité expérimentale relative (%)</i>	<i>Densité simulée relative (%)</i>	<i>Erreur relative entre densité simulée et expérimentale (%)</i>
<i>Poudre A</i>	44.4±0.9	41.79	6.2
<i>Poudre B</i>	44.7±0.9	43.91	1.8
<i>Poudre C</i>	48.2±0.9	45.19	6.7

**Tableau 3: valeurs expérimentales et simulées des densités tassées des poudres-test de fer**

L'erreur relative entre les valeurs expérimentales et simulées est relativement coorrecte (<7%), mais vus les écarts quadratiques d'apprentissage entre les valeurs simulées et expérimentales, ce réseau de neurones ne peut pas être qualifié de viable.

L'ordre de grandeur de cette erreur est certainement encore incorrect et par conséquent, le réseau de neurones semble inadéquat pour prédire la densité tassée relative des poudres métalliques utilisées ici.

D'autres configurations ont été tentées mais toutes se sont révélées infructueuses (cf.: annexe).

La variation de l'échantillonnage des poudres commerciales utilisées pour l'apprentissage (suppression de poudres trop « exotiques ») n'a également pas suffi à l'optimisation du réseau de neurones pour cette problématique.

### 5.3.2. Prédiction de la porosité verte relative (compactée sous une force 75kN)

La configuration optimale du réseau de neurones est 5-10-1. Elle est schématisée sur la Figure 4.

Propriétés de la couche 1 (=couche cachée):

- 10 neurones
- fonction de transfert : tansig

Propriétés de la couche 2 (=couche de sortie):

- 1 neurone
- fonction de transfert : purelin

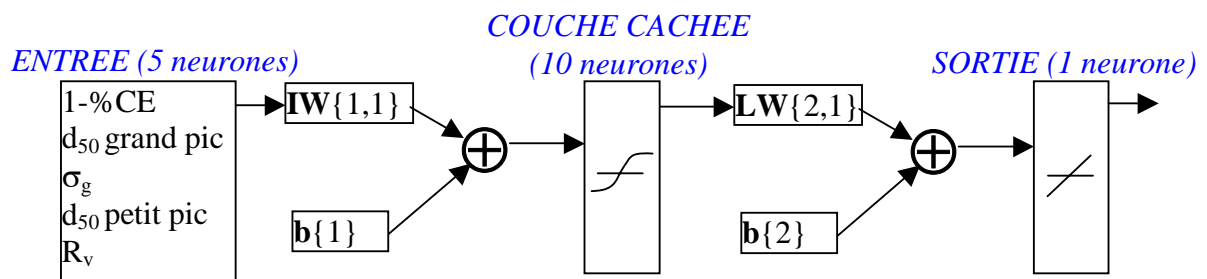


Figure 4: configuration du réseau de neurones utilisé pour prédire la porosité verte relative des poudres métalliques compactées sous une force de 75kN

Les poids et biais de cette configuration sont:

$IW\{1,1\} =$	{	-13.4876	0.11634	-10.2383	0.46438	-5.563
		-5.3659	-1.1579	-0.39435	0.91529	-0.48337
		9.8353	-0.52404	-3.4439	0.1785	-0.38861
		3.0631	-5.5846	2.0538	0.79288	-0.23683
		-35.201	0.45303	-8.7544	-0.18334	9.661
		7.9861	-0.25871	-6.8476	0.040072	20.9904
		3.5828	0.35448	0.46714	-0.57481	-3.3344
		-6.0772	0.9316	-1.7112	-1.2219	1.8947
		9.5049	-1.0549	1.2277	0.56116	0.16816
		7.5124	-0.22068	-1.2345	0.66277	-2.8878

$$\mathbf{LW}\{2,1\} = \begin{pmatrix} 1.222 & -0.6245 & -0.66849 & 1.9624 & 14.0608 & 1.5848 & -2.1896 & -4.5899 & 2.0287 & 3.559 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{1\} = \begin{pmatrix} 1.751 \\ 10.2042 \\ -2.8597 \\ -7.4958 \\ 10.9515 \\ 0.62616 \\ -1.0962 \\ 9.9652 \\ -11.9815 \\ 0.058477 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{b}\{2\} : [29.2381]$$

La performance obtenue pour l'apprentissage de ce réseau de neurones est 0.683928.

Les valeurs de sortie obtenues pour les valeurs cibles sont:

Valeurs cibles Poudres commerciales	Valeurs de sortie simulées	Erreurs absolues
23,6	23.9348	-0.34284
22,9	23.9271	-1.0592
22,0	22.4642	-0.44034
26,1	26.2385	-0.18808
23,0	22.4554	0.57411
22,0	21.9301	0.089049
22,7	22.4571	0.19922
24,6	24.2633	0.3373
<b>23,5</b>	<b>25.5923</b>	<b>-2.1449</b>
28,8	28.7612	-0.0080093
22,8	22.7605	0.36315
23,9	22.7434	1.174
28,2	26.871	1.3374
29,9	29.6949	0.17629
23,3	22.4549	0.83908
<b>33,6</b>	<b>31.0207</b>	<b>2.5811</b>
<b>28,9</b>	<b>31.0152</b>	<b>-2.1653</b>
22,0	22.5654	-0.58255
22,6	22.4795	0.15104
23,2	23.2726	-0.032019
25,2	24.9241	0.25271
24,2	24.6114	-0.46128
24,1	24.2548	-0.13406
28,5	28.4888	0.010907
28,9	29.5328	-0.59224
23,1	22.7305	0.32912
23,3	23.3023	-0.00177
22,7	22.6971	5.0371e-008
23,7	23.3725	0.35829

23,0	23.721	-0.71218
23,2	23.2662	-0.095704
22,9	22.9636	-0.03655
22,0	22.7268	-0.69834
25,2	24.79	0.39638
25,5	25.2282	0.28219
26,2	25.6018	0.56563

De nouveau, certaines poudres ont une porosité simulée trop différente de celle expérimentale. Pour l'apprentissage, une erreur absolue supérieure à 2 n'est en effet pas concevable pour des valeurs de porosités relatives proches de 20% (valeurs notées en rouge). Cet apprentissage ne permet pas une adéquation suffisante entre valeurs simulées et réelles.

Le Tableau 4 rassemble les résultats expérimentaux et simulés des porosités vertes des 3 poudres-test de fer.

	<i>Porosité expérimentale relative (%)</i>	<i>Porosité simulée relative (%)</i>	<i>Erreur relative entre densité simulée et expérimentale (%)</i>
<i>Poudre A</i>	24.5±0.9	22.5	8.9
<i>Poudre B</i>	23.4±0.9	23.9	2.1
<i>Poudre C</i>	21.2±0.9	22.7	7

**Tableau 4: valeurs expérimentales et simulées des porosités vertes des poudres-test de fer après compactage sous 75kN.**

L'erreur relative maximale entre les valeurs expérimentales et simulées est proche de 9%. Mais vu l'écart quadratique de l'apprentissage, le réseau ne peut pas considéré comme viable.

Là encore, le réseau de neurones utilisé montre ses limites et semble inadéquat pour prédire la porosité crue relative de ces poudres, quelque soit la configuration et l'échantillonnage choisis.

### 5.3.3. Prédiction de la porosité verte (compactée sous une force 135kN)

La configuration optimale du réseau de neurones est 5-10-1.

Elle est schématisée sur la Figure 5.

Propriétés de la couche 1 (=couche cachée):

- 10 neurones
- fonction de transfert : tansig

Propriétés de la couche 2 (=couche de sortie):

- 1 neurone
- fonction de transfert : purelin

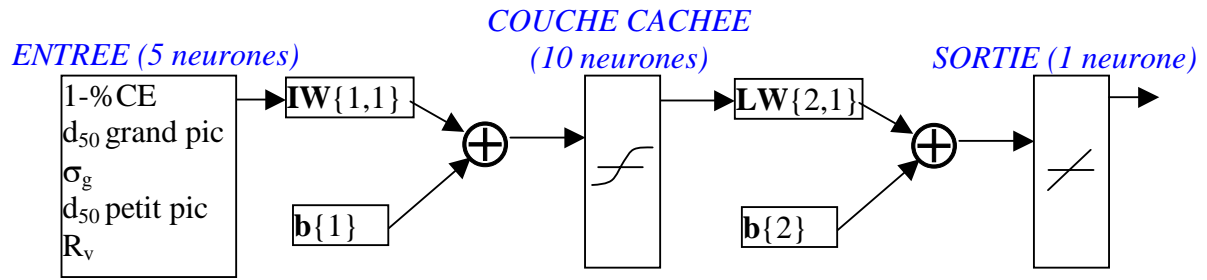


Figure 5: configuration du réseau de neurones utilisé pour prédire la porosité verte relative des poudres métalliques compactées sous une force de 135kN

Les poids et biais de cette configuration sont:

$$\begin{aligned}
 \mathbf{IW}\{1,1\} &= \begin{pmatrix} 86.7456 & -1.0554 & 1.7702 & 0.74774 & -16.7777 \\ 4.3364 & -0.42514 & -2.1982 & -0.0572 & -1.096 \\ -9.8341 & 0.17113 & 0.99828 & 0.56119 & 2.7522 \\ 0.046328 & -0.14266 & -2.3847 & 0.455 & 1.987 \\ 3.7574 & -0.43673 & -6.8875 & 0.018233 & -0.25728 \\ 1.4249 & 0.62424 & -0.031445 & 0.36854 & 4.594 \\ -6.1326 & -0.18801 & 16.046 & -0.51746 & 3.5177 \\ 2.8366 & -0.12675 & -0.9667 & -0.23054 & -3.9869 \\ -2.4722 & 0.19299 & 1.1799 & 0.087083 & -1.6118 \\ -6.85 & -2.2602 & 1.4602 & 1.9218 & 3.4002 \end{pmatrix} \\
 \mathbf{LW}\{2,1\} &= \begin{pmatrix} -2.652 & -3.8056 & 5.4703 & 0.59614 & 3.7294 & 2.7633 & -2.3448 & -5.0148 & -0.55558 & 1.19 \end{pmatrix} \\
 \mathbf{b}\{1\} &= \begin{pmatrix} -30.351 \\ 2.9059 \\ 6.2221 \\ -2.7075 \\ 15.8963 \\ -3.1441 \\ 5.918 \\ 3.5059 \\ -1.1671 \\ 5.954 \end{pmatrix} \\
 \mathbf{b}\{2\} &: [3.695]
 \end{aligned}$$

La performance obtenue pour l'apprentissage de ce réseau de neurones est 1.30496.

Les valeurs de sortie obtenues pour les valeurs cibles sont:

Valeurs cibles Poudres commerciales	Valeurs de sortie simulées	Erreurs absolues
16,6	17.9429	-1.3893
15,1	17.9429	-2.08808
15,6	15.5629	0.006649
18,5	17.9429	0.53282
15,0	15.5629	-0.52551
14,3	14.303	-2.01646e-008
16,8	15.5629	1.2007

16,9	15.5629	1.3117
15,6	15.5629	0.0080539
18,8	18.8368	-2.3903e-007
13,9	15.5629	-1.6579
15,7	15.5629	0.082334
18,2	17.9429	0.22163
21,0	17.9433	3.038
15,0	15.5629	-0.51901
25,4	25.358	0.0039369
20,6	20.61	-0.020939
15,2	15.5629	-0.34189
14,9	15.5629	-0.64184
16,1	16.0898	-3.9677e-007
15,8	17.9573	-2.1508
16,1	15.5629	0.5653
16,2	16.168	1.368e-007
20,9	20.8605	5.1993e-006
20,6	17.967	2.6457
16,6	15.5629	1.0723
22,5	15.7112	2.6435e-006
15,0	14.9851	5.7276e-005
16,2	15.5629	0.6594
14,1	15.5629	-1.4485
15,8	15.5629	0.18351
14,9	15.5629	-0.64409
14,2	15.5629	-1.3961
16,8	15.5629	1.274
15,6	15.5629	0.076412
16,3	15.5629	0.73442

Certaines poudres (dont les valeurs sont notées en rouge) ont une porosité simulée qui ne coïncide pas avec la valeur expérimentale. Cet apprentissage donne une erreur relative, entre valeurs simulées et réelles, parfois proche de 15%! Il n'est pas jugé suffisamment correct pour permettre l'utilisation du réseau de neurones ainsi éduqué.

Le Tableau 5 rassemble les résultats expérimentaux et simulés des porosités vertes des 3 poudres-test de fer.

	<i>Porosité expérimentale relative (%)</i>	<i>Porosité simulée relative (%)</i>	<i>Erreur relative entre densité simulée et expérimentale (%)</i>
<i>Poudre A</i>	16.7±0.9	17.9	7.5
<i>Poudre B</i>	14.9±0.9	15.6	4.3
<i>Poudre C</i>	14.5±0.9	15.6	7.4

**Tableau 5: valeurs expérimentales et simulées des porosités vertes des poudres-test de fer après compactage sous 135kN.**

L'erreur relative entre les valeurs expérimentales et simulées est relativement faible (<7.5%). Son ordre de grandeur pourrait être accepté. Mais aux vues des résultats de l'apprentissage sur les erreurs absolues entre densités simulées et densité réelles de certaines poudres, le réseau de neurones ne peut pas être utilisé pour prédire cette porosité crue relative.

Le réseau de neurones semble donc inadéquat pour prédire la porosité crue relative des poudres métalliques, obtenue après compactage sous une force de 75kN ou de 135kN.

#### **5.3.4. Prédiction de la dureté Brinell des corps frittés**

Aucune des configurations du réseau de neurones, et aucun échantillonnage des poudres commerciales utilisées pour la phase d'apprentissage, n'ont permis son optimisation. L'erreur relative la plus faible obtenue pour les poudres test avoisinait les 20%! Le réseau de neurones s'est donc avéré inutilisable pour la prédiction d'une telle caractéristique à partir des facteurs influents choisis.

#### **5.3.5. Prédiction de la courbe de densification lors du compactage des poudres de fer**

Là encore, aucune des configurations du réseau de neurones, ni aucun échantillonnage n'ont rendu possible son optimisation. Les poudres test ont donné des résultats simulés trop différents de ceux expérimentaux (erreur relative la plus faible > 13%! ). Le réseau de neurones s'est donc avéré, une fois encore, inutilisable pour la prédiction de la courbe de densification lors du compactage des poudres de fer à partir des facteurs influents choisis.

### *5.4. Conclusions*

Les résultats obtenus pour la validation de la fiabilité du réseau de neurones dans la prédiction des densités des poudres d'alumine et de fer sont mitigés:

- Les poudres d'alumine: la prédiction de la densité verte et frittée de ces poudres semble correcte et l'ordre de grandeur de l'erreur relative acceptable. Les paramètres choisis comme facteurs influents (valeurs d'entrée) semblent appropriés et l'optimisation de la phase d'apprentissage du réseau de neurones semble permettre l'obtention un outil relativement fiable pour chacune de ces problématiques.
- Les poudres de fer: le réseau de neurones utilisé montre ses limites sur ce type de poudres. Plusieurs explications peuvent être soumises:
  - Les paramètres choisis comme facteurs influents (valeurs d'entrée) sur la valeur de la caractéristique à prédire (valeur de sortie) sont

insuffisants et/ou inadéquats. Il est à noter que ces paramètres ont des valeurs s'étalant parfois sur 3 ou 4 ordres de grandeur différents. Les valeurs les plus grandes masquent probablement l'effet des plus petites lors de l'utilisation du réseau de neurones artificiel.

- Un échantillonnage sans poudre trop « exotique » est parfois possible, mais la quantité de poudres doit être suffisante pour permettre l'utilisation de réseau de neurones. Cela constitue une limite à cet outil.
- La gamme des valeurs des propriétés physiques choisies (valeurs d'entrée et de sortie) est trop étroite pour le réseau de neurones.
- L'absence de paramètre d'entrée permettant la classification des poudres commerciales (selon la composition chimique ou la distribution monomodale ou bimodale, ou autre) pourrait également être dommageable.

Le réseau de neurones semble finalement être un outil fiable pour certaines problématiques, mais à utiliser avec discernement. Les résultats obtenus sont à analyser et interpréter précautionneusement, et en corrélation avec ceux des modèles issus de la littérature.



## 6. RÉSULTATS & DISCUSSIONS

Dans cette partie, l'influence des paramètres d'entrées sur les valeurs de sortie, obtenues par l'utilisation du réseau de neurones sur les poudres artificielles créées d'alumine, est évaluée et analysée. Pour les poudres de fer, la base de données artificielle n'a pas été utilisée vu les résultats médiocres obtenus par l'outil neuronal pour cette problématique.

### 6.1. Alumines

Grâce aux poudres artificielles d'alumine créées et au réseau de neurones, éduqué pour prédire la densité crue et la densité frittée des poudres d'alumines, l'influence des paramètres tels que la distribution en taille des particules, la surface spécifique BET, sur la densification lors du compactage et du frittage peut être évaluée.

#### 6.1.1. Comparaison des densités simulées par le réseau de neurones et les valeurs de la littérature

Il est à noter que cette comparaison s'effectue sur des densités différentes: les modèles de la littérature simulent la densité d'un empilement tandis que le réseau de neurones prédit la densité verte de poudres. Cette comparaison est pourtant permise aux vues du procédé de fabrication des poudres d'alumine expérimentales: l'explication présentée ci-dessous justifie cette approche.

Les poudres expérimentales sont séchées par atomisation et forment des granules de particules primaires comme illustré sur la **Figure 6**.

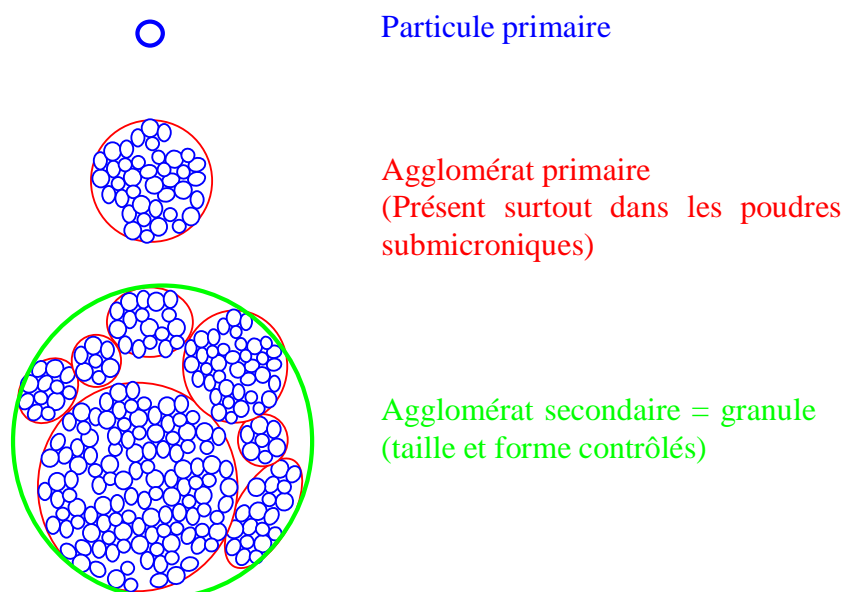


Figure 6: obtention des granules par séchage par atomisation

Durant leur compactage, 3 phases, illustrées sur la Figure 7 et la Figure 8, se succèdent :

- Le réarrangement des granules: cette étape ne dépend que de la distribution en taille et de la forme de granules (la pression appliquée est inférieure à 1MPa). Elle permet de passer d'un état d'empilement non tassé vers un état tassé des granules.
- La déformation plastique des granules: la plus grande partie de la porosité intergranulaire est éliminée. Elle dépend de l'empilement dans les granules (densité de granules), lequel est étroitement lié au facteur d'agglomération et à la distribution en taille des particules primaires dans les granules. La porosité restante est due à la présence de pores entre les granules non parfaitement déformées, ainsi qu'à la dureté des agglomérats après le séchage, entravant leur déformation.
- La densification des granules: le remplissage de la petite porosité intragranulaire a lieu lors de cette étape. La densification est due au réarrangement des particules dans les granules (la pression appliquée est supérieure à 200MPa).

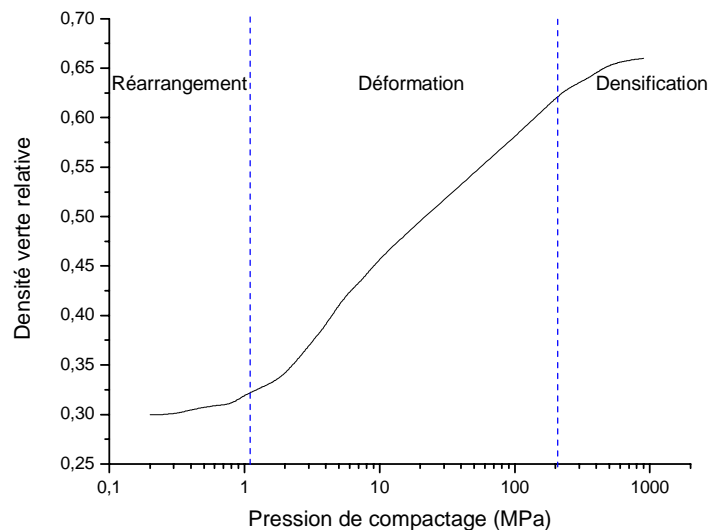


Figure 7: densité relative d'une poudre d'alumine séchée par atomisation en fonction de la pression de compactage appliquée [REE94].

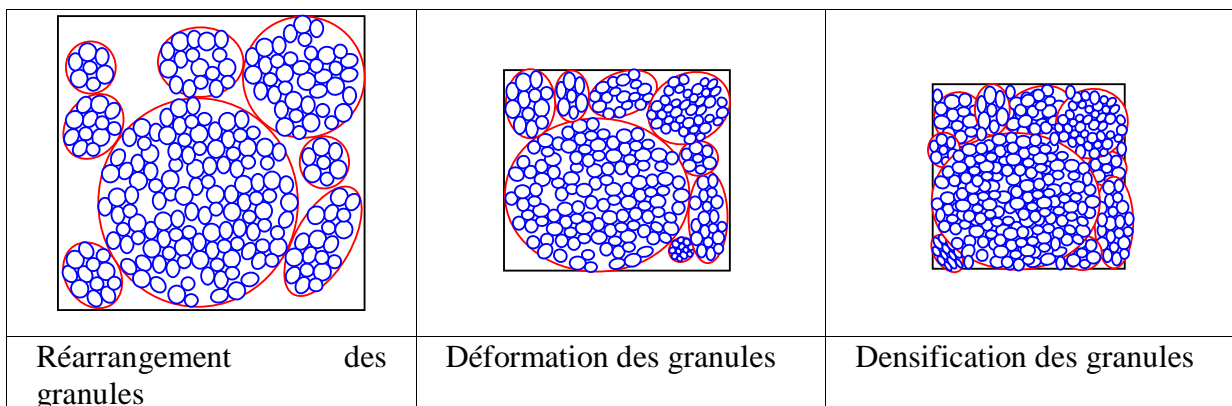


Figure 8: Schémas des 3 étapes de densification lors du compactage d'une poudre granulée [REE94]

La dernière étape, la densification des granules, est rarement atteinte lors de la compaction à sec de particules atomisées, dans des conditions techniques normales (200MPa), utilisées durant la fabrication de céramique [ZHA99]. Dans cette étude, les poudres d'alumine utilisées sont compactées sous une pression de 100MPa, ce qui ne devrait pas permettre à la densification des granules, de se produire.

En ce qui concerne l'étape de déformation des granules, les poudres d'alumine (Bayer et précipitées) suivent la même méthode de préparation, le séchage par atomisation. Ce procédé est supposé permettre l'obtention de granules sans macroporosité interne. La déformation plastique de ces granules ne dépend que des adjuvants (liants et plastifiants) et des paramètres de compactage. Ces paramètres et la quantité d'adjuvants étant constants, la déformation plastique devrait ne dépendre que de l'empilement des particules primaires dans les granules.

Par conséquent, l'hypothèse émise est que la variation de la densité du corps vert des poudres d'alumine granulées dépend fortement de l'empilement dans les granules et des granules : la comparaison de la densité verte prédite par le réseau de neurones avec la densité de l'empilement des modèles de la littérature est donc possible.

### 6.1.2. Facteurs influents sur la densité verte des poudres d'alumine

Le cas des poudres Bayer et celui des poudres précipitées sont traités séparément.

#### 6.1.2.1. *Comportement à la densification verte des poudres artificielles de type Bayer*

3 gammes de poudres artificielles Bayer sont créées: des poudres dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  et des poudres dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , et enfin dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ .

Ces poudres artificielles correspondent aux poudres typiques illustrées sur la Figure 9.

Il est à noter le caractère particulier de chacune de ces gammes:

- Les poudres dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ , sont des poudres relativement agglomérées. Cette agglomération est probablement due à la petite taille de ces poudres.

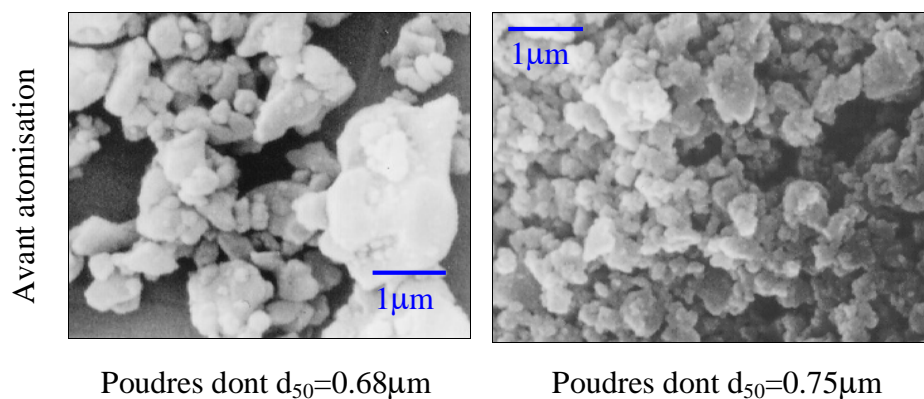
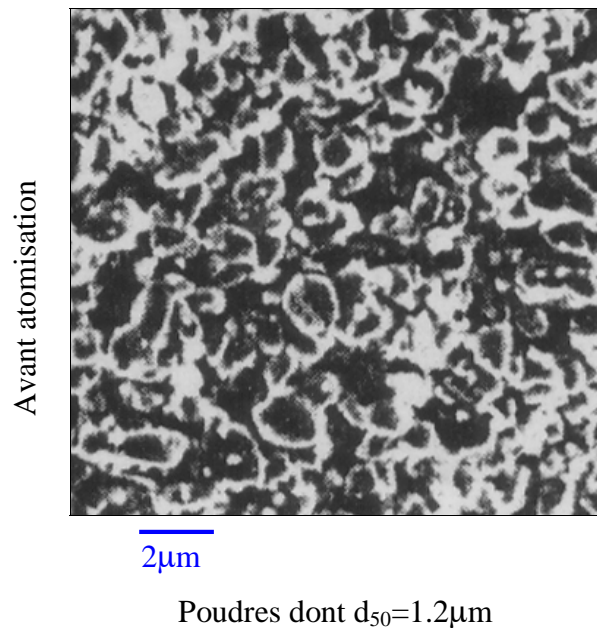


Figure 9: photographies MEB (grandissement: x10000) de poudres commerciales correspondant à la gamme  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  des poudres artificielles Bayer.

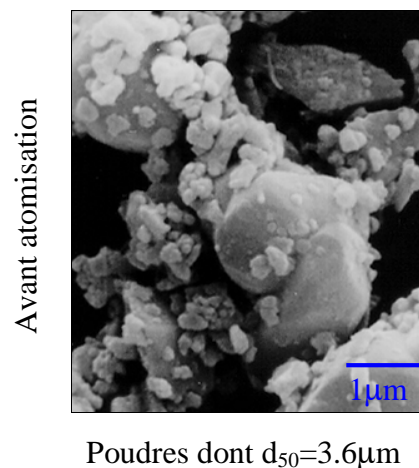
- Les poudres dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , sont quasiment exemptes d'agglomérats et semblent relativement homogènes. Malgré leur forme plutôt arrondies, les particules ne sont pas sphériques: en effet, leur facteur de forme semble toujours supérieur à 1.



**Figure 10: photographie MEB d'une des poudres commerciales à la gamme  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$  des poudres artificielles Bayer.**

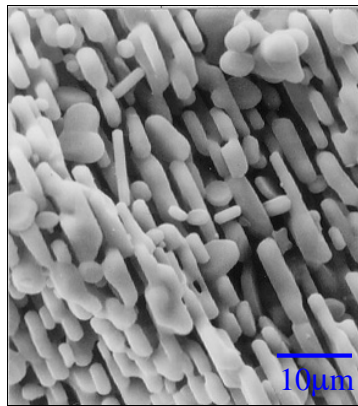
Elles correspondent à la plupart des poudres obtenues par le procédé Bayer.

- Les poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , ont une sphéricité faible. Leur forme est très variable et très anisotrope.



**Figure 11: photographie MEB d'une poudre commerciale correspondant à la gamme  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$  des poudres artificielles Bayer.**

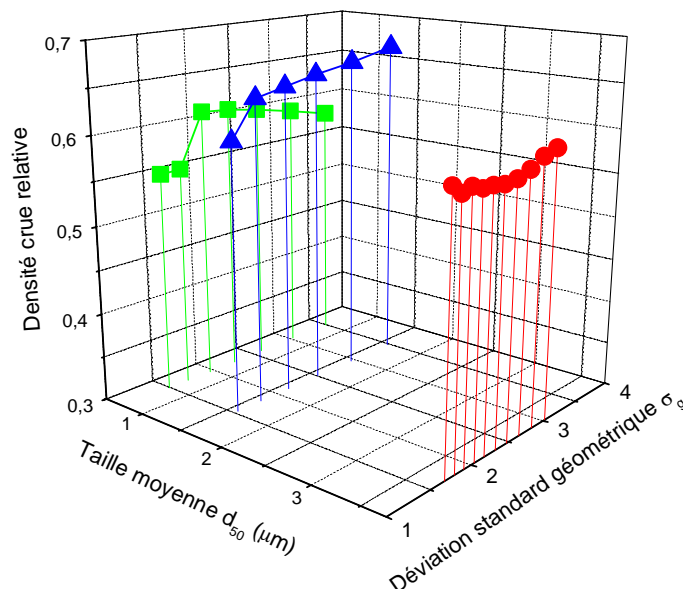
Certaines poudres de cette gamme peuvent être plutôt allongées, sous forme de bâtonnets comme la poudre illustrée sur la Figure 12.



**Figure 12 : photographie MEB d'une des poudres commerciales correspondant à la gamme  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$  des poudres artificielles Bayer.**

Comme relaté dans les articles de Philipse [PHI96, PHI97], les densités de ce type de poudres peuvent atteindre de fortes valeurs pour des empilements orientés (non aléatoire), tandis que les empilements aléatoires sont très peu denses. Dans le cas particulier de cette poudre illustré sur la Figure 12 avant atomisation, ses particules semblent avoir une direction préférentielle. Pourtant, la densité crue relative obtenue reste relativement faible ( $\rho_v$  relative=0.61). Le procédé d'atomisation par air a très probablement cassé cette orientation préférentielle et établi un empilement aléatoire.

Le graphe 3D ci-dessous permet de visualiser l'effet de la taille des particules combiné à celui de la largeur de la distribution en taille.



**Figure 13: Influence de la taille moyenne des particules  $d_{50}$  et de la déviation standard géométrique  $\sigma_g$  sur la densité verte relative simulée des poudres artificielles de type Bayer.**

Par des projections dans les différents plans 2D, les influences de la taille  $d_{50}$  et de la largeur de la distribution en taille des particules sont évaluées.

*Influence de la largeur de la distribution en taille des particules*

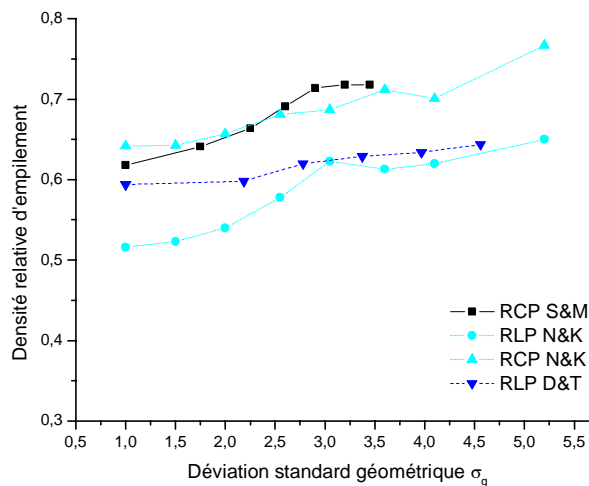
Dans le modèle [NOL94], la largeur de la distribution en taille n'est pas exprimée selon  $\sigma_g$  mais par la déviation standard absolue  $\sigma_a$ .

La transformation suivante permet de relier ces deux valeurs [BEA98] :

$$\sigma_g = d_{50}\sigma_a + 1$$

où  $d_{50}$  représente la taille moyenne égale à  $5\mu\text{m}$  des particules utilisées dans ce modèle.

**Les modèles de la littérature**



**Figure 14: Densité relative d'empilement en fonction de la largeur de la distribution en taille des particules pour différents modèles de la littérature.**

Pour tous les modèles de la littérature présentés ici, une densité d'empilement plus élevée est obtenue avec des poudres ayant une distribution en taille des particules plus large. Les densités RCP de sables grossiers [SOH68] et de sphères [NOL93] sont très proches.

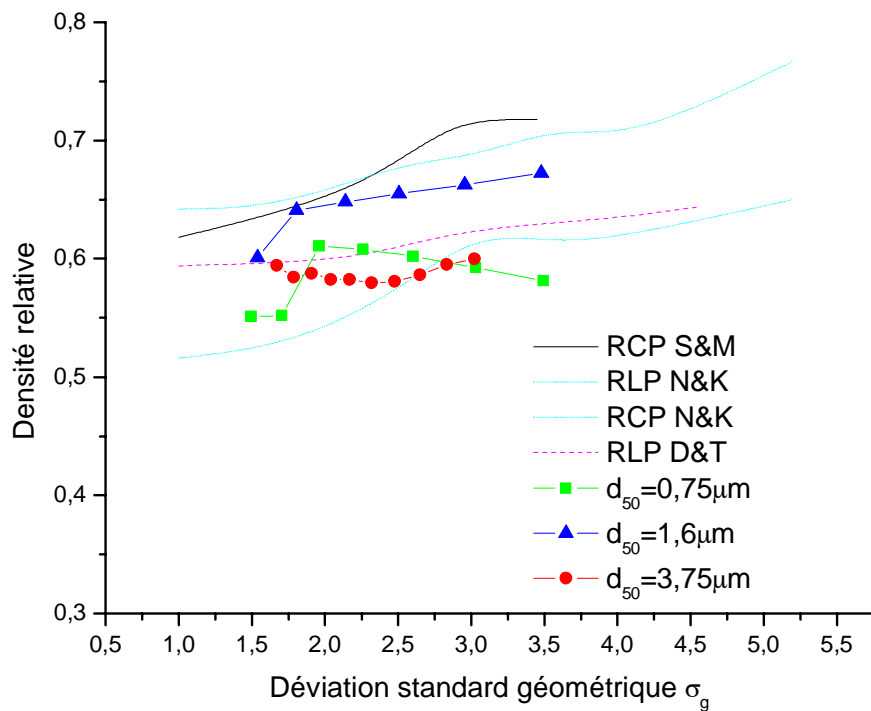
Quant aux empilements RLP, leurs densités sont également proches pour des déviations standards géométriques élevées. Une différence est observable pour des distributions en taille plus étroites. Elle provient de l'effet de pontage plus important lors de l'empilement de sphères monodisperses, comme Nolan & Kavanagh l'expliquent dans leur article [NOL93] (cf. : § Les modèles de la littérature p.23).

**Comparaison modèles de la littérature et poudres artificielles de type Bayer**

La densité d'empilement (ou densité verte) des poudres artificielles est analysée en fonction de la déviation géométrique standard de leur distribution en taille obtenue par la relation

$$\sigma_g = \frac{d_{50}}{d_{15.87}} = \frac{d_{84.13}}{d_{90}} \text{ où } d_{84.13} = \exp \left[ \frac{0.8413 - 0.1}{0.9 - 0.1} (\ln d_{90} - \ln d_{10}) + \ln d_{10} \right]$$

Elle est comparée aux valeurs issues de la littérature ([BEZ2002], [NOL93], [NOL94], [DEX72], [SOH68]).



**Figure 15: Influence de la déviation standard sur la densité d'empilement des poudres artificielles Bayer.**

**RCP N&K:** densité d'empilement RCP, calculée par Nolan et Kavanagh [NOL93]

**RLP N&K:** densité d'empilement RLP, calculée par Nolan et Kavanagh [NOL93]

**RCP S&M:** densité d'empilement expérimentale RCP avec des particules grossières (sable), Sohn et Moreland [SOH68]

**RLP D&T:** densité d'empilement expérimentale RLP avec des billes métalliques, Dexter et Tanner [DEX72]

**$d_{50}=0,75\mu\text{m}$ :** densité crue prédite par le réseau de neurones pour des poudres Bayer artificielles dont  $d_{50}=0,75\mu\text{m}$

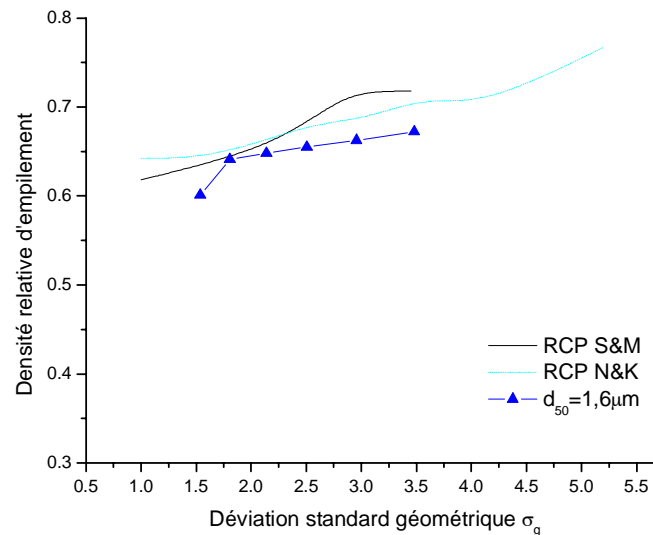
**$d_{50}=1,6\mu\text{m}$ :** densité crue prédite par le réseau de neurones pour des poudres Bayer artificielles dont  $d_{50}=1,6\mu\text{m}$

**$d_{50}=3,75\mu\text{m}$ :** densité crue prédite par le réseau de neurones pour des poudres Bayer artificielles dont  $d_{50}=3,75\mu\text{m}$ .

D'après la Figure 15, les résultats de la densité verte prédits par le réseau de neurones s'avèrent intéressants. Comme dans les modèles issus de la littérature, la tendance générale est une augmentation de la densité verte lors d'un accroissement de la largeur de la distribution en taille des particules.

Cette augmentation est valable pour des empilements RCP et RLP de particules.

Concernant les poudres artificielles dont  $d_{50}=1,6\mu\text{m}$ , la courbe de densité en fonction de la déviation standard géométrique suit globalement celle de Nolan & Kavanagh, simulant la densité d'un empilement RCP, ou encore celle expérimentale de Sohn & Moreland, simulant la densité d'empilement RCP de particules grossières de sable (cf.: Figure 16).



**Figure 16: comparaison de la densité relative pour les modèles et la simulation des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=1,6\mu\text{m}$ .**

Il semble que les valeurs des densités prédites par le réseau de neurones soient légèrement inférieures à celles simulées par les modèles.

Plusieurs hypothèses explicatives peuvent être données.

1<sup>ère</sup> hypothèse: le modèle de Nolan et Kavanagh [NOL93] simule la densité d'un empilement de sphères et néglige les interactions interparticulaires, de même que le modèle de Sohn & Moreland (empilement de particules irrégulières très grossières sur lequel seule la gravité a un effet).

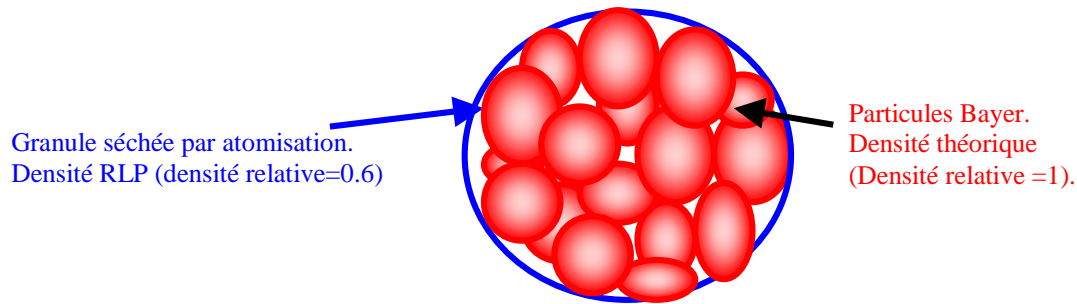
Le réseau de neurones prédit la densité verte de poudres de forme irrégulière dans lesquelles des forces attractives agissent entre les particules (Van Der Waals, forces capillaires durant l'atomisation, la friction). De plus, le procédé de fabrication de ces poudres forme des agglomérats durs, ce qui limite leur déformation pendant le pressage et diminue la densité crue.

La différence entre les 2 densités, simulée par les modèles et prédite par le réseau de neurones, pourrait être due à l'effet négatif de ces 2 facteurs, la forme et les forces attractives, qui empêche un empilement compact. En effet, d'après les travaux de Yu, Standish et Zou [YU92A], il semblerait que la diminution de la densité d'un empilement due à la forme des particules nécessite une anisotropie forte ( $\psi < 0.8$ ).

2<sup>ème</sup> hypothèse: le séchage par atomisation des poudres utilisées par le réseau de neurones ne permet pas d'atteindre une densité RCP. En effet, durant ce procédé, seules les forces



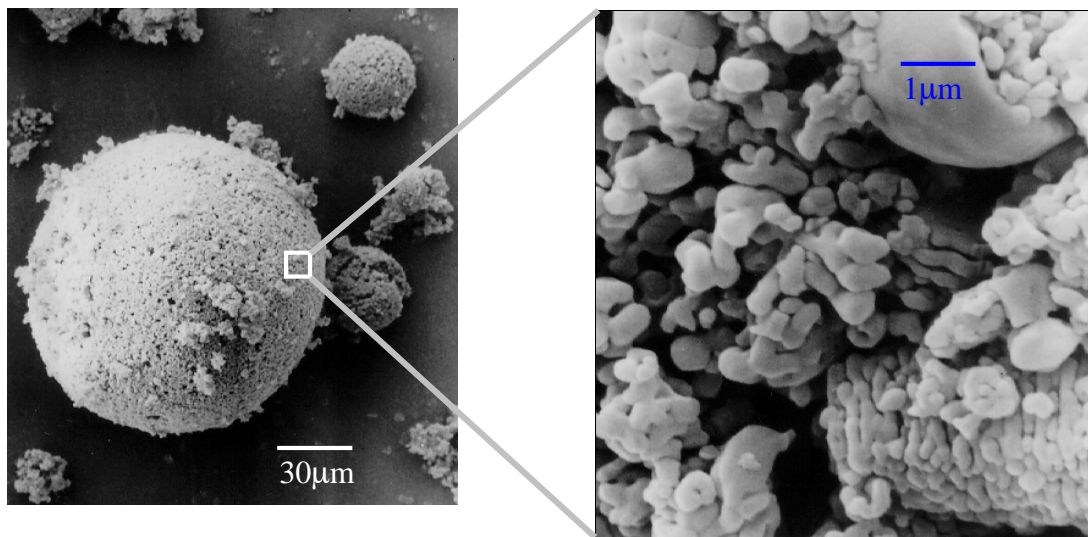
capillaires agissent: la densité des granules ainsi formées n'est donc pas très élevée comme le montre le Schéma 1.



**Schéma 1 : Granule d'alumine type Bayer séchée par atomisation**

$$\rho_{\text{granules}} = \rho_{\text{particules primaires}} * \text{facteur d'empilement} = 1 * 0.6 = 0.6 \text{ [KNI2001]}$$

(Facteur d'empilement=valeur maximale pour RCP et RLP, respectivement 100% et 60%)



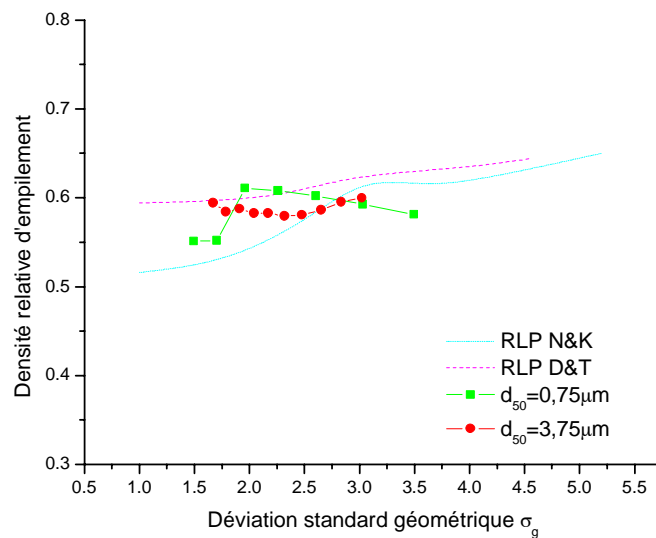
**Figure 17: micrographie MEB d'une poudre Bayer après séchage par atomisation**

Sur cette micrographie (Figure 17), des sous-empilements plus ou moins ordonnés apparaissent. L'empilement intragranules semble donc être plus complexe que celui proposé précédemment. Malgré cela, la tendance générale, obtenue pour la densification simulée des poudres Bayer artificielles, semble correcte.

3<sup>ème</sup> hypothèse: il existe des défauts dans les granules non-éliminés par le pressage comme le montre la photographie de la Figure 17.

Ainsi, la densité des granules de poudre Bayer artificielles, dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , donnerait une densité légèrement inférieure aux densités RCP obtenue dans les modèles de Nolan & Kavanagh et de Sohn & Moreland.

Le comportement des poudres Bayer artificielles dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  et  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , illustré sur la Figure 18, est différent.



**Figure 18: Comparaison de la densité relative pour les modèles et la simulation des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  et  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ .**

Pour les poudres dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ , le problème d'agglomération, plus présent pour des poudres submicroniques, pourrait être à l'origine de cette différence et engendrer une densité plus proche de celle d'un empilement RLP que d'un empilement RCP.

Pour les poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , leur sphéricité est trop différente des sphères utilisées dans les modèles de la littérature: ce facteur de forme a un effet négatif, prépondérant sur l'empilement, par rapport à l'effet positif de la taille. L'empilement de telles particules offre donc une densité plus proche de celle d'un empilement RLP de sphères.

Ainsi, les poudres artificielles dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  et  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$  montrent une densification plus proche de celle d'un empilement RLP de sphères que d'un empilement RCP.

#### *Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules*

Les auteurs des modèles [SUZ2001], [WAK75], [YU97] et [YAN2000] se sont intéressés à cet effet. De leurs études, il ressort que lorsque la taille des particules augmente, 2 effets se produisent:

- Pour une quantité d'adjuvants similaire, la quantité de charges surfaciques reste similaire. Les forces électrostatiques sont donc plus faibles par rapport aux autres forces.
- Le rapport des forces Van Der Waals / gravité diminue.

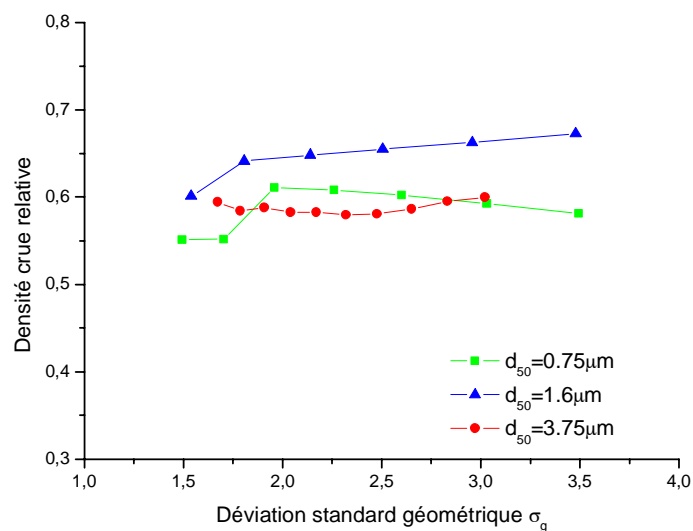
Les particules s'empilent donc plus facilement lorsque leur taille moyenne augmente : les poudres sont donc plus denses.

Les valeurs quantitatives des modèle de la littérature et celles prédites par le réseau de neurones ne sont malheureusement pas comparables. En effet, les caractéristiques des poudres utilisées par les modèles sont trop différentes de celles utilisées dans cette étude:

- La taille moyenne et/ou les largeurs des distributions en taille des particules de poudres des modèles sont plus élevées que celles des poudres d'alumine Bayer et précipitées utilisées pour l'apprentissage du réseau de neurones artificiel.
- Les poudres utilisées dans ces modèles sont empilées sans traitement préalable (pas d'atomisation à l'air)

La comparaison sera donc uniquement qualitative.

La tendance observée dans ces modèles se discerne également sur la Figure 19, issue des résultats simulés par le réseau de neurones des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$  et  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ : une augmentation de la densification lors de l'empilement de particules de plus grande taille, pour une largeur fixe de la distribution en taille des particules.

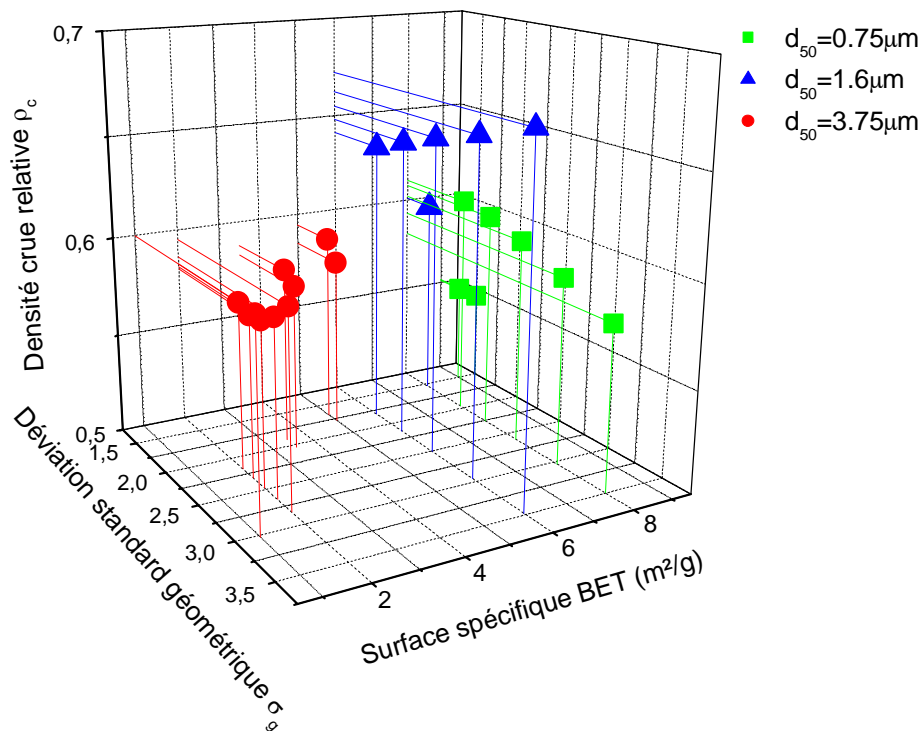


**Figure 19 : Influence de la taille moyenne  $d_{50}$  des particules sur la densité verte des poudres Bayer**

Pour les poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , l'effet bénéfique de la taille sur la densification semble trop faible face à l'effet néfaste de la forme irrégulière de ces poudres.

#### *Influence de la surface spécifique BET*

Le graphique 3D permet une première visualisation de l'influence de cette surface spécifique sur la densité crue (Figure 20).



**Figure 20: Influence de la surface spécifique BET et de la déviation standard géométrique  $\sigma_g$  sur la densité verte relative simulée des poudres artificielles de type Bayer.**

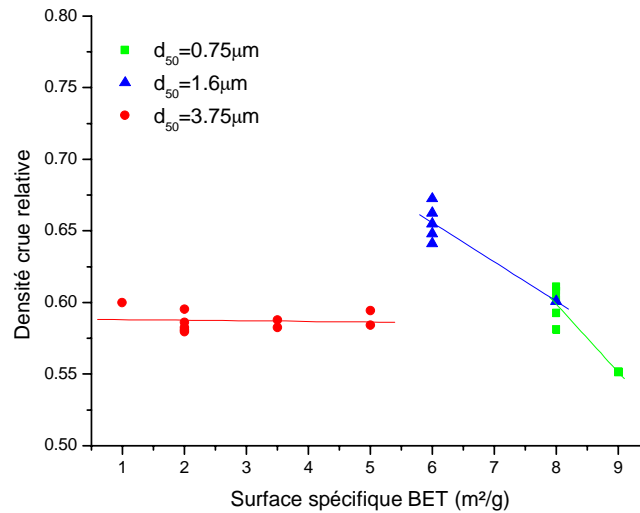
Ce graphe montre que les paramètres BET et  $d_{50}$  sont indépendants. Donner une valeur fixe à l'un de ces deux paramètres rend impossible l'évaluation de l'influence de l'autre.

En effet, la surface spécifique BET est directement reliée à la distribution en taille des particules. Une valeur de cette caractéristique peut être obtenue à partir de la taille moyenne des particules  $d_{50}$  et la déviation standard géométrique de la distribution en taille des particules.

La poudre Bayer étant peu agglomérée : plus la taille moyenne des particules est grande plus la surface spécifique de la poudre diminue, pour un  $\sigma_g$  fixe.

Les discussions sur l'influence de la taille moyenne des particules, vues dans le paragraphe précédent, sont donc également probablement valables pour l'étude de l'influence de la surface spécifique sur la densité crue relative.

La projection du graphe de la Figure 20 selon le plan  $(\sigma_g, \rho_c)$  facilite l'observation de cette influence (Figure 21).



**Figure 21 : influence de la surface spécifique BET sur la densité crue relative simulée par le réseau de neurones pour les poudres artificielles Bayer.**

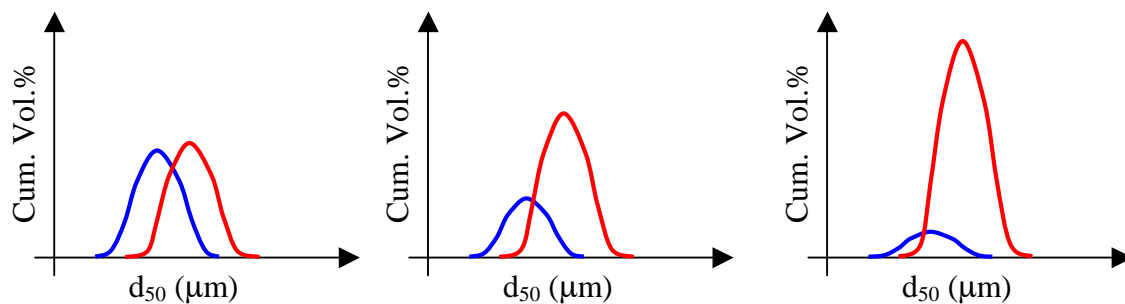
D’après cette projection, la densité verte d’une poudre Bayer semble relativement sensible à la variation de la surface spécifique BET (et donc à la variation de la taille moyenne  $d_{50}$ ): lorsque la surface BET diminue, la densité crue diminue.

Par contre, pour les poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , la densité crue relative semble quasi insensible à la variation de la surface spécifique BET : la non-sphéricité de cette gamme de poudre est probablement le facteur limitant de la densification.

*6.1.2.2. Comportement à la densification verte des poudres artificielles précipitées*

Dans le cas des poudres artificielles précipitées, la valeur de la surface spécifique BET est choisie constante ( $14.1 \text{ m}^2/\text{g}$ ). Lorsque la valeur  $d_{50}$  mesurée augmente, cela correspond en fait, à une proportion d'agglomérats primaires plus importante que celle des particules primaires comme illustré sur la **Figure 22**.

- Particules primaires non agglomérées
- Agglomérats primaires



**Figure 22: schéma de la proportion de particules primaires et d'agglomérats primaires dans les poudres artificielles ayant une même surface spécifique BET=14.1 m²/g.**

Ainsi, pour une valeur fixe de la surface spécifique BET, plus la taille moyenne  $d_{50}$  mesurée serait élevée, plus la poudre serait agglomérée.

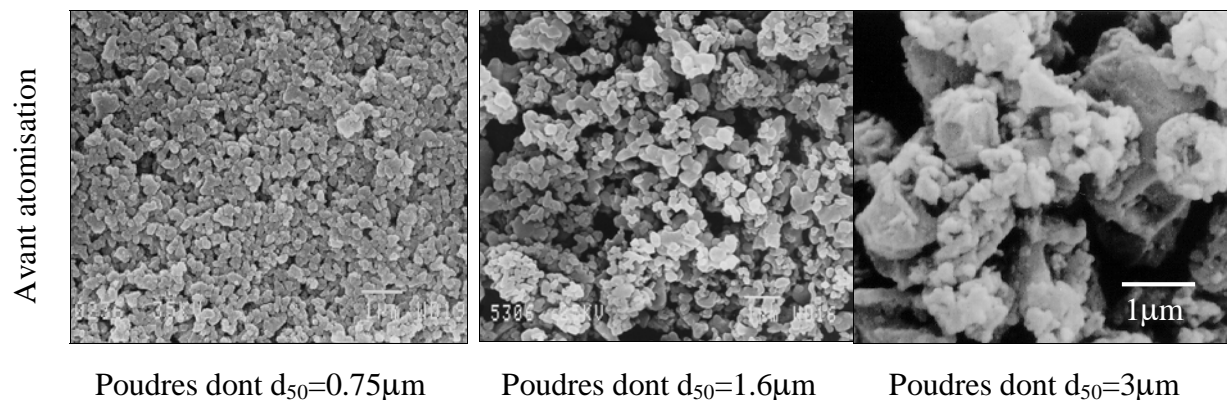
D'après German [GER96], l'agglomération de ces particules primaires en agglomérats primaires est évaluée par un facteur d'agglomération tel que :

$$\text{facteur d'agglomération} = \frac{d_{50\text{exp}}}{d_{\text{BET}}} \quad \text{où} \quad d_{\text{BET}} = \frac{6}{S_{\text{BET}} \rho_m}$$

et  $d_{\text{BET}}$ =taille moyenne théorique des particules primaires si ces dernières sont monodisperses et sphériques.

Dans le cas présent d'une surface spécifique BET fixe, le facteur d'agglomération serait donc directement proportionnel à la taille moyenne  $d_{50}$  mesurée.

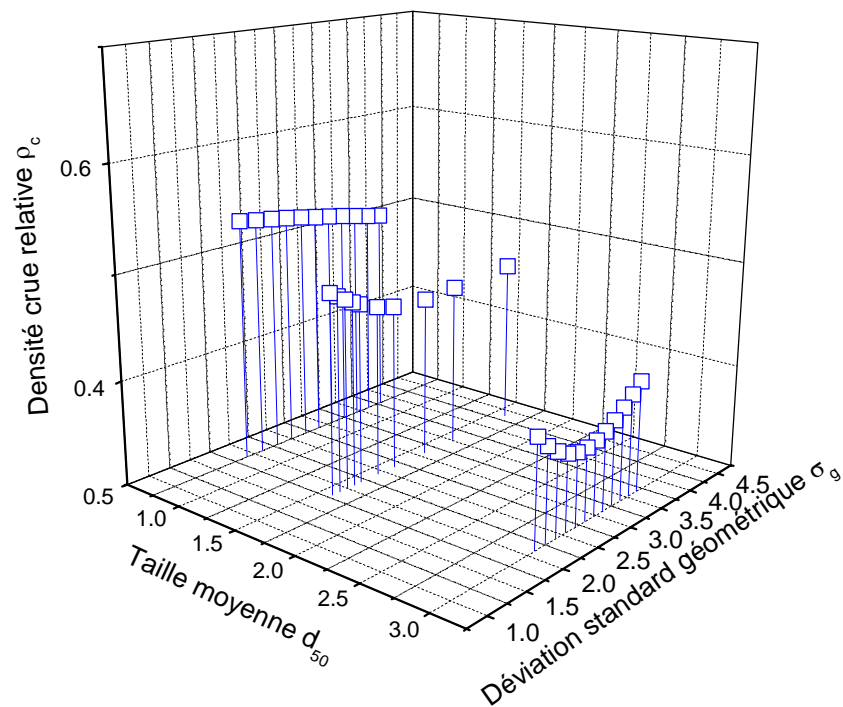
3 gammes de poudres artificielles précipitées sont créées: des poudres dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ , dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , et dont  $d_{50}=3\mu\text{m}$ . Une photographie d'une poudre issue de chacune de ces gammes, avant atomisation, est présentée sur la Figure 23.



**Figure 23: photographies MEB (grandissement: x10000) de poudres correspondantes aux 3 gammes des poudres artificielles précipitées avant atomisation.**

D'après la Figure 23, l'hypothèse d'agglomération soumise semble être correcte. En effet, plus la taille des particules  $d_{50}$  augmente, plus la poudre semble agglomérée.

Le graphe 3D ci-dessous permet de visualiser l'effet de la taille des particules combiné avec celui de la largeur de la distribution en taille.

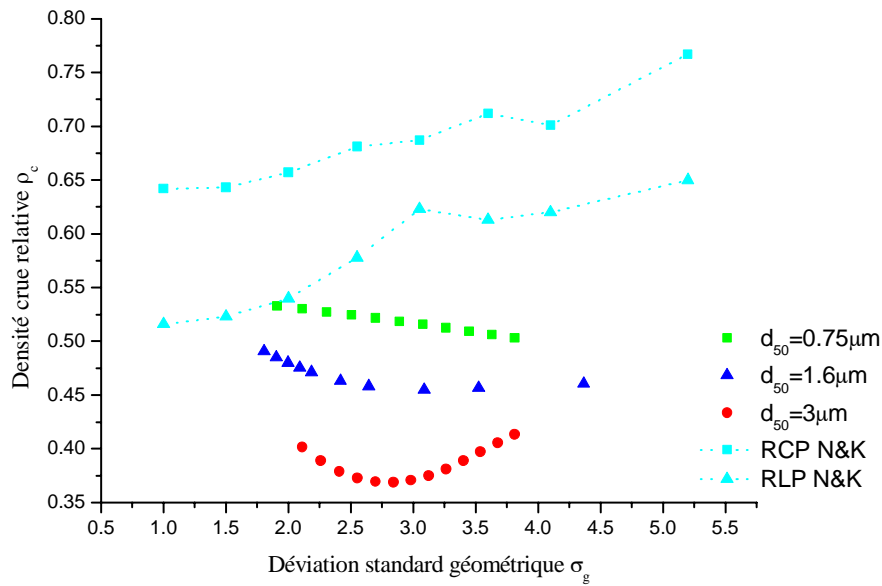


**Figure 24: Influence de la taille moyenne des particules  $d_{50}$  et de la déviation standard géométrique  $\sigma_g$  sur la densité verte relative simulée des poudres artificielles précipitées.**

#### *Influence de la largeur de la distribution en taille des particules*

Le comportement de la densité verte des poudres artificielles précipitées est en totale opposition avec celui des poudres artificielles Bayer et des modèles de la littérature : une diminution de la densité est observée lors de l'accroissement de la déviation standard géométrique de la distribution en taille (Figure 25).

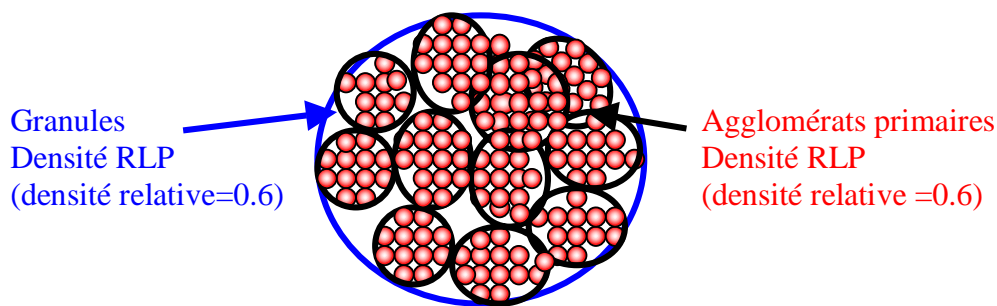
La projection 2D dans le plan  $(\sigma_g, \rho_c)$  permet de confirmer cette tendance. Ceci peut s'expliquer par les propriétés intrinsèques de ce type de poudres, et notamment par le facteur d'agglomération. En effet, les poudres précipitées sont fortement agglomérées (cf.: 6.1.2.2 Comportement à la densification verte des poudres artificielles précipitées) et plus la déviation standard de la distribution en taille augmente, plus cette agglomération est forte, ce qui conduit inéluctablement à une diminution de la densité totale (présence de pores intra et intergranulaires).



**Figure 25: Influence de la déviation standard géométrique sur la densité verte relative des poudres artificielles précipitées**

Il est à noter que pour les poudres dont  $d_{50}=3\mu\text{m}$ , la tendance est différente: la densité diminue lors de l'accroissement de la largeur de la distribution, passe par un minimum (vers  $\sigma_g=2.75$ ,  $\rho_c=37\%$ ) puis augmente.

La densité relative verte minimale atteinte est proche de 37%. Elle pourrait s'expliquer par le procédé de séchage par atomisation appliqué aux poudres très fines de céramique élaborée par précipitation. Comme pour les poudres de type Bayer, cette atomisation forme des granules ayant une densité RLP. Mais les poudres précipitées sont des agglomérats primaires (formés de particules primaires d'empilement non tassé RLP) et non des particules denses comme le montre la Figure 26.



**Figure 26: Granule d'alumine précipitée, séchée par atomisation**

Le taux d'empilement minimal ainsi obtenu serait proche de 36%, ce qui correspondrait simplement au produit suivant

$$\rho_{\text{granules}} = \rho_{\text{agglomérats}} \cdot \text{facteur d'empilement [KNI2001]}$$



$\rho_{\text{granules}} = 0.6 * 0.6 = 0.36$  pour un empilement RLP de granules à partir de particules monodisperses agglomérées. Cette valeur semble en accord avec la valeur 0.37 prédite par le réseau de neurones (Figure 25).

#### *Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules*

Il est à noter que plus la taille moyenne de grain  $d_{50}$  est grande, plus la poudre est agglomérée pour ce type de particules. L'observation de la Figure 25 corrobore ce phénomène: la densité verte des poudres artificielles diminue avec l'augmentation de  $d_{50}$ , pour  $\sigma_g$  fixe.

Conclusion: Le comportement des poudres artificielles précipitées d'alumine est opposé à ceux observés dans les modèles de la littérature. Ce qui est dû à la présence d'agglomérats : plus la taille des particules augmente, plus la poudre est agglomérée, et moins elle se densifie lors de l'empilement et du compactage (cf. :paragraphe Comportement à la densification verte des poudres artificielles précipitées).

#### 6.1.2.3. Conclusions sur les facteurs influant la densification verte des poudres d'alumine

Pour chaque gamme de poudres artificielles créées, le comportement de la densité verte prédite par le réseau de neurones peut être expliqué par les caractéristiques réelles des poudres auxquelles elles se rapportent:

- la poudre Bayer, non agglomérée et de forme plutôt arrondie (i.e. poudres artificielles dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ ), suit le comportement des modèles de la littérature en augmentant sa densité verte lors d'un accroissement de la largeur de la distribution en taille des particules et de la taille  $d_{50}$  des particules. Pourtant, il est à noter que la forme des particules primaires semble rester fortement influente sur la densification de ce type de poudre. Et ce paramètre n'est pas pris en compte dans l'approche par réseau de neurones artificiels. Malgré cela, la tendance générale de la densification semble respectée.
- La poudre précipitée a un comportement inverse à cause de la forte agglomération présente dans ce type de poudres.

L'utilisation dans le réseau de neurones, de poudres artificielles créées à partir de la base de données de poudres réelles, semble relativement bien adaptée pour évaluer les influences des paramètres d'entrées du réseau de neurones sur les paramètres de sortie. En effet, cet outil semble permettre la mise en évidence de phénomènes connus (expérimentaux et/ou issus de la

littérature) sur chaque type de poudre d'alumine. Cela permet une utilisation plus poussée (toujours dans les limites du domaine de validité) comme par exemples :

- La mise en place d'équations semi-empiriques permettant de relier les valeurs d'entrée aux valeurs de sortie.
- L'évaluation des paramètres optimaux permettant l'obtention d'une poudre d'une densité donnée

### 6.1.3. Facteurs influents sur la densité frittée ( $T=1500^{\circ}\text{C}$ ) des poudres d'alumine

La densité frittée des poudres artificielles est simulée par le réseau de neurones préalablement éduqué. En fixant certains des paramètres d'entrée, l'influence des autres paramètres sur la densité frittée des poudres d'alumine peut être mise en évidence.

#### 6.1.3.1. *Comportement à la densification frittée des poudres artificielles Bayer*

Les graphes 3D ci-dessous permettent de visualiser l'effet de la taille des particules, de la surface spécifique BET, de la largeur de la distribution en taille des particules, de la concentration en silice et de la densité verte sur la densité frittée des poudres d'alumine Bayer.

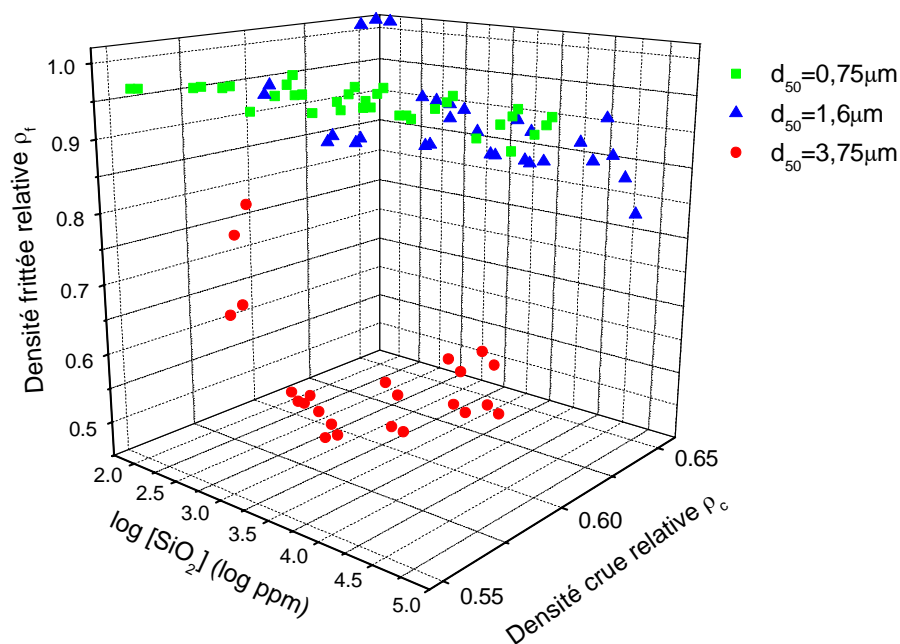
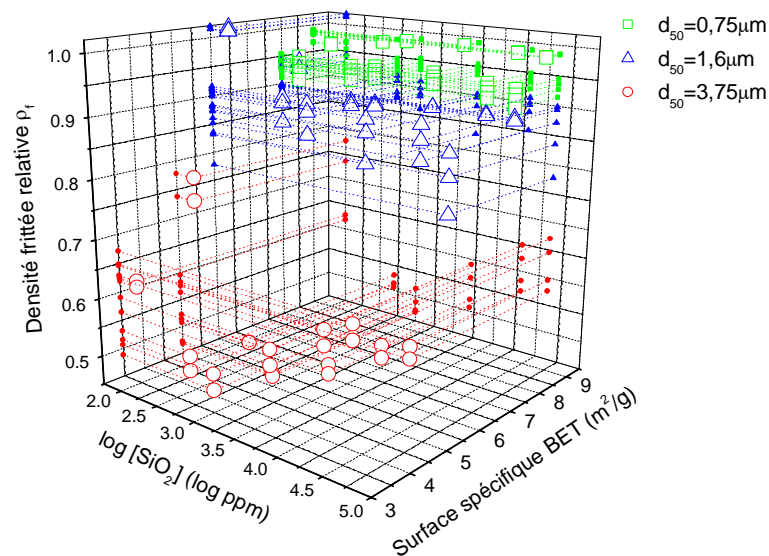


Figure 27: influence de la concentration en silice et de la densité verte sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer.



**Figure 28: influence de la surface spécifique BET et de la largeur de la distribution en taille des particules sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer.**

Toutes les tendances ne sont pas clairement visualisées sur ces graphes 3D. Parfois, des projections dans les différents plans 2D permettent une lecture plus aisée. Par contre, elles doivent être utilisées avec précaution car souvent les paramètres sont trop dépendants les uns des autres pour être traités séparément.

Les influences de la taille des particules, de la largeur de la distribution en taille des particules, de la concentration en silice, de la surface spécifique BET et de la densité verte sur la densité frittée des poudres d'alumine Bayer seront donc discutées à partir des graphes 3D ou 2D.

#### *Influence de la taille moyenne des particules $d_{50}$*

Pour des poudres ayant des particules aussi fines, le frittage est dominé par la diffusion et donc par les réactions aux interfaces [HE2001].

Il est connu que la taille moyenne des particules influence considérablement le frittage et notamment la frittabilité. En effet, pour un traitement thermique identique, plus les particules sont fines, plus les mécanismes diffusionnels sont rapides et plus la frittabilité augmente. Ce qui conduit à une densification plus forte (cf. : § Densification lors du frittage d'un corps vert, p.68).

Une tendance générale similaire est observable lors de la simulation de la densité frittée des poudres artificielles Bayer (cf.: Figure 27 et Figure 28).

- Les poudres les plus fines ( $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ ) auraient une densité frittée relative comprise entre 0.9 et 1.

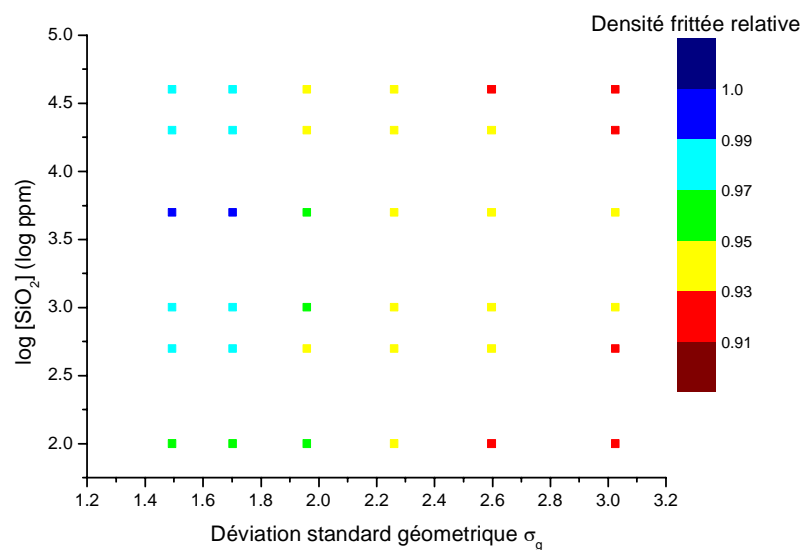
- Les poudres dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$  auraient une densité frittée relative légèrement plus faible (comprise entre 0.8 et 0.9). Par contre, 3 de ces poudres artificielles offrent les densités frittées les plus élevées.
- Quant aux poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , elles semblent offrir les densifications les plus faibles (certaines densités relatives sont inférieures à 0.5).

Les tendances simulées par l'approche neuronale semblent donc en accord avec les tendances issues de la littérature : les particules les plus fines frittent mieux.

#### *Influence de largeur de la distribution en taille des particules $\sigma_g$*

D'après les auteurs de [SHI98], une distribution en taille des particules fine et étroite prolonge l'étape intermédiaire du frittage: la croissance des grains est donc retardée et la densification est plus importante.

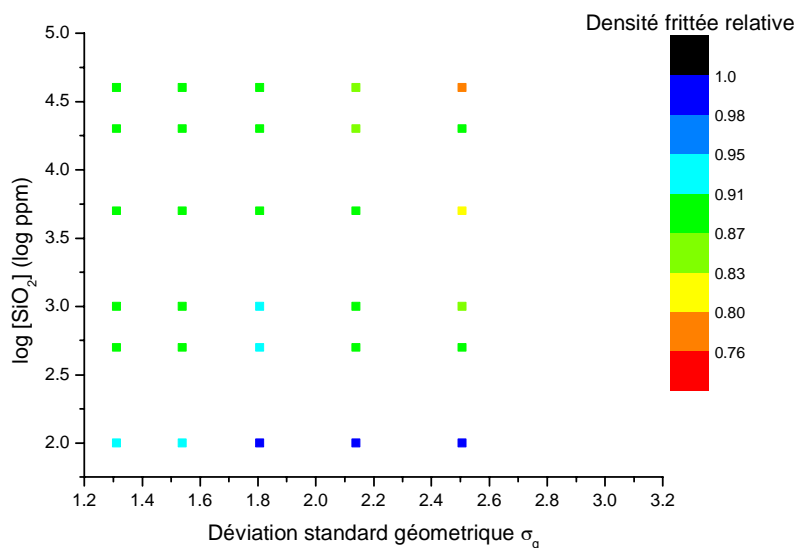
Les isodensités ci-dessous donnent une visualisation de l'effet de la largeur de la distribution en taille combiné avec celui de la concentration en silice, pour chaque gamme de taille  $d_{50}$  des poudres artificielles.



**Figure 29: influence de la largeur de la distribution en taille des particules et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ .**

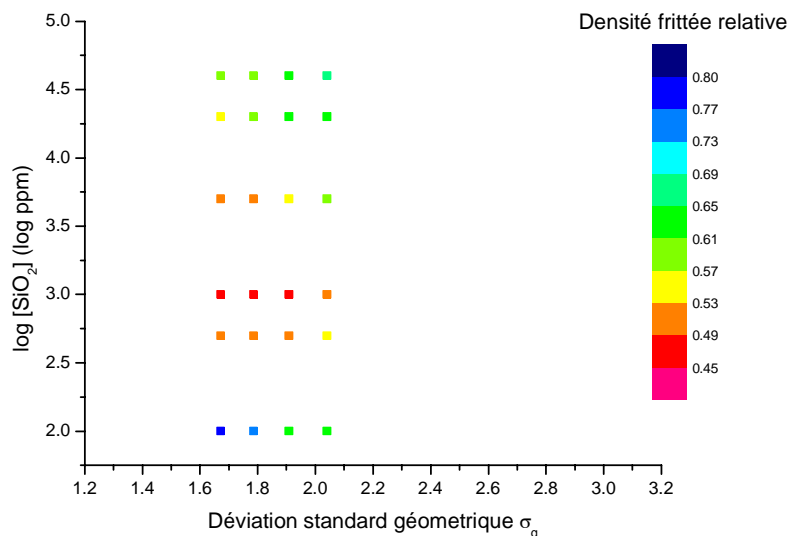
Pour cette gamme de poudre, la meilleure frittabilité est obtenue pour de faibles déviations standards (cf. : Figure 29). Cette tendance peut s'expliquer par l'obtention d'un frittage alors plus homogène. En effet, pour ces poudres submicroniques soumises à l'agglomération, une distribution en taille des particules plus étroite comporte moins d'agglomérats: le corps cru est donc plus homogène. Pour des distributions en taille des particules plus larges, le frittage deviendrait moins homogène, ce qui semble favoriser une croissance anormale des grains.

Il faut néanmoins rester prudent sur cette interprétation, compte-tenu du faible écart (<10%) entre les densité frittées les plus faibles et les plus fortes obtenues.



**Figure 30: influence de la largeur de la distribution en taille des particules et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ .**

Pour les poudres artificielles dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , la densité frittée semble relativement insensible à la largeur de la distribution en taille des particules (cf. : Figure 30).



**Figure 31: influence de la largeur de la distribution en taille des particules et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ .**

Quant à cette gamme de poudre, l'effet de la largeur de la distribution en taille des particules semble relativement chaotique (cf. : Figure 31). Il est à noter la faible frittabilité de ce type de poudre, la densité frittée relative maximale n'excédant pas 0.8. Cette faible frittabilité est probablement due à une densité crue déjà faible ainsi qu'à la relativement grande taille des particules.

*Influence de la pureté de la poudre : influence de la concentration en silice*

La concentration en impuretés dans l'alumine peut engendrer des variations importantes sur le frittage de la poudre. Plus particulièrement, certaines impuretés ont une influence directe sur la frittabilité de la poudre d'alumine, ce qui est notamment le cas pour la silice. En effet, sa présence est supposée provoquer l'apparition d'une phase liquide qui augmente la vitesse de densification lors du frittage, la silice liquide remplissant les interstices et pores de la poudre.

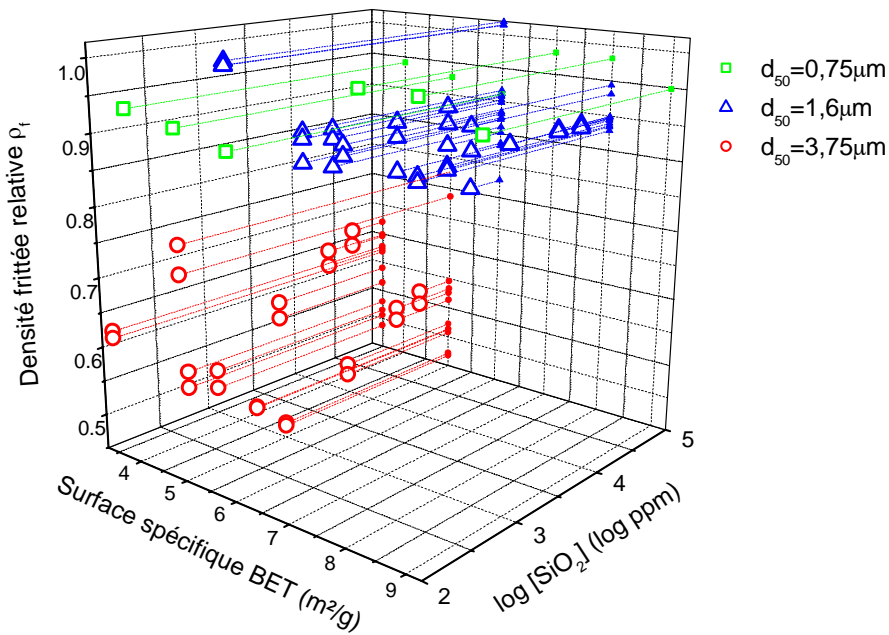
Les courbes d'isodensités présentées en trois graphes distincts, selon la taille moyenne  $d_{50}$  des particules (Figure 29, Figure 30, Figure 31) permettent une meilleure visualisation.

- Poudres dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ : la valeur optimale de la concentration en silice semble être proche de 5000ppm ( $\log [\text{SiO}_2]=3.699$ ), et ce, quelle que soit la déviation standard géométrique de la distribution en taille des particules. Là encore, Il faut néanmoins rester prudent sur cette interprétation compte-tenu du faible écart (<10%) entre les densité frittées les plus faibles et les plus fortes obtenues.
- Poudres dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ : pour cette gamme de poudre, la frittabilité est la meilleure lorsque la présence de silice est la plus faible, ce qui est en contradiction avec l'hypothèse énoncée.
- Poudres dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ : les densités frittées les plus fortes sont obtenues avec des poudres dont la concentration en silice est soit faible (100ppm) soit forte (50000ppm). Malgré cela, leurs valeurs restent largement inférieures à celles obtenues pour les autres gammes de poudres.

*Influence de la surface spécifique BET*

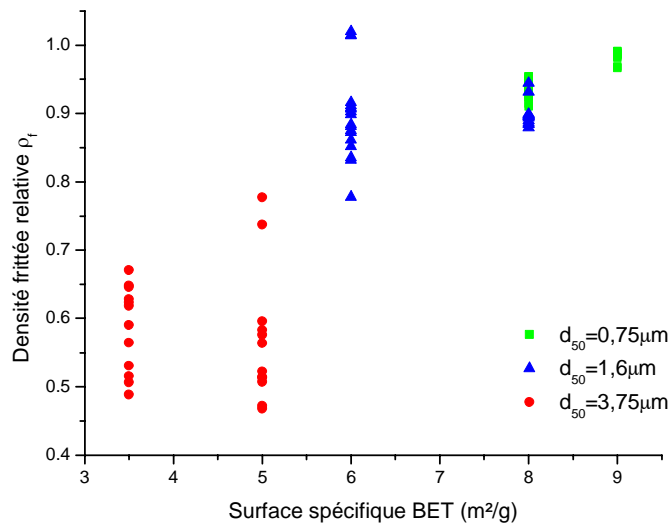
L'impact de ce paramètre sur la densité frittée est impossible à évaluer si d'autres paramètres comme la taille et la distribution en taille des particules de la poudre sont fixés.

Son influence sur la densité frittée est donc évaluée en fixant la valeur de la concentration en silice. La Figure 32 illustre cette influence.



**Figure 32: influence de la surface spécifique BET et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer.**

La Figure 32 montre une augmentation de la densité frittée pour des poudres de surface spécifique plus grande.



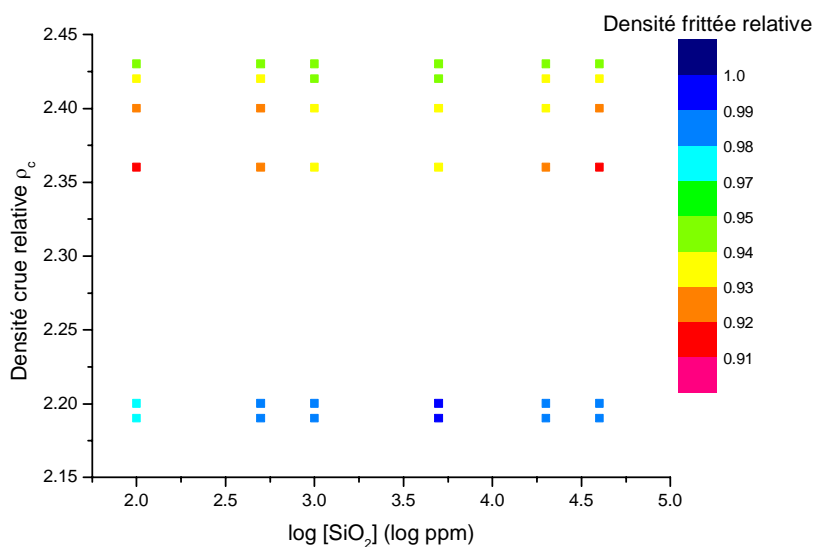
**Figure 33: influence de la surface spécifique BET sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer.**

Ce résultat, mieux visualisé sur la Figure 33, projection du graphe 3D dans le plan (BET,  $\rho_f$ ), est attendu vu la dépendance entre la surface BET et la taille des particules  $d_{50}$ . En effet, une surface BET élevée correspond à une taille des particules  $d_{50}$  plus petite donc à une frittabilité meilleure. Ce qui engendre une densification plus importante.

### *Influence de la densité crue sur le frittage*

Là encore, évaluer l'influence de ce paramètre unique sur la densité frittée s'avère difficile: la densité crue est en effet liée à la distribution en taille des particules et la surface spécifique BET.

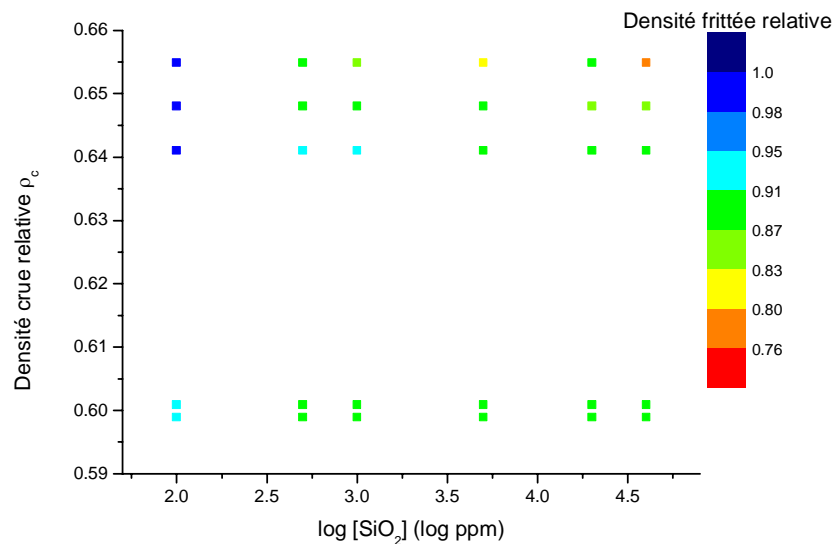
Les courbes d'isodensités (Figure 34, Figure 35, Figure 36), présentées en trois graphes distincts selon la taille moyenne  $d_{50}$  des particules, permettent une observation plus aisée de l'influence de ce paramètre.



**Figure 34: influence de la densité crue et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ .**

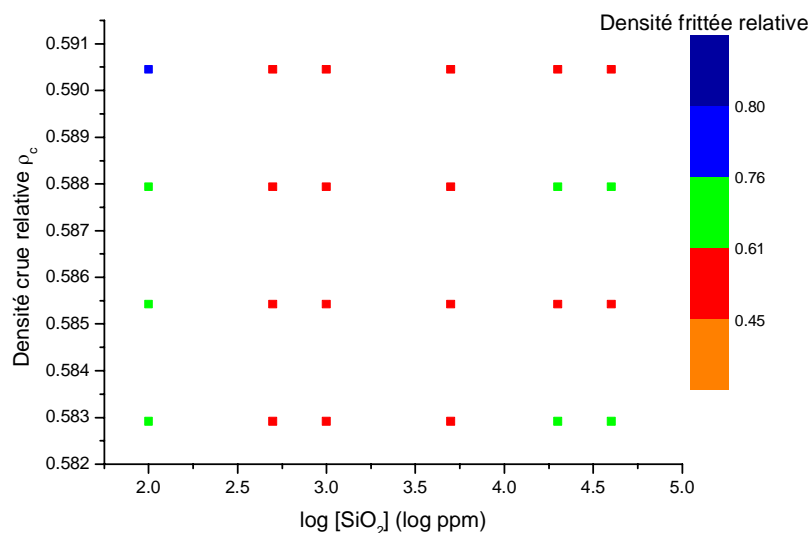
D'après la Figure 34, la frittabilité semble meilleure pour les poudres dont la densité crue est la plus faible. Pour cette poudre submicronique, les densités crues les plus faibles correspondent aux distributions en taille des particules les plus étroites et donc les moins agglomérées: les corps crus les moins denses sont donc les plus homogènes et par conséquent leur frittabilité en est améliorée.





**Figure 35: influence de la densité crue et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ .**

Associé à une concentration en silice faible, les poudres dont la densité après compactage est la plus forte semblent fritter le mieux.

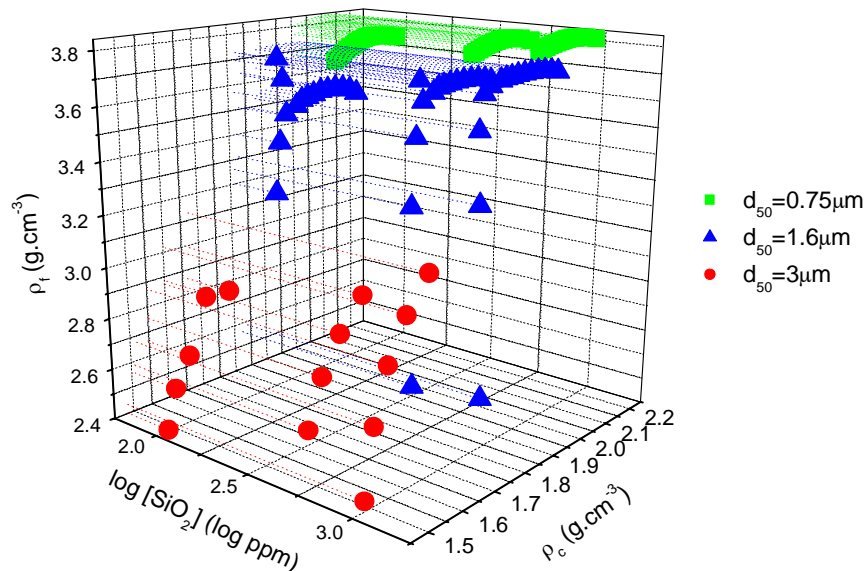


**Figure 36: influence de la densité crue et de la concentration en silice sur la densité frittée des poudres artificielles Bayer dont  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ .**

Il semble difficile de dégager une tendance sur cette Figure 36. La taille des particules ainsi que leur forme semblent complètement annihiler l'effet de la densité de la poudre après compactage. De plus, l'écart entre les valeurs des densités crues est beaucoup trop faible pour permettre l'évaluation de l'influence de la densité du corps cru sur la densité frittée pour cette gamme de poudres.

### 6.1.3.2. *Comportement à la densification des poudres artificielles précipitées*

Le graphe 3D ci-dessous permet de visualiser l'effet de la taille des particules combiné à celui de la concentration en silice et la densité verte.



**Figure 37: Influence de la taille des particules, de la concentration en silice et de la densité verte sur la densité frittée simulée des poudres d'alumine artificielles précipitées.**

#### *Influence de la taille moyenne $d_{50}$ des particules*

Dans le cas des poudres artificielles précipitées, l'hypothèse des modèles [HE2001] et [GER96] issus de la littérature est vérifiée, comme le montre la Figure 37 : la densité frittée augmente lorsque les particules sont plus fines.

#### *Influence de largeur de la distribution en taille des particules $\sigma_g$*

La Figure 38 permet une bonne visualisation de l'influence de ce paramètre sur la densité frittée des poudres précipitées.

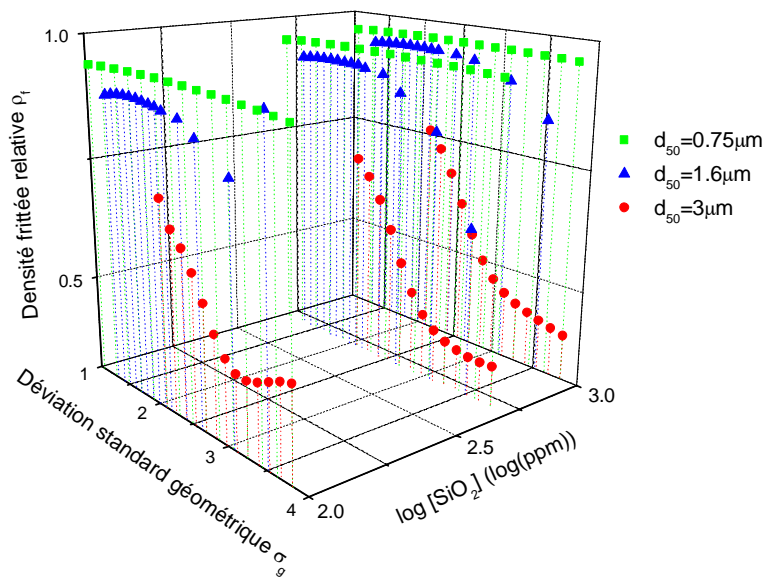
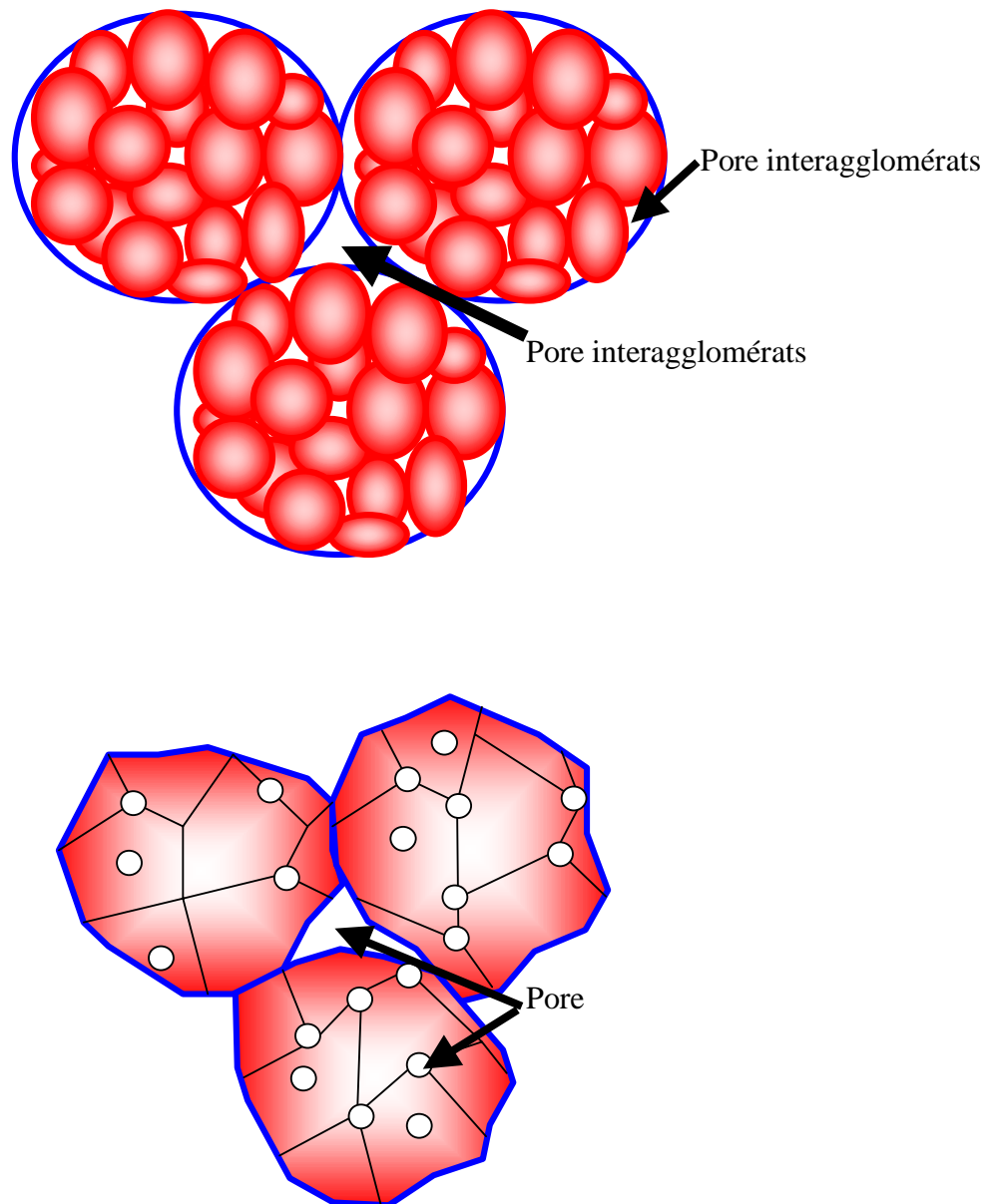


Figure 38: Influence de la déviation standard géométrique, de la concentration en silice sur la densité frittée simulée des poudres d'alumine artificielles précipitées.

2 tendances sont à dégager :

- pour  $d_{50} < 1\mu\text{m}$ , la densité frittée semble rester constante lorsque la largeur de la distribution en taille des particules augmente.
- pour  $d_{50} > 1\mu\text{m}$ , la densité frittée diminue lorsque la largeur de la distribution en taille des particules augmente. Ceci peut être attribué à l'agglomération des particules : en effet, plus la distribution en taille des particules est large, plus l'agglomération est forte, ce qui freine la densification lors du frittage.

Ces résultats sont en parfait accord avec la frittabilité des agglomérats. En effet, les particules primaires, formant les agglomérats, frittent entre elles pour donner des régions denses, laissant de larges pores interagglomérats, difficiles à fritter comme le montre le schéma ci-dessous.



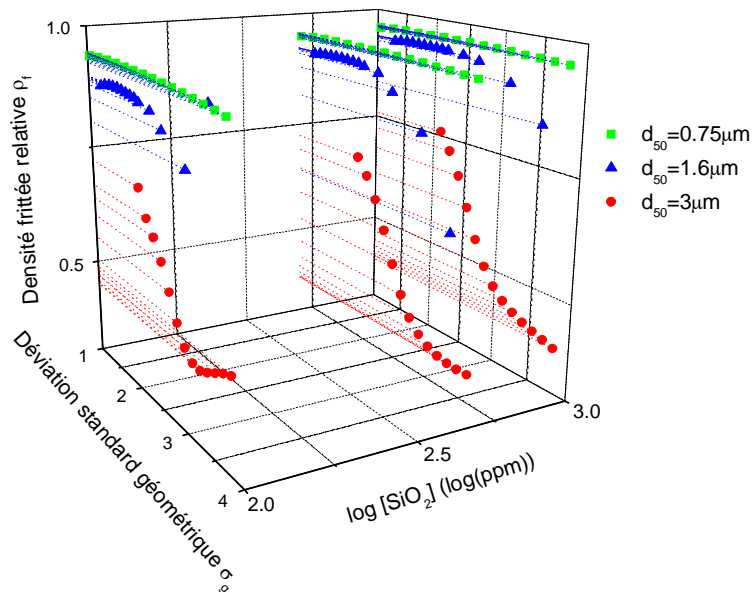
**Schéma 2 : effet de l'agglomération sur le développement d'une taille de pore bimodale, conduisant au retrait des petits pores et à la croissance des plus grands pores interagglomérats [GER96].**

Les pores intra-agglomérats tendent alors à disparaître pendant le frittage tandis que les pores interagglomérats croissent.

*Influence de la pureté de la poudre : influence de la concentration en silice*

La présence d'impureté et notamment celle de la silice favorise la frittabilité (cf. : § Influence de la pureté de la poudre : influence de la concentration en silice p.131).

Le graphe présenté sur la Figure 39 évalue l'influence de ce paramètre sur la densité frittée prédite par le réseau de neurones pour des poudres artificielles précipitées.

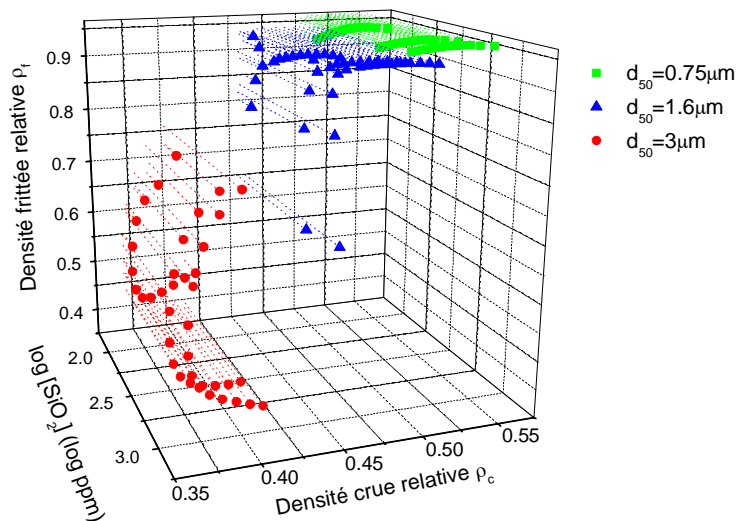


**Figure 39 : Influence de la déviation standard géométrique, de la concentration en silice sur la densité frittée simulée des poudres d'alumine artificielles précipitées.**

Une légère augmentation de la densité frittée, lors d'une concentration plus élevée en silice, est constatée sur la Figure 39. Cette tendance est donc en accord avec la théorie exposée ci-dessus.

*Influence de la densité crue après compactage*

D'après [GER96], plus la pression appliquée lors du compactage est forte, plus la densité verte augmente ainsi que le nombre de coordination et la taille des contacts entre les particules, tandis que le taux de croissance des cous et le retrait diminuent. Dans la plupart des cas, le compactage augmente la densification lors du frittage, la porosité verte étant réduite et la surface de contact entre les particules plus grande.



**Figure 40: Influence de la concentration en silice, de la densité crue relative sur la densité frittée simulée des poudres d'alumine artificielles précipitées**

D'après la Figure 40, les résultats prédits par le réseau de neurones semblent corrélés les hypothèses précédentes : pour une taille de particule fixe, la densité frittée est améliorée par un corps cru plus dense, et ce quelle que soit la concentration en silice.

Cette amélioration semble plus flagrante lorsque la taille moyenne  $d_{50}$  des particules augmente. Ce phénomène est probablement dû à une porosité verte très forte dans le cas des poudres très agglomérées ( $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ ) : le taux de densification lors du frittage y serait donc beaucoup plus important, mais la densité frittée finale de ces poudres resterait faible.

L'adage « Un bon corps cru donne un bon corps fritté » semble donc vérifié.

### 6.1.3.3. Conclusions sur les facteurs influant la densification frittée des poudres d'alumine

#### *Poudres Bayer*

L'influence de chacun des paramètres testés (valeurs d'entrée du réseau de neurones artificiels) sur la densité frittée des poudres de type Bayer est loin d'être simple à évaluer. Cependant, il ressort de cette étude plusieurs tendances:

- La taille médiane des particules semble jouer un rôle important: plus la poudre est fine, meilleures semblent les diffusions aux joints de grains et donc meilleure semble la densification. Cette tendance semble pouvoir se généraliser aux trois gammes de poudres étudiées.
- La tendance observée pour l'influence de la surface spécifique semble similaire: elle découle directement de l'influence de la taille médiane des particules, ces deux paramètres étant en totale dépendance. L'augmentation de la surface spécifique semble donc conduire à une meilleure frittabilité de la poudre.

Les autres tendances sont plus difficiles à mettre en évidence et dépendent de la gamme de taille médiane des particules.

- Pour la gamme  $d_{50}=0.75\mu\text{m}$ , les corps les plus denses semblent être obtenus pour de faibles largeurs de PSD, de faible densité crue (ces deux paramètres sont dépendants l'un de l'autre) et une forte concentration en silice.
- Pour la gamme  $d_{50}=1.6\mu\text{m}$ , la densité frittée semble insensible à la largeur de PSD et la meilleure frittabilité est obtenue pour les poudres ayant une forte densité crue couplée à une faible concentration en silice.
- Pour la gamme  $d_{50}=3.75\mu\text{m}$ , les résultats sont trop chaotiques pour pouvoir dégager des tendances caractéristiques.

### *Poudres précipitées*

Les tendances des paramètres testés semblent plus évidentes que pour les poudres type Bayer. Ainsi, l'étude de ces poudres précipitées conduit aux conclusions suivantes:

- La taille médiane semble influencer fortement la frittabilité: plus la poudre est fine, plus la densité frittée semble améliorée.
- La présence de silice semble légèrement favoriser la frittabilité.
- Un corps cru plus dense semble fritter plus densément.
- La sensibilité de la frittabilité à la largeur de la PSD semble différente selon la gamme de particules à laquelle le frittage est appliqué. Pour les poudres aux agglomérats primaires submicroniques ( $d_{50} < 1\mu\text{m}$ ), la densité frittée semble insensible à la variation de la déviation standard géométrique de la PSD. En revanche, pour les poudres dont  $d_{50} > 1\mu\text{m}$ , une PSD plus étroite semble favoriser une meilleure frittabilité.

### *6.2. Poudres de fer*

Dans la partie précédente (§Validation du NN), les limites de l'utilisation du réseau de neurones ont été atteintes: ce dernier s'est avéré inefficace pour prédire les densités tassées, vertes et frittées, ainsi que la courbe de densification verte et les duretés Brinell des corps frittés. L'apprentissage du réseau de neurones n'a pu être optimisé. Les simulations des densités de poudres artificielles, créées à partir des poudres réelles donnent donc des résultats aberrants, dont la présentation dans ce travail n'offre aucun intérêt.

## 7. CONCLUSION GÉNÉRALE

Le but de cette étude est de développer une meilleure compréhension des influences des caractéristiques d'une poudre sèche sur sa densification, lors de son empilement, son compactage et son frittage. Et ce, grâce à l'approche par réseaux de neurones artificiels et en s'appuyant sur les modèles de densification issus de la littérature.

Le travail, présenté ici, s'est appuyé sur une analyse des caractéristiques de poudres commerciales : une série de poudres d'alumine granulée (élaborées soit par procédé Bayer soit par voie chimique) et une série de poudres métalliques (fer pur et faiblement allié). A partir de cette base de données, des réseaux de neurones artificiels ont été éduqués et optimisés lors d'une phase d'apprentissage, puis utilisés pour prédire les densités tassée, crue et frittée de poudres d'alumine et de fer. Leur viabilité a été évaluée via la simulation de poudres-test.

L'utilisation de l'approche par réseaux de neurones a donné des résultats divergents, selon s'il était appliqué aux poudres céramiques ou aux poudres métalliques.

- Poudre d'alumine granulée : pour ce système spécifique, l'outil réseaux de neurones offre des résultats de prédiction de densités vertes et frittées acceptables. Les caractéristiques des poudres, choisies comme facteurs influents dans cette approche, se sont révélées suffisamment appropriées pour cette problématique. Cette approche permet alors de prédire correctement les densités verte et frittée de poudres sans autre expérience, à partir de caractéristiques facilement accessibles.
- Poudre de fer : pour ce type de poudres, par contre, le réseau de neurones artificiels s'est avéré non viable quelque soit la problématique étudiée, de la prédiction des densités vertes et frittées à celle de la dureté Brinell après frittage, en passant par celle de la courbe de densification verte. Plusieurs hypothèses sont soumises pour expliquer cet échec :
  - L'échantillonnage des poudres commerciales n'est pas optimal.
  - Les caractéristiques des poudres, choisies comme facteurs influents pour ce système spécifique, sont inadéquates et/ou insuffisantes.
  - Ces caractéristiques ont des valeurs trop proches les unes des autres (par exemple, les densités tassées relatives minimale et maximale sont respectivement 35.6% et 48.3%) : le domaine de valeurs n'est pas suffisamment large pour permettre l'optimisation du réseau de neurones.



La combinaison de ces hypothèses semble donc être néfaste à l'outil réseaux de neurones artificiels. Ces problématiques ont ainsi permis de mettre en évidence les limites d'un tel outil et les précautions à prendre lors de son utilisation.

L'approche par réseaux de neurones artificiels étant qualifiée de "viable" pour les systèmes spécifiques des poudres d'alumine granulée, elle a été combinée avec les modèles issus de la littérature, pour essayer de dégager les principales tendances et influences des caractéristiques d'une poudre sèche, agissant sur les mécanismes de densification verte et frittée. Il est à noter que cette approche ne peut être utilisée qu'au sein du domaine de validité défini par la gamme des caractéristiques des poudres d'apprentissage. Les conditions d'élaboration spécifiques utilisées dans cette étude ont permis une comparaison entre les modèles d'empilement de la littérature et les simulations de la densité verte des poudres d'alumine granulée. Les analyses ont été scindées en deux, l'une portant sur les poudres d'alumine de type Bayer, l'autre sur les poudres précipitées.

- Poudre de type Bayer: les tendances générales dégagées par l'approche neuronale ont corroboré les comportements lors des densifications verte et frittée de poudre, mis en évidence dans les modèles de la littérature.
  - Un accroissement de la largeur de la distribution en taille améliore la densité verte de la poudre. Il en va de même pour une augmentation de la taille moyenne  $d_{50}$  de la poudre.
  - Une surface spécifique BET plus grande (donc une taille moyenne  $d_{50}$  plus petite pour ce type de poudre peu agglomérée) améliore la frittabilité et donne des corps frittés plus denses. Les autres influences, comme par exemple celle de la concentration en silice, la densité verte ou la largeur de la distribution en taille, sont plus délicates à mettre en évidence via l'approche neuronale.
- Poudre précipitée: le comportement des poudres lors de leur densification verte et frittée a semblé en accord avec leurs caractéristiques intrinsèques.
  - La forte sensibilité à l'agglomération de ce type de poudre donne lieu à des tendances inverses à celle des poudres Bayer lors de la densification verte, et donc à celles des modèles de la littérature. Ainsi, plus la taille des particules augmente, plus la poudre est agglomérée, et moins elle se densifie lors du compactage spécifique appliqué dans cette étude. La densification verte a également semblé sensible à la déviation standard

géométrique: une distribution en taille des particules plus large subit plus fortement le problème de l'agglomération plus forte, ce qui conduit à un corps moins dense. Il est à noter que cette agglomération est à l'origine des densités vertes plus faibles pour les poudres précipitées que pour les poudres Bayer.

- Concernant la densification frittée, les influences des différentes caractéristiques de la poudre initiale sont en accord avec les modèles de la littérature. Ainsi, la taille moyenne s'avère être un facteur prépondérant: plus la poudre est fine, plus la frittabilité est améliorée. La présence de silice, de même qu'une forte densité verte favorisent également des corps frittés plus denses. Par contre, la sensibilité de la densité frittée à la largeur de la distribution en taille des particules n'a pas pu être mise en évidence.

Appliquée au système spécifique de l'alumine granulée, l'approche neuronale a donc permis de dégager et de mieux comprendre les influences de certaines caractéristiques de cette poudre sur leur densification verte et frittée. Ces influences sont en accord avec celles connues, issues de la littérature et les propriétés intrinsèques de ce type de poudre. De plus, cette approche offre un avantage non négligeable: il permet d'évaluer l'influence directe d'un paramètre unique, ce qui est rarement possible via les modèles de la littérature. Par exemple, l'influence directe de la concentration en silice sur la densité frittée peut être évaluée très facilement, sans autre expérience, en fixant les autres caractéristiques (valeurs d'entrée du réseau de neurones artificiel).

L'outil "réseaux de neurones artificiels" semble donc viable pour certaines problématiques et offre une contribution non négligeable à la compréhension de certains phénomènes physiques, et notamment celui de la densification des poudres d'alumine granulée. Bien entendu, cet outil nécessite un apprentissage et une utilisation rigoureux et ne peut être appliqué qu'à un système spécifique. Mais pour des entreprises spécialisées dans la technologie des poudres, il apporterait une aide précieuse au choix des poudres pour une application et un cahier des charges fixés: par une simple analyse de certaines caractéristiques physiques, une densité verte ou frittée pourrait, par exemple, être prédite, sans autre expérience nécessaire.

De nouvelles investigations pourraient être réalisées afin de permettre l'obtention d'un outil neuronal viable pour le système spécifique des poudres de fer.

## 8. ANNEXES

### *8.1. Les modèles de la littérature sur l'empilement, le compactage et le frittage de poudres multimodales*

#### **8.1.1. Densification lors de l'empilement des particules**

##### *8.1.1.1. Modèles expérimentaux, empiriques et semi-empiriques*

Dans les articles [ZOU2001, YU92A, AYE72, YU97, ZOK91], les modèles reposent sur l'étude expérimentale d'empilements de mélanges de grosses particules. Le rapport en taille des particules de chaque poudre monotaillée est optimisé afin d'obtenir la meilleure densité ou une densité définie. Ces modèles se limitent donc à l'empilement de mélange de grosses particules, sphériques ou non.

Dans l'article [ZOU2001], les particules sont des billes sphériques monotaillées de verre plombé, dont le diamètre est 250 ou 600 $\mu\text{m}$ .

Protocole expérimental: un mélange bimodal de ces deux sortes de particules est fabriqué et versé simultanément à un liquide dans un contenant. Ce dernier est soumis à une rotation permettant une distribution uniforme de liquide autour des particules. Le mélange est ensuite versé dans un récipient calibré, qui est ensuite pesé après que l'excès en particules ait été nivelé. Une pesée est également effectuée après séchage de la poudre.

Remarque: Ce protocole ne tient pas compte des effets de ségrégation selon la quantité de liquide utilisée.

La densité est étudiée en fonction du rapport des petites particules sur les grosses particules.

Les résultats observés sont similaires à ceux basés sur des empilements secs. Cette similitude permet l'application des modèles d'empilement secs sur les empilements humides.

Par exemple, l'équation empirique de Westman, énoncée ci-dessous, peut être utilisée pour un empilement binaire de particules sphériques ou non. Elle utilise la notion de volume spécifique. Ce volume spécifique dépend du rapport en volume, diamètre des petites particules sur les grosses et est inhérent au volume spécifique des petites et grosses (=volume spécifique pour des empilements de particules monotaillées).

$$\left(\frac{V - V_L X_L}{V_S}\right)^2 + 2G \left(\frac{V - V_L X_L}{V_S}\right) \left(\frac{V - X_L - V_S X_S}{V_L - 1}\right) + \left(\frac{V - X_L - V_S X_S}{V_L - 1}\right)^2 = 1 \quad (1)$$

où  $V$  est l'inverse de la densité d'empilement,  $X_S$  et  $X_L$  sont les fractions volumiques respectives des petites et grosses particules,  $d_S$  et  $d_L$  leur taille respective,  $V_S$  et  $V_L$  leur volume spécifique inhérent. Pour un empilement sec,  $G$  ne dépend que du rapport en taille  $r$  des particules, tandis que pour un empilement humide, il dépend également du taux d'humidité  $M$  et de  $d_S$  et  $d_L$ . Cette valeur de  $G$  est obtenue en ajustant l'équation de Westman aux résultats expérimentaux d'un empilement binaire pour une valeur  $M$  donnée.

⇒ une bonne description d'un empilement binaire de particules humides et notamment de l'influence du rapport en taille des particules sur leur densité d'empilement.

Limites: ce modèle n'est applicable que pour des grosses sphères. Le rapport  $d_{\text{petit}}/d_{\text{grosse}}$  ne doit pas être trop large ( $<0.824$ ) sinon l'empilement binaire est traité comme un empilement de particules monotallées.

Des empilements RLP binaire et ternaire de particules non-sphériques (billes de verre commerciales, sphériques et cylindriques) sont observés dans l'article [YU92A]. L'expérience est quasi similaire à celle de [ZOU2001] décrite précédemment, mais cette fois, l'empilement n'est pas effectué par voie humide. Ici, les auteurs mesurent la hauteur occupée par des particules dont le diamètre varie de 1 à 12mm.

La gravité et les effets de bord sont supposés être négligeables par les auteurs.

Les résultats sont les suivants:

- Empilement binaire :
  - la densité du mélange, cylindres + sphères de diamètre différent, augmente lorsque le diamètre des sphères diminue.
  - le comportement d'un mélange binaire de particules sphériques est similaire à celui d'un mélange binaire de particules non-sphériques (cylindres + sphères).
  - densité initiale (non sphérique) < densité initiale (sphériques) pour des sphéricités  $<0.8$
  - d'après Yu & Standish [ ]: 2 empilements sont observables lors du mélange
    - Etats non-mixés: des couches se forment
    - Etats mixés: une similarité existe entre les systèmes d'empilement de particules sphériques et non sphériques
- Empilement ternaire (combinaisons diverses de particules sphériques et non sphériques). Il existe là aussi une similarité entre les systèmes d'empilement de

particules sphériques et non sphériques. La densité maximale d'un empilement ternaire est supérieure à celle de l'empilement de chacun des composants. Cette densité est obtenue par une optimisation du mélange ternaire et du rapport en taille des composants.

Conclusions : un ajustement du rapport en taille des composants permet d'accéder à une densification plus importante de l'empilement, les petites particules s'insérant au sein des pores créés par les grosses.

Les auteurs de [AYE72] s'intéressent à un empilement RCP de sphères métalliques en terme de rapport de diamètres.

Le principe expérimental est simple: de gros composants monotallés (6.35mm, 3.18mm) sont versés dans un tube de compactage, lequel est soumis à une vibration (10min, 80coups,  $7g = 68.2m.s^{-2}$ ). La mesure de la hauteur et du poids stables permet l'accès aux densités d'empilement de la poudre. L'étude d'une poudre binaire est également effectuée: pour cela, la seconde partie est ajoutée durant la vibration (15min, 80cps, 7g). L'efficacité d'empilement est mesurée grâce au paramètre  $P_e$ , représentant la fraction volumique de vide disponible, occupée par de la matière solide.

Résultats:

- Pour un empilement de sphères de diamètre  $d$  dans un cylindre de diamètre  $D$ ,

$P_e = 0.635 - 0.216e^{-0.313\frac{D}{d}}$  (2). La valeur 0.635 est la densité limite pour laquelle les sphères remplissent l'espace vide. Elle correspond à la valeur de la densité RCP.

- Pour un empilement de sphères de diamètre  $d_1$  dans une matrice de sphères de

diamètre  $d_2$  ( $d_2 < d_1$ ),  $P_e = 0.635 - 0.737e^{-0.201\frac{d_1}{d_2}}$  (3)

L'efficacité d'empilement  $P_e$  peut être optimisée et atteindre une valeur maximale pour un certain rapport  $D/d$  ou  $d_1/d_2$ . Ces équations sont valables pour un système spécifique : elles voient leur paramètre modifié lorsque les formes des composants et du vide changent.

Le modèle semi-empirique linéaire d'empilement de particules fines Yu & Bridgewater [YU97] relie la porosité d'empilement au rapport volumique de gros composants d'un mélange binaire et bimodal de particules. Sa validité est prouvée par comparaison avec différents mélanges binaires expérimentaux de poudre d'alumine. Il décrit le volume spécifique  $V$  par l'équation ci-dessous:

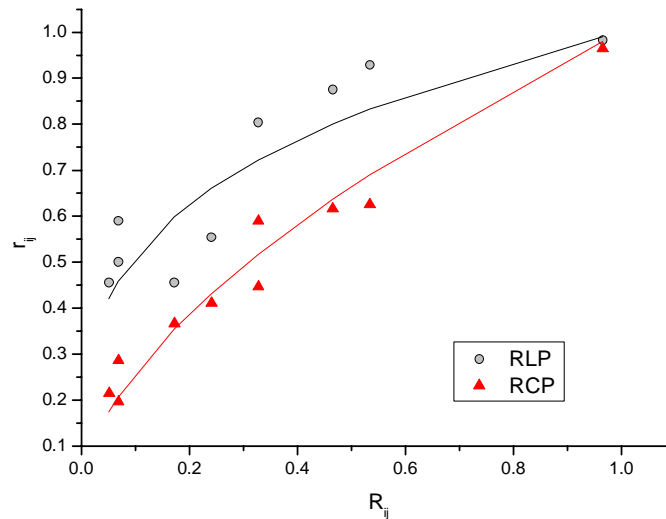
$$V = \max \{V_1^T, V_2^T, \dots, V_n^T\} = 1 - \varepsilon \quad (4)$$

$$\text{avec } V_i^T = \sum_{j=1}^{i-1} [V_j - (V_j - 1)g(r_{ij})]X_j + V_i X_i + \sum_{j=i+1}^n V_j [1 - f(r_{ij})]X_j \quad (5)$$

où  $V_i$  peut être déterminé grâce à la porosité initiale  $\varepsilon_i$ ,  $X_j$  est le volume solide fractionnel de la poudre  $j$ ,  $r_{ij}$  le rapport petit sur gros du diamètre d'empilement équivalent entre les composants  $i$  et  $j$  et  $f(r_{ij})$  et  $g(r_{ij})$  des fonctions d'interactions utilisées pour des particules sphériques.

$$f(r_{ij}) = (1 - r_{ij})^{3.33} + 2.81r_{ij}(1 - r_{ij})^{2.77} \text{ et } g(r_{ij}) = (1 - r_{ij})^{1.97} + 0.36r_{ij}(1 - r_{ij})^{3.67} \quad (6)$$

Le rapport  $r_{ij}$  des diamètres d'empilement équivalent entre les composants  $i$  et  $j$ , est dépendant du rapport correspondant aux diamètres de volume équivalent selon la relation:  $r_{ij} = f(R_{ij})$ , qui peut être développé empiriquement pour un type de mélange de poudres donné. La Figure 1 montre la détermination expérimentale de cette relation pour un mélange de poudres donné.



**Figure 1: Relation entre le rapport en taille de l'empilement  $r_{ij}$  et le rapport en taille mesuré  $R_{ij}$  d'empilements RCP et RLP [YU97].**

Pour un empilement RLP, cette relation est  $r_{ij} = R_{ij}^{0.293}$  (7). Pour un empilement RCP, elle est la suivante  $r_{ij} = R_{ij}^{0.593}$  (8).

La porosité d'empilement binaire, RCP et RLP, est calculée de 2 façons à partir de (11) et comparée aux valeurs mesurées expérimentalement :

- en utilisant le rapport des diamètres d'empilement équivalent  $r_{ij}$
- en utilisant le rapport des diamètres de volume équivalent  $R_{ij}$  (représentant le rapport médian des petits composants sur les gros)

La porosité expérimentale du mélange est prédite avec précision par le modèle linéaire modifié d'empilement, comme l'illustrent la Figure 2 et la Figure 3.

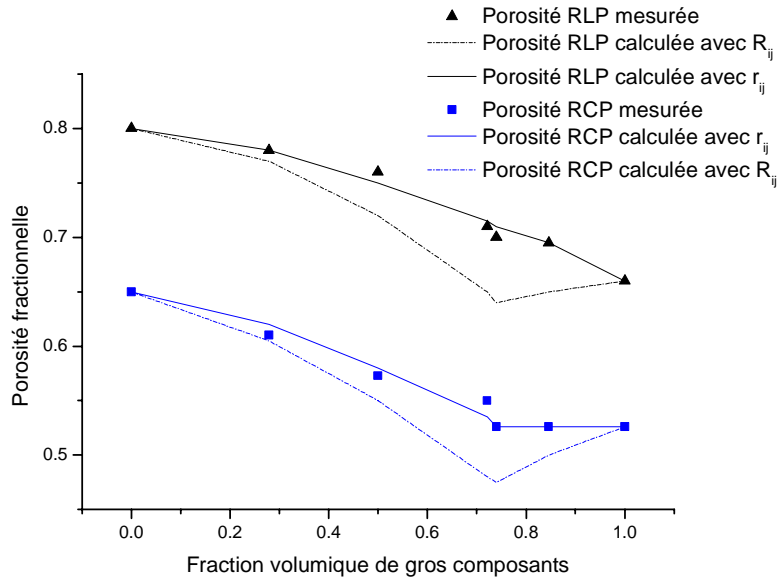


Figure 2: Empilement d'un mélange binaire avec  $R_{ij}=0.308$  [YU97]

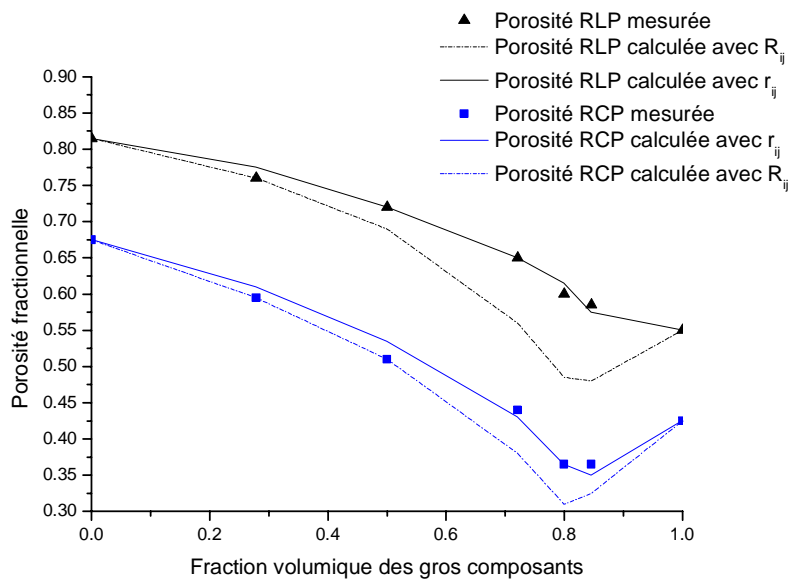


Figure 3: empilement d'un mélange binaire  $R_{ij}=0.057$  [YU97]

Une valeur minimale de la porosité fractionnelle est obtenue pour une fraction volumique donnée des gros composants. Il est à noter que si la relation  $r_{ij}=R_{ij}$  est utilisée, il existe une grande différence entre les porosités calculée et mesurée. Ce qui est attendu vu le type de poudre expérimentale (poudre d'alumine de ): les particules peuvent en effet facilement s'agglomérer, donc leur taille d'empilement diffère de celle mesurée à partir de particules individuelles. D'où l'intérêt de l'utilisation de  $r_{ij}$ , obtenu en minimisant l'erreur d'ajustement en terme de porosité.

Selon les auteurs, lorsque 2 composants sont mélangés et empilés, les petites particules non seulement remplissent le vide entre les grosses particules, mais collent aussi à la surface des grosses particules ou forment des agglomérats. Cela a pour conséquence d'augmenter l'espace entre les particules et induire une grande porosité. Plus la différence entre les tailles des particules est grande, plus ce comportement prédomine.

Par contre, la détermination de la porosité initiale en fonction de la sphéricité et du diamètre d'empilement équivalent reste difficile et limite le domaine d'applicabilité de ce modèle.

Les auteurs Zok & Lange [ZOK91] cherchent à modéliser la densité d'empilements de poudres composites à larges inclusions sphériques monotallées, dans des particules matricielles de plus petite taille.

La densité du composite est donnée par la relation suivante :

$$\rho_c = \frac{V_i + V_m}{V_i + V_m + V_v} \quad (9) \quad \text{où } V_i, V_m \text{ et } V_v \text{ sont les volumes respectifs des inclusions, de la}$$

matrice et du vide.

L'efficacité d'empilement est obtenue en comparant cette densité à celle de l'empilement idéal de Furnas présenté ci-après.

L'empilement idéal de Furnas est basé sur l'hypothèse de particules matricielles très petites par rapport aux inclusions. Il définit une fraction d'inclusion critique  $f_i^\circ$  pour laquelle les inclusions atteignent une densité  $\rho_c$  maximale.

$$f_i^\circ = \frac{\rho_i^0}{\rho_i^0 + (1 - \rho_i^0)\rho_m^0} \quad (10)$$

Deux cas se présentent alors :

- $f_i < f_i^\circ$  : la densité d'empilement de Furnas est alors

$$\rho_c^F = \frac{\rho_m^0}{1 - (1 - \rho_m^0)f_i} \quad (11)$$

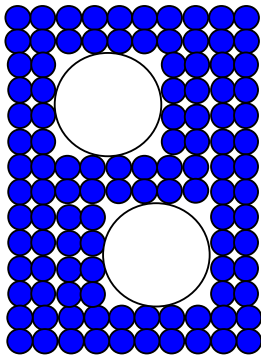
- $f_i > f_i^\circ$  : la densité d'empilement de Furnas est alors

$$\rho_c^F = \frac{\rho_i^0}{f_i} \quad (12)$$

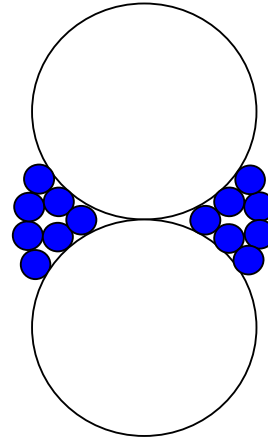
L'empilement maximal est obtenu pour  $f_i = f_i^\circ = 0.735$  et possède une densité  $\rho_c^F = 0.87$  (avec  $\rho_m^0 = \rho_i^0 = 0.64$ ).



La modélisation de la densité d'empilement du composite doit tenir compte de 2 effets : celui de la surface d'inclusion et celui des contacts d'inclusions. Comme le montre les deux schémas ci-dessous, il existe une interruption d'empilement à la surface d'une inclusion et au point de contact entre les inclusions.



**Schéma 1 : interruption dans l'empilement des particules autour des inclusions sphériques isolées**



**Schéma 2 : interruption dans l'empilement des particules au point de contact des inclusions**

**Figure 4: schémas de l'effet des surfaces d'inclusion et des contacts d'inclusions [ZOK91]**

- le volume de vide correspondant à l'effet de la surface des inclusions est  $v_w = N_s V_s N_i$  (13) où  $V_s$ ,  $N_s$  et  $N_i$  sont respectivement le vide associé à un site, le nombre de ces sites par inclusion et le nombre d'inclusions par unité de volume.
- le volume de vide correspondant à l'effet des contacts des inclusions est  $v_e = N_c V_e N_i$  (14) où  $V_e$ ,  $N_c$  et  $N_i$  sont respectivement le vide exclu par le point de contact, le nombre de ces contacts par inclusion et le nombre d'inclusions par unité de volume.

La densité d'empilement du composite est donc :

$$\rho_c = \rho_c^F - v_w - v_e \quad (15)$$

Ce modèle est valide pour les hypothèses suivantes :

- $f_i \leq 0.74$
- $0 < r = \frac{R_m}{R_i} \leq 0.1$  où  $R_m$  et  $R_i$  sont les rayons respectifs des sphères matricielles et des inclusions.

Dans ces conditions, il existe une bonne corrélation entre les valeurs théoriques et celles obtenues expérimentalement. Ce modèle est applicable aux inclusions de forme différente par une simple modification des contacts des inclusions. Il existe une valeur  $f_i$  pour laquelle la densité d'empilement est maximale.

Conclusion: pour tous ces modèles d'empilement multimodal, le rapport en taille et en volume des composants joue un rôle important sur la densité finale du mélange. Cette dernière peut être optimisée grâce à un ajustement de ce rapport.

#### 8.1.1.2. Modèles numériques et analytiques (assistés par ordinateur)

##### Les arrangements collectifs

Les auteurs de [DIN2000] s'intéressent au calcul de la fraction occupée en ligne directe  $L_L$ , égale à la fraction volumique de sphères  $V_V$  dans le volume initial.

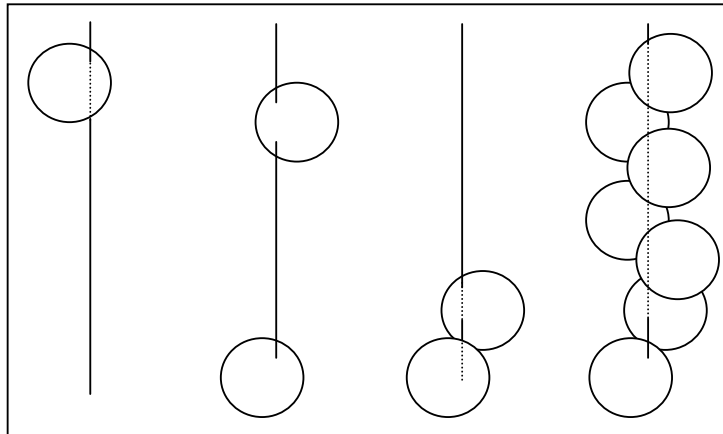
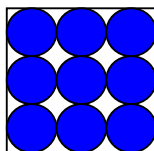


Figure 5: empilement de monosphères sur une ligne d'empilement [DIN2000].

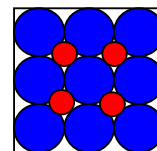
$L_L$  est définie comme :  $L_L = \text{longueur totale de la ligne occupée par les sphères} - \text{longueur totale exposée entre les sphères}$ .

Certaines caractéristiques peuvent être ajoutées, telles que l'effet du diamètre du contenant, la possibilité pour les billes de rouler, la perturbation du modèle d'empilement aléatoire initial. Cela conduit à une prédiction de porosités pour des distributions en taille continues, larges.

Les mélanges binaires, fines + grossières, sont également étudiés. Lorsque les fines sont ajoutées, les grosses particules définissent le volume apparent: les petites n'ont pas de contribution (elles s'infiltrent dans les pores) comme l'illustre le Schéma 3.



Volume apparent d'un empilement de grosses particules



Volume apparent d'un empilement binaire de grosses et fines particules

Schéma 3: Volume apparent d'un empilement monomodal de grosses particules et celui d'un empilement binaire et bimodal.

Le volume minimal apparent est atteint lorsque les petites remplissent totalement les pores des grosses.

L'équation de Westman et Hugill permet l'évaluation du volume apparent  $V_{aC}$  des grosses particules ( $V_{aF}$  pour les petites particules):

$$\begin{aligned} V_{aC} &= a_C x_C \\ V_{aF} &= x_C + a_F x_F \end{aligned} \quad (16)$$

où  $a_C$  ( $a_F$ ): volume apparent des grosses (petites) particules dans un empilement de poudre monodispersée,  $x_C$  ( $x_F$ ): fraction massique des grosses (petites) particules.

Le plus grand volume apparent calculé délimite le volume apparent  $V_a$  escompté pour un système bimodal.

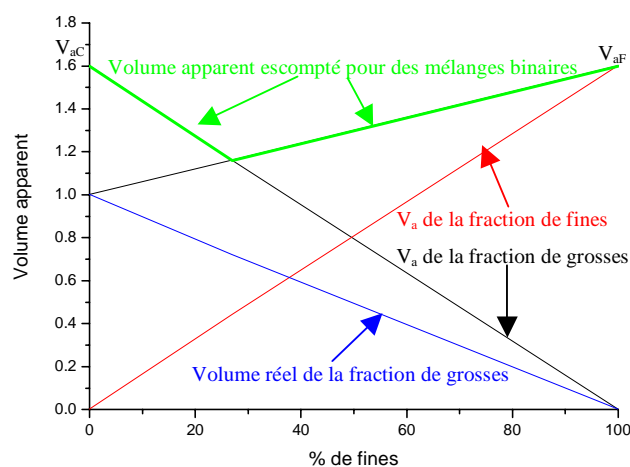


Figure 6: Solution graphique de Westman et Hugill montrant le volume apparent versus la composition pour une série de mélange petites/ grosses [DIN2000].

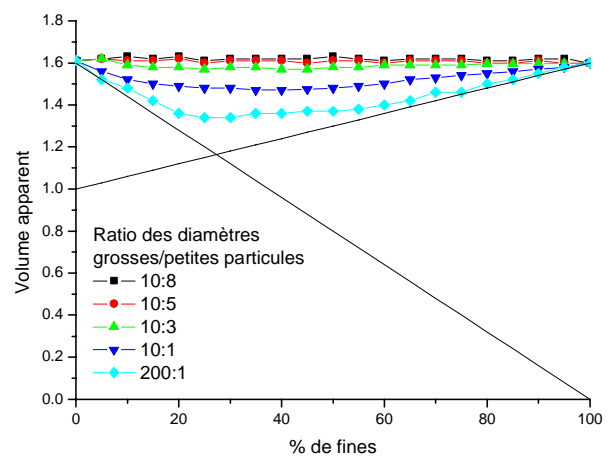


Figure 7: Résultats du modèle d'empilement 1D de particules pour des mélanges petites / grosses ayant des rapports de diamètre allant de 200:1 à des valeurs proches de 1:1 [DIN2000].

- la Figure 7 montre que lorsque le rapport des diamètres s'approche de 1, l'empilement ne devient pas plus dense, et ce pour aucune des compositions du mélange: ces mélanges deviennent donc bien monodisperses.
- les résultats obtenus par le modèle 1D sont proches de ceux obtenus par Westman & Hugill (cf.: Figure 6). Ce modèle semble donc satisfaisant pour prédire la densité d'empilement monomodale et bimodale.

Le système SPACE introduit dans [STR99] permet la génération d'empilement par ordinateur. L'hypothèse de départ est l'utilisation de particules sphériques afin d'annihiler l'effet de la forme.

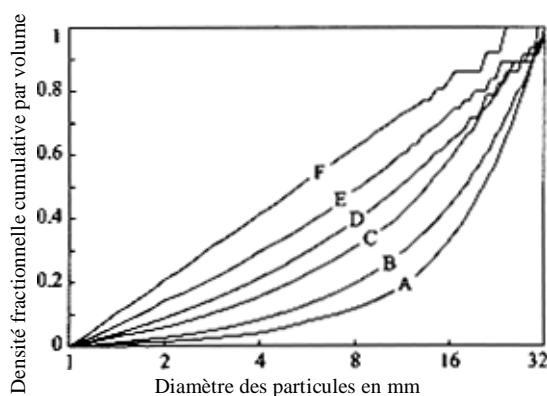
Des particules grossières de sable et de graviers (dont la taille varie de 1 à 32mm) procurent une comparaison expérimentale.

Le principe du système SPACE est le suivant:

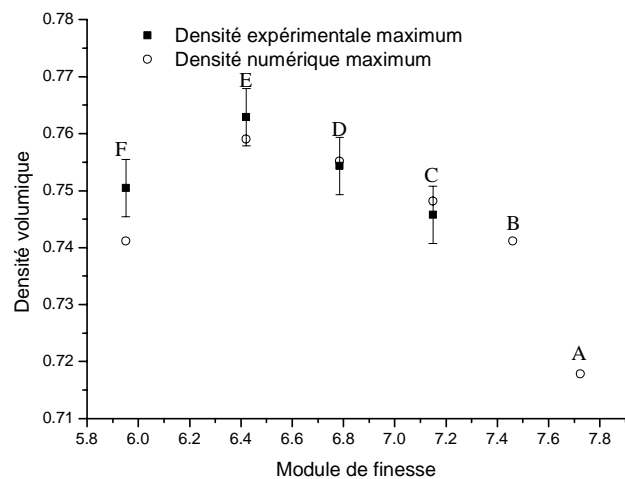
1. génération d'une distribution en taille des particules diluée aléatoire ou structuré 3D. Randomisation : vitesse linéaire et rotationnelle assignée à chaque élément.
2. modèle du mouvement Newtonien.
3. arrêt de l'itération lorsque certaines conditions sont atteintes.

Une modélisation fine de la distribution de densité proche de l'interface rigide est ainsi générée : la densité globale croît en flèche loin de l'interface et s'approche de la valeur à une distance de l'interface de l'ordre du diamètre de la particule.

Une optimisation de la densité d'empilement du mélange sable /graviers est obtenue en ajustant le rapport (module de finesse): SPACE est capable de prédire la densité maximale atteignable pour un matériau granulaire défini avec différentes distribution en taille des particules.



**Figure 8: fonction cumulative de la distribution en taille des particules pour des particules de 1 à 32mm sur une échelle semilogarithmique. Les mélanges définis par les courbes sont simulés par le système SPACE [STR99].**



**Figure 9: valeurs expérimentales et simulées de la densité maximale des mélanges indiqués sur la Figure 8, tracés en fonction du module de finesse; la gamme de taille des particules est de 1 à 32mm. [STR99]**

La Figure 9 montre que les résultats expérimentaux et simulés sont en bonne adéquation. Ainsi, la densité volumique maximale augmente avec la diminution du module de finesse (du mélange A au mélange E). La densité optimale est obtenue pour le mélange E puis elle chute pour le mélange F.

Cette modélisation semble donc performante pour simuler la densité volumique d'un empilement de matériau avec des distributions en taille différentes. Par contre, les particules sont supposées sphériques et l'effet de la forme n'est donc pas pris en compte dans ce modèle.

La simulation Monte-Carlo de la densité RCP de sphères est étudiée dans [SMI97C].

La génération de cet empilement est obtenue grâce au "Random Build Algorithm": une particule aléatoire (= placement et mouvement consécutifs de particules indépendantes) est placée, puis est soumise à un mouvement dans une direction aléatoire.

Pour un empilement de 2 tailles de sphères, le rapport de la taille des particules est donné par l'équation:

$$\text{Rapport de taille de particules} = 126(\rho)^2 - 133(\rho) + 35.5 \quad (17) \quad \text{où } \rho: \text{ densité fractionnelle.}$$

Une densité désirée est choisie : la simulation donne les rapports en taille des particules correspondants.

Cette modélisation permet donc d'optimiser le rapport des particules afin d'obtenir une densité d'empilement désirée.

Les auteurs de [DOD85] s'intéressent à la densité d'empilements structurés (cc, bcc, cfc par exemple) de sphères monotallées.

La fonction de distribution radiale et le nombre de coordination sont étudiés.

L'optimisation de la densité d'empilement est obtenue à l'aide du rapport en petites sphères dans un mélange binaire.

Cette étude reste trop éloignée de celle d'un empilement aléatoire pour la détailler plus précisément.

### Les algorithmes mathématiques

L'effet de la distribution en taille des particules sur l'efficacité d'empilement est observé dans [BIE74].

D'après le modèle de Lee, l'efficacité de l'empilement est donnée par la formule:

$$P_i = \sum_{j=1}^n \phi_j v_j \quad (18) \quad \text{où } \phi_j: \text{ coefficient d'empilement binaire et } v_j: \text{ la fraction volumique des}$$

particules de taille j.

En ajustant le rapport, la densité de l'empilement est optimisée.

Ce résultat est en accord avec ceux obtenus dans le paragraphe 8.1.1.1 Modèles expérimentaux, empiriques et semi-empiriques.

### 8.1.1.3. Conclusion

Le rapport en taille semble jouer un rôle important dans la densification d'empilement d'une poudre multimodale: la densité d'un mélange multimodal est supérieure à celle d'un empilement monomodal: les petites particules s'infiltrant au sein de la porosité des plus grosses particules. Il existe un rapport en taille et en volume optimal permettant l'obtention d'une densité d'empilement maximale.

## 8.1.2. Densification lors du frittage d'un corps vert

### 8.1.2.1. 1<sup>ère</sup> étape du frittage

L'auteur de [DOR2001] offre un comparatif de modèles décrivant les étapes initiales du frittage avec un système bimodal expérimental. Il utilise pour cela, une mesure in situ dans un dilatomètre d'un échantillon d'alumine.

Expérience: une poudre d'alumine précipitée possède une distribution en taille des particules bimodale :  $d_{50}(\text{fines})=0.8\mu\text{m}$  et  $d_{50}(\text{grosses})=5\mu\text{m}$ . Une poudre de fine est obtenue par centrifugation.

Des lits de poudres sont faits à partir de différents rapports 3:1, 1:1 et 1:3. De l'eau y est ajoutée en rapport massique 2:1 et les mélanges sont broyés dans un broyeur à billes. Puis ces mélanges sont séchés et broyés à sec pour casser les agglomérats. Une compression uniaxiale à 25MPa d'un cylindre de diamètre 25mm suit. La densité crue est déterminée à partir du poids et des dimensions de la pièce.

Cette pièce subit ensuite un cycle thermique complet: chauffage à 1560°C pendant 160min, puis refroidie. Les variations dimensionnelles de la pièce sont suivies in situ.

Pour confirmer la validité des résultats obtenus par ces observations in situ, 4 corps verts, issus des poudres initiales grossières et fines, subissent un cycle thermique identique (vitesses de chauffe et de refroidissement identiques) mais avec des paliers plus ou moins longs à 1560°C (0, 40, 80 et 120min). Leur densité frittée est déterminée à partir de la masse et des dimensions des corps.

Résultats:

- Densité verte:
  - Les poudres les plus grossières offrent les densités vertes les plus fortes, ce qui est dû à une diminution de la friction au sein du système de grosses particules.
  - En combinant des poudres fines et des poudres grosses, la densité augmente : les plus petites rentrent dans les interstices des plus grosses.

Une augmentation de la densité est observée lorsque la proportion de grosses particules augmente.

- Densité frittée: la densité finale augmente lorsque la proportion de petites particules s'accroît, ce qui provient de la meilleure frittabilité des petites particules.

#### Description de la courbe de frittage

1. la densité diminue doucement comme attendu lors de l'expansion thermique.
2. elle s'abaisse brusquement d'une petite quantité vers 600°C, puis continue à décroître avec la même vitesse que celle de l'étape 1.
3. entre 1300 et 1400°C, la densité augmente rapidement.
4. Pour une température proche de l'isotherme, le taux de densification augmente.
5. pendant l'isotherme, le taux de densification décroît graduellement avec le temps.
6. lors du refroidissement, la densité augmente plus que l'expansion thermique ne le prédit.

Notes: lorsque la proportion de grosses particules est augmentée, une densification plus faible et une initiation plus tardive deviennent plus fréquentes.

2 explications des différences, entre la théorie conventionnelle de frittage et les expériences lors des étapes 2 et 6, sont possibles.

- Etape 2: la différence résulte du relâchement des contraintes résiduelles introduites lors du pressage.

Etape 6: la différence résulte de la poursuite du frittage lorsque les échantillons sont refroidis, ce qui engendre des divergences entre la densité des échantillons ayant subi le cycle thermique complet, et celle des échantillons dont le test a été interrompu.

- Phénomène de rayonnement: les échantillons irradient de la lumière, ils apparaissent donc plus grands qu'ils ne le sont, ce qui induit des erreurs dans les mesures de leur dimension.

Les modèles de prédictions utilisés à titre comparatif dans cet article sont les suivants:

- Coble [COB73]: les effets de la taille des particules sur le comportement durant le frittage sont étudiés. Une solution analytique basée sur une hypothèse simple concernant la géométrie des cous est utilisée.
- German: la connaissance de la densification des particules fines et grossières permet d'accéder à la prédiction de la densité frittée d'une poudre bimodale.

$$\frac{\Delta L}{R_L} = A \left( \frac{t}{R_L^4} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (19)$$

où  $\Delta L$ : retrait linéaire,  $R_L$ : taille des grosses particules,  $t$ : temps,  $A$ : constante dépendante de  $T$  et  $n$ : exposant temporel dépendant des mécanismes actuels du transport de matière.

- Pour Bouvard & Mc Keeting [BOU96],  $3 < n < 4$  pour les frittages contrôlés par la diffusion aux joints de grains, et la diffusion en surface. Les résultats numériques de Pan *et al* [PAN98] pour des particules de taille différente sont en accord avec ce résultat.
- Pan *et al.* [PAN98] modélisent le frittage de 2 particules de taille différente en utilisant une technique de différence finie. Leurs résultats numériques suggèrent que l'équation de frittage entre 2 particules identiques peut être utilisée pour des particules de taille différente. La densification des poudres bimodales est obtenue par l'équation suivante:

$$1 - \left( \frac{\rho_i}{\rho} \right)^{\frac{1}{3}} = \frac{1}{2} \chi(R_r, V_{f_{R_s}}) A_p \left( \frac{t}{R_L^4} \right)^{\frac{1}{n}} \quad (20)$$

où  $A_p$  est une fonction de la température et des propriétés du matériau et  $\chi(R_r, V_{f_{R_s}})$  est une constante dépendant du rapport en taille petites sur grosses particules  $R_r = R_s/R_L$  et de la fraction volumique des petites particules  $V_{f_{R_s}}$ . Ce modèle décrit l'étape initiale du frittage avant celle de l'interaction des cous des particules voisines. Une fois l'interaction des cous initiée, la réduction du taux de densification provient de la réduction des forces motrices. Hypothèse du modèle de Pan *et al.*: le comportement net du retrait est modélisé par une chaîne de particules  $\Rightarrow$  cette technique ne peut pas prendre en compte l'occupation des interstices par de petites particules, lorsque la concentration en grosses particules est forte.

### 8.1.2.2. Conclusion

La densité frittée augmente lorsque la proportion de petites particules augmente (car la frittabilité des petites particules est meilleure).



## 8.2. Tableaux récapitulatifs des modèles de la littérature

## 8.2.1. Modèles d'empilement

Facteurs influents	Article	Forme	Distribution	Taille	Résultats et Applicabilités
Sphéricité	GER89	Non-sphérique	Monotaillée		La déviation de la forme sphérique tend à augmenter la porosité de l'empilement aléatoire
	BRO50	Non-sphérique	Monotaillée		$\varepsilon(\psi) = \varepsilon_s^{1.785\psi^{1.584} - 0.785\psi^{4.897}}$
	YU93	Non-sphérique	Monotaillée		
	YU92B	Non-sphérique	Monotaillée		$\varepsilon(\psi) = \varepsilon_s^{15.521\psi^{3.853} - 14.521\psi^{4.342}}$
	ZOU96	Cylindres et disques	Monotaillée		$\ln \varepsilon_{cylinder} = \psi^{6.74} \exp[8(1-\psi)] \ln$ $\ln \varepsilon_{disk} = \psi^{0.63} \exp[0.64(1-\psi)] \ln$ pour RCP $\ln \varepsilon_{cylinder} = \psi^{5.58} \exp[5.89(1-\psi)]$ $\ln \varepsilon_{disk} = \psi^{0.6} \exp[0.23(1-\psi)^{0.45}]$ pour RLP
	PHI96 PHI97	bâtonnets	monotaillée		$\bar{\rho} = \frac{2 < c >}{v_{ex}}$
	KNI2001	Irrégulière et sphérique	Monotaillée		$\rho_b = \rho_c (1 - \varepsilon_b)(1 - \varepsilon_a)$ irrégulière: $\varepsilon_b=0.5$ , sphérique: $\varepsilon_b=0.4$ $\varepsilon_a < 0.2$ pour compactage à sec $\varepsilon_a=0.05-0.2$ granulation par voie humide
SMI97A	Irrégulière	aléatoire		$fd=0.0014\eta^2-0.0427\eta+0.696$ , avec $\alpha=-0.0819\eta^2+0.28\eta+1.04$ .	
Rapport des particules	ZOU2001	sphérique	Bimodale		Empilement humide. Grosses sphères, rapport $d_{petit}/d_{gros} < 0.824$ . Résultats similaires à ceux obtenus pour empilements secs.
	ZOK91	composite: sphères matricielles + larges inclusions sphériques	inclusions et matrice monotaillées	inclusions larges, matrice fine	$\rho_c = \rho_c^F - v_w - v_e$

	YU97		bimodale	gros composants	
	YU92A	Sphères + cylindres	Trimodale	$d > 1\text{mm}$	Comportement particules sphériques similaire à celui particules non-sphériques. Densité augmente lorsque le diamètre des sphères diminue.
	AYE72	Sphères	Monotaillée et bimodale	6.35mm, 3.18mm	RCP sphères métalliques
	DIN2000	Sphères	Binaire		Simulation empilement binaire Equation de Huggill & Westmann: $V_{aC} = a_C x_C$ $V_{aF} = x_C + a_F x_F$
	STR99	Sphères		1 à 32mm	Densité optimale pour un module de finesse proche de 6.4
	SMI97C	Sphères			Rapport de taille des particules = $126(fd)^2 - 133(fd) + 35.5$ où fd: densité fractionnelle
	DOD85	Sphères	Monotaillées Structurés (non aléatoires) Binaire		optimisation de la densité d'empilement à l'aide du rapport des petites sphères dans mélange binaire
<i>Taille moyenne <math>d_{50}</math></i>	SUZ2001	sphérique (silice) et irrégulière (cendres volantes)	Large	$< 70\mu\text{m}$	Porosité de RCP et RLP diminue avec augmentation de $d_{50}$ Porosité de RCP et RLP diminue avec distribution en taille plus large
	WAK75	Sphérique (billes de verre)			Porosité de RCP et RLP diminue avec augmentation de la taille
	YU97	Alumines blanches fondues	Fonction de distribution de Johnson	$d_{\text{max}} < 250\mu\text{m}$ $d_{50} < 80\mu\text{m}$	Porosité de RCP et RLP diminue avec augmentation de $d_{50}$ $V_i^T = \sum_{j=1}^{i-1} [V_j - (V_j - 1)g(r_{ij})]X_j +$
	YAN2000	sphères	monotaillée	1-100 $\mu\text{m}$	DEM. Porosité diminue lorsque la taille augmente
<i>Distri butio n en taille</i>	DEX72	Sphérique (billes d'acier)	Log-normale	0.238 à 1.746cm	$\rho = \rho_0 + m\sigma$ où $\rho_0 = 0.591$ et $m = 0.074$

	SUZ2001	Irrégulière (silice et cendres volantes)	Log.normale	<50µm	Porosité diminue avec augmentation de la largeur de la distribution en taille $\varepsilon_j = \beta_j \sum_{k=1}^m S a_k \varepsilon_{j,k}$ et $\varepsilon = \sum_{k=1}^m S v_k \varepsilon_k$ pour multicomposants
	SER2002				$\frac{CPFT}{100\%} = \frac{D^m - D_S^m}{D_L^m - D_S^m}$ , équation correcte seulement si $m < 0.37$
	SOH68	Non-sphérique (sables)	Log-normale	0.3, 0.5, 1 et 2mm	Porosité RCP diminue avec distribution en taille plus large
	NOL94	Sphères	large		remplissage des interstices par une sphère
	NOL93	Sphères	Lognormale, aléatoire		Porosités RCP et RLP diminuent avec distribution en taille plus large
	BEZ2002	Sphères	Log-normale		Porosité diminue avec distribution en taille plus large
<i>Nombre de coordination</i>	ZAA2001	Non sphérique(=assemblage de sphères)			Densité d'empilement augmente avec le nb de coord
	IWA74	sphères	monotaillée		empilement aléatoire obtenu en ôtant des sphères d'un empilement ordonné. étude de la distribution du nombre de coordination.
	ZHA2001	Sphères	Monotaillée	10mm	$\bar{N} = \frac{1}{0.183 - 659.248 \rho^{20.961}}$ , valeur max de $\rho = 0.626$
<i>Descriptifs</i>	CES	Disques et sphères			3 modes d'empilement: mode d'adhésion: Densité relative(disques 2D)=51% rotation simple: Densité relative(disques 2D)=75.7% rotation multiple: Densité relative(disques 2D)=80.2%
	LOH95	Pores cylindriques			But: obtenir la distribution en taille des particules des matériaux poreux
	MET99	Sphères	monotaillée		Influence des dynamiques lentes: RLP -> RCP après vibration

<b>Algorithmes mathématiques</b>	BIE74		Binaire		efficacité d'empilement $P_i = \sum_{j=1}^n \varphi_j v_j$
	AGI84	Sphères			distribution en taille des particules plus large donne une distribution en taille des pores plus étroite
	GUP79		multicomposants	Grosses (terre naturelle)	2 possibilités pour une particule: être un donneur ou un accepteur

### 8.2.2. Modèles de compactage

Facteurs influents	Article	Forme et mise en forme	Distribution	Taille	Résultats et Applicabilités
<b>Alumine</b>	BRI97	Spray-drying puis compactage uniaxial		$d_{50} < 3\mu\text{m}$ Granules de 53 à 212 $\mu\text{m}$	Procédé humide
	FRE	Compactage uniaxial		$d_{50} < 3\mu\text{m}$ Granules de 53 à 212 $\mu\text{m}$	Procédé humide
	LUK78	Compactage uniaxial	Log-normale Alumine massique monomodale Alumine agglomérée bimodale		Poudres plus fines => densités massiques plus faibles Agglomération => retard de la réponse de compactage (dû aux agrégats de cristallites à l'intérieur des agglomérats)
	SHU2002	Spray-drying puis compactage uniaxial ou CIP		alumine allongée alumine sphérique	Pressage uniaxial: forte augmentation de la densité. Gradient de densité différent pour chaque poudre CIP: Gradient de densité similaire pour chaque poudre. densité sphères plus élevée
	TAR96	sphères CIP ou coulage en barbotine	bimodale (rapport grosses/fines = 7/3) étroite pour grosses et large pour fines	grosses: $d_{50} = 4.6\mu\text{m}$ fines: $d_{50} = 0.51\mu\text{m}$	CIP: taille des pores = 0.1 à 0.5 $\mu\text{m}$ coulage: taille des pores < 0.2 $\mu\text{m}$ et distribution + étroite

<b>Métaux</b>	PAG96	HIP composite		Fer: 75-150µm TiC: 5.6-22.5µm	Densité relative de la phase matricielle dans le composite: $\rho_m = \frac{(1-f)\rho_c}{1-f\rho_c} \rho_c$ : la densité relative du composite et f: le pourcentage volumique des particules de renfort.
	POQ2002	Sphérique et irrégulière Compactage uniaxial		S: agglomérats (15µm) de cristallites (0.5 à 1µm) E: agglomérats (30µm) de cristallites (1 à 2µm)	Densification en 3 étapes: Déformation élastique: $e = e^0 - \kappa \log_{10}(P_c)$ où $\kappa=0.2$ Réarrangement des particules: $P_{i0}=12+e^0$ $e = e(P_{i0}) - \lambda \log_{10}\left(\frac{P_c}{P_{i0}}\right)$ $\lambda = \frac{e^0 - 3.5}{1.48 - \log_{10}(P_{i0})}$ déformation plastique: $\rho = \rho_1 + \alpha(P - P_1)^n$ où $P_1$ et $\rho_1$ : pression et densité à la fin de l'étape 2, $\alpha$ : capacité du matériau à se déformer et n: coefficient de durcissement =0.55 pour le fer).
	KIM2001	Compactage uniaxial		100nm et 2.3mm	Modèle de plasticité des matériaux poreux
	SMI98	Compactage uniaxial			Modèle de plasticité des métaux poreux (ABAQUS) Système KBS
<b>Autres poudres</b>	BOU2001	Compactage uniaxial	Bimodale	Fécule : 20µm Aspirine: 180µm	Modèles quasi-chimiques $C_m^{-1} = v_A C_A^{-1} + (1 - v_A) C_B^{-1} v_A$ : fraction volumique de A, $C_A$ et $C_B$ : densité d'empilement de, respectivement, A et B (déterminée expérimentalement via $a_A$ et $Kr_A$ ).
	KIM2002	Compactage à froid			
	FOU2002	Granulation ou séchage par atomisation Compactage uniaxial			Poudre granulée: forte augmentation de la densification au-delà d'une pression seuil 8= réarrangement macro) Poudre atomisée: densification lente et progressive
	ZAH2001				

<i>Modèles théoriques et numériques</i>	PAN2001			<p>Balshin: <math>\frac{1}{D} = A \ln P + B</math> où  A: module de pression</p> <p>Heckel: <math>\ln\left(\frac{1}{1-D}\right) = AP + B</math> où  A représente la capacité d'un corps à se densifier par déformation plastique, et B le degré d'empilement atteint à basses pressions, dû au réarrangement des particules, avant qu'une quantité non négligeable de ponts interparticulaires ne se forme.</p> <p>Kawakita &amp; Lüdde:  <math display="block">\frac{D}{D - D_0} = \frac{A}{P} + B</math></p> <p>Ge: <math>\log\left[\ln\frac{1}{1-D}\right] = A \log P + B</math></p> <p>Ambrozio Filho &amp; Panelli:  <math display="block">\ln\left[\frac{1}{1-D}\right] = A\sqrt{P} + B</math> où A représente la capacité de la déformation plastique et B, la densité en l'absence de pression.</p>
---	---------	--	--	---

	COC2001 et SUN99			<p>Modèle de plasticité incrémentale:</p> <p><u>Shima:</u></p> $\left[ \frac{q}{\sigma_m} \right]^2 + 2.49^2 (1-D)^{1.028} \left[ \frac{p}{\sigma_m} \right]^2 -$ <p>où p: pression hydrostatique, q: contrainte équivalente de Mises, D: densité relative, <math>\sigma_m</math>: contrainte flexible de la matrice.</p> <p><u>Fleck:</u></p> $\left[ \frac{\sqrt{5p}}{3p_y} \right] + \left[ \frac{5q}{18p_y} + \frac{2}{3} \right]^2 - 1 = 0 \quad \text{où}$ $p_y = 2.97D^2 \frac{(D-D_0)}{(1-D_0)} \sigma_m \quad \text{et}$ <p><math>D_0</math>=densité relative initiale</p> <p><u>Cam-Clay:</u></p> $\frac{1}{\beta^2} \left[ \frac{p}{a} - 1 \right]^2 + \left[ \frac{t}{Ma} \right]^2 - 1 = 0 \quad \text{où}$ $t = \frac{q}{g'}, \quad g' = \frac{2K}{1+K+(1-K)\left(\frac{r}{q}\right)^3}$ <p>et <math>a = \frac{P_c}{(1+\beta)}</math></p> <p>Le modèle micromécanique: lui et al., Akisanya et al., Cocks. Le modèle des états de contraintes hydrostatiques: Helle et al. Le modèle quasi-chimique</p>
	KEN96	matériaux granulaires		<p>réarrangement:</p> $f_1 = cste \left[ 1 - \exp\left(-\frac{P}{P_l}\right) \right]$ <p>remplissage du vide:</p> $f_2 = cste \exp\left(-\frac{P_a}{P}\right) \quad \text{d'où la}$ <p>densité</p> $\rho = \frac{\rho_0}{1 - \left(\frac{\rho_\infty - \rho_0}{\rho_\infty}\right) \left\{ \left[ c \left( 1 - \exp\left(-\frac{P}{P_l}\right) \right) \right] + (1-c) \exp\left(-\frac{P_a}{P}\right) \right\}}$

	SWE	RCP de sphères DEM (voxelisation)	monotaillée		Observation de l'évolution de deux types de pores pendant le compactage. Taille moyenne des pores de chambre=1.33 taille moyenne des pores de gorge. Ecart augmente lorsque pression appliquée augmente.
--	-----	-----------------------------------	-------------	--	--

### 8.2.3. Modèles de frittage

Facteurs influents	Article	Forme et mise en forme	Distribution	Taille	Résultats et Applicabilités
1 <sup>ère</sup> étape	DOR2001	Compactage uniaxial Dilatométrie	Bimodale	$d_{50}(\text{fines})=0.8\mu\text{m}$ $d_{50}(\text{grosses})=5\mu\text{m}$	Densité frittée augmente quand proportion de fines augmente. Descriptif de la courbe de frittage
	FOU2002	Poudres granulées A et spray-dried B Compactage uniaxial Frittage à +95%	Large	$d(\text{aggrégats de A})<80\mu\text{m}$ $d(\text{aggrégats de B})<400\mu\text{m}$	Simulation de la déformation des pilules: évaluation du retrait radial et du diamètre final
	HE2001	Compactage uniaxial 2 frittages		$d_{50}(\text{fines})=0.9\mu\text{m}$	Energie d'activation de la densification $\dot{\epsilon}_0 = \dot{\epsilon}_{00} \exp\left(\frac{-Q_d}{RT}\right)$ Energie d'activation de la croissance des $\dot{L}_0 = \dot{L}_{00} \exp\left(\frac{-Q_g}{RT}\right)$
2 <sup>ème</sup> étape	SHI98				Distribution en taille des particules fine et uniforme prolonge l'étape intermédiaire
	COC2001		Distribution aléatoire de particules sphériques		
3 <sup>ème</sup> étape	HAR				$\frac{d \ln \rho}{dt} = cst \left[ \frac{1}{\rho} \frac{D_L \gamma_{s/v} \Omega}{G^3 RT} \right]$ $\frac{d \ln G}{dt} = cst' \left[ \frac{D_s \delta_s}{RTG^4} \frac{\gamma_{gb} \Omega}{(1-\rho)^{1/3}} \right]$



	SHI98	Compactage uniaxial Différents frittages	TPS: étroite et fine ( $\rho_v=65\%$ ) TPL: large ( $\rho_v=58\%$ )	$d_{50}=32\mu\text{m}$	Distribution plus large =>apparition plus facile des pores aux joints =>prise au piège plus facile => croissance des grains fortement améliorée <u>Liu &amp; Patterson:</u> TPS: pas de pore aux joints TPL: $\rho_f<92\%$ : aucun pore aux joints mais micro non uniforme $\rho_f<92\%$ : pores côte à côte et piégés dans les grains
	COC2001		Distribution régulière de pores monotallées		
	DU2001	Fil en alumine par procédé CFF	bimodale	$0.1\mu\text{m}$	Elimination des agglomérats et grands pores avec un nb de coord élevé. <u>Lange:</u> élimination des pores possible uniquement si nb de coord des pores inférieur à valeur critique déterminé par le relation de Young
	CIS96	agglomérats irréguliers CIP ou coulage en barbotine frittage	large	$d_{50}=0.25\mu\text{m}$ et $d_{\text{max}}=0.7\mu\text{m}$ agglomérats:10 à $20\mu\text{m}$	densité verte: CIP: distribution des pores monomodale coulage: distribution des pores plus étroite et bimodale influence de la densité verte sur frittage: augmentation de densité verte augmente densité frittée et diminue retrait final. densification plus faible pour poudres coulées (fissures)
Frittage de composites	BOU2001	Frittage par voie liquide			Plus la taille des particules diminue, plus le taux de densification augmente.
	PAG96	HIP	bimodale	TiC: 5.6-22.5 $\mu\text{m}$ Fe: 60wt% <75 $\mu\text{m}$ +40wt%:75-150 $\mu\text{m}$	La présence des renforts gêne la densification

	GAS2000	CIP puis frittage			Simulation par FE (ABAQUS) de la forme et des variations de contraintes pendant le frittage de corps crus. Basé sur théorie thermique élastoviscoplastique
--	---------	----------------------	--	--	--

### 8.3. Poudres commerciales utilisées pour l'apprentissage du réseau de neurones

#### 8.3.1. Poudres d'alumine

	méthode	d <sub>90</sub>	d <sub>50</sub>	d <sub>10</sub>	BET	d <sub>90</sub> -d <sub>10</sub>	σ <sub>g</sub>	[SiO <sub>2</sub> ]	ρ <sub>crue</sub>	ρ <sub>frittée</sub>
	10	10,8	4,7	1,6	0,7	9,2	1,997	790	2,35	2,88
	10	10,8	4,36	0,87	2,5	9,93	2,059	2400	2,5	2,97
	10	18,9	12,5	3,9	0,4	15	1,347	620	2,41	2,8
	10	2,6	0,9	0,4	5,74	2,2	2,518	140	2,33	3,5
	1	14,4	6,8	1,3	15,5	13,1	1,775	100	1,41	2,47
	10	11,4	2,8	0,6	2,1	10,8	3,280	540	2,61	3,22
	1	9,8	3,3	0,8	16,5	9	2,471	120	1,47	2,66
	10	7,7	3,6	0,9	2,07	6,8	1,827	150	2,57	2,97
	10	8,7	2,7	0,5	7,3	8,2	2,613	170	2,5	3,24
	10	1,6	0,7	0,3	6,29	1,3	2,022	400	2,33	3,73
<i>Test 3</i>	<i>10</i>	<i>9,7</i>	<i>3</i>	<i>0,8</i>	<i>1,21</i>	<i>8,9</i>	<i>2,692</i>	<i>1100</i>	<i>2,37</i>	<i>2,8</i>
	10	11,4	3,3	0,95	1,2	10,45	2,879	20000	2,39	3,41
	10	9,9	3,25	0,9	1,83	9	2,555	44000	2,39	3,58
	10	0,96	0,46	0,2	7,5	0,76	1,860	150	2,33	3,84
	10	1,6	0,75	0,3	21,1	1,3	1,887	260	2,14	3,8
	10	8,31	3,5	1,07	4,4	7,24	2,043	620	2,42	2,44
	10	2,13	0,8	0,36	8,2	1,77	2,337	100	2,37	3,73
	10	2,23	0,76	0,36	8,25	1,87	2,567	7400	2,3	3,77
	1	3	1,1	0,4	8,9	2,6	2,352	45	2,26	3,86
	1	4,6	1,62	0,6	20	4	2,445	41	1,87	3,66
	1	13,3	2,33	0,6	26	12,7	4,547	117	1,84	3,65
	1	4,48	1,62	0,52	6,5	3,96	2,361	880	1,99	3,24
<i>Test 2</i>	<i>1</i>	<i>3,7</i>	<i>1,6</i>	<i>0,6</i>	<i>14</i>	<i>3,1</i>	<i>2,024</i>	<i>490</i>	<i>1,85</i>	<i>3,65</i>
	1	4,55	2	0,68	24	0,87	1,9788	410	1,85	3,66
	1	1,5	0,55	0,15	7,4	1,35	2,303	90	2,2	3,66
	1	0,6	0,25	0,15	10,4	0,45	2,168	103	2,18	3,83
	1	0,6	0,25	0,15	11,7	0,45	2,168	220	2,02	3,82
	1	1,4	0,6	0,4	13,4	1	2,128	83	2,18	3,78
	10	4,9	2,5	0,8	1,49	4,1	1,716	21000	2,37	3,5
<i>Test 1</i>	<i>10</i>	<i>1,8</i>	<i>0,7</i>	<i>0,3</i>	<i>8,9</i>	<i>1,5</i>	<i>2,255</i>	<i>220</i>	<i>2,33</i>	<i>3,77</i>
	1	4,3	1,7	0,55	8,7	3,75	2,175	920	1,96	3,52

Le paramètre "méthode de fabrication" vaut 1 pour la voie chimique et 10 pour la méthode Bayer.

#### Domaine de validité : Minima & Maxima

	d <sub>90</sub>	d <sub>50</sub>	d <sub>10</sub>	BET	d <sub>90</sub> -d <sub>10</sub>	σ <sub>g</sub>	[SiO <sub>2</sub> ]	ρ <sub>crue</sub>	ρ <sub>frittée</sub>
<i>Bayer</i>	0,96	0,46	0,2	0,4	0,76	1,347	100	2,14	2,44
	18,9	12,5	3,9	21,1	15	3,280	44000	2,61	3,84
<i>Précipitées</i>	0,6	0,25	0,15	6,5	0,45	1,775	41	1,41	2,47
	14,4	6,8	1,3	26	13,1	4,547	920	2,26	3,86

La concentration en silice sera exprimée en log (ppm) pour éviter trop d'ordres de grandeur entre les valeurs d'entrée (inputs).

Ainsi, un seul ordre de grandeur existe entre les neurones d'entrée et de sortie.

### 8.3.2. Poudres métalliques

%CE	d <sub>50</sub> grand pic (µm)	d <sub>50</sub> petit pic (µm)	σ <sub>g</sub>	R <sub>v</sub>	densité tassée relative (%)	densité cru relative 75kN(%)	densité cru relative 135kN(%)	densité cru relative 75kN(%)	densité frittée relative 135kN(%)	dureté frittée HB <sub>15,625</sub> (75kN)	dureté frittée HB <sub>15,625</sub> (135kN)
0	46,6	303,6	2,09	0,126	37,2	76,41	83,45	75,78	83,60	32,57	48,55
0,015	73,8	457,7	2,09	0,114	43,0	77,13	84,94	77,87	85,58	28,27	41,60
0,008	83,2	83,2	2,08	1	44,4	77,98	84,43	78,79	84,99	26,70	40,60
0,025	61,0	344,3	1,73	0,283	41,0	73,95	81,52	73,95	82,70	30,30	41,80
0,081	80,6	80,6	2,28	1	43,9	76,97	84,96	76,63	82,84	46,07	61,13
0,02	64,8	365,7	2,23	0,211	44,4	75,50	83,30	76,49	81,98	45,59	60,16
0,034	59,3	59,3	2,36	1	47,6	77,98	85,70	77,42	82,81	34,60	43,07
0,017	82,9	82,9	2,23	1	44,7	76,64	85,09	76,50	84,58	26,25	39,57
0,039	93,5	93,5	1,92	1	45,1	77,34	83,24	76,90	83,73	28,38	39,88
0,071	69,4	69,4	2,00	1	45,2	75,40	83,13	75,45	84,11	30,17	42,61
0,055	67,3	67,3	1,77	1	43,6	76,55	84,43	76,22	85,02	27,52	41,60
0,179	90,0	90,0	1,90	1	43,9	71,25	81,16	73,24	82,15	34,60	46,30
0	96,5	96,5	1,57	1	45,3	77,20	86,10	76,76	82,98	30,70	41,20
0,04	72,2	72,2	2,14	1	44,8	76,08	84,35	72,90	83,50	33,15	45,36
0,05	56,8	333,1	1,34	0,173	41,2	71,79	81,84	73,16	81,05	31,28	43,54
0,04	35,2	275,2	2,03	0,185	37,1	70,13	79,02	71,10	79,63	34,60	44,67
0,023	95,2	95,2	2,31	1	44,8	76,71	84,96	76,42	83,07	34,12	45,36
0,13	17,2	290,9	2,06	0,694	36,1	66,40	74,64	67,68	75,98	37,05	49,06
0,047	25,2	260,8	1,95	0,210	38,1	71,15	79,41	70,25	78,53	34,12	44,90
0,017	76,7	76,7	2,10	1	45,9	78,02	84,78	77,93	81,83	30,30	45,13
0,124	77,2	77,2	2,07	1	45,9	77,37	85,08	76,70	83,90	42,23	56,96
0,245	67,3	67,3	1,96	1	42,4	76,76	83,91	76,06	80,47	49,71	71,20
0	39,5	268,7	1,51	0,038	48,3	74,82	84,19	76,33	84,47	27,05	40,00
0,094	71,3	71,3	1,88	1	46,0	75,85	83,87	75,21	83,49	29,36	40,79
0,225	72,1	72,1	1,75	1	44,4	75,88	83,83	72,70	81,83	36,88	48,44
0,245	81,7	81,7	1,91	1	44,6	71,50	79,14	71,91	79,52	51,35	78,80
0,004	32,3	272,4	1,94	0,104	35,6	71,06	79,39	72,98	80,27	30,10	43,30
0,132	71,4	71,4	2,06	1	46,3	76,94	83,36	76,02	83,11	42,56	61,55
0,258	59,4	59,4	2,08	1	48,2	78,75	85,48	77,72	84,95	53,59	73,38
0,138	95,9	95,9	2,04	1	41,8	76,70	77,47	75,38	83,98	50,10	63,40
0,250	71,7	7,5	1,75	0,049	42,8	77,30	85,01	74,94	83,51	78,02	87,00
0,01	73,2	73,2	2,04	1	46,0	76,27	83,78	76,10	85,18	38,70	57,65
0,01	78,7	78,7	1,83	1	45,9	76,99	85,89	78,00	85,43	37,32	57,02
0,01	59,5	59,5	1,86	1	47,9	76,83	84,25	77,18	84,75	48,20	72,81
0,039	74,7	74,7	2,01	1	48,1	77,07	85,08	77,37	84,79	52,25	71,49
0,01	81,2	81,2	1,89	1	46,0	77,97	85,83	78,04	85,14	26,12	37,60
0,01	76,3	76,3	1,80	1	43,3	74,81	83,16	75,67	82,76	26,40	38,88
0,01	69,9	69,9	1,94	1	43,6	74,49	84,36	76,14	83,66	50,23	66,63
0,01	67,0	67,0	1,80	1	41,2	73,83	83,70	75,62	82,71	36,80	48,06

Les poudres, dont les caractéristiques sont grisées, correspondent aux trois poudres-test utilisées pour l'évaluation de la viabilité du réseau de neurones à prédire les problématiques.

**Domaine de validité: Minima & Maxima**

%CE	d <sub>50</sub> grand pic (µm)	d <sub>50</sub> petit pic (µm)	σ <sub>g</sub>	R <sub>v</sub>	densité tassée relative (%)	densité cru relative 75kN(%)	densité cru relative 135kN(%)	densité frittée relative 75kN(%)	densité frittée relative 135kN(%)	dureté frittée HB <sub>15,625</sub> (75kN)	dureté frittée HB <sub>15,625</sub> (135kN)
0 0,258	17,20 96,45	7,481 457,7	1,34 2,36	0,038 1	35,58 78,26	66,40 78,75	74,64 86,10	67,68 78,79	75,98 85,56	26,12 78,02	37,60 87

## 8.4. Création de poudres artificielles

### 8.4.1. Poudres d'alumine

#### 8.4.1.1. Poudre type Bayer

##### Détermination de la valeur de la surface spécifique BET par Patrice Beaud [BEA98].

A partir des valeurs expérimentales mesurées pour les poudres commerciales, une carte de la surface spécifique BET en fonction du couple ( $d_{50}$ ,  $d_{90}-d_{10}$ ) est obtenue.

$d_{50}(\mu\text{m})$	0,5	1	1,5	2	3	4	5	6	7	8
$\Delta=d_{90}-d_{10} [\mu\text{m}]$										
0,5	10	9	8	8	6	6	5,5	5,5	5	5
1	10	9	8	8	6	6	5,5	5,5	5	5
1,5	9	8	8	6	6	6	5,5	5,5	5	3,5
2	9	8	8	6	6	5,5	5,5	5	3,5	2
3	8	8	6	6	6	5,5	5	3,5	3,5	2
4	8	6	6	6	5,5	5,5	5	2	2	2
5	6	6	6	6	5,5	5	2	2	2	1
6	6	6	6	5,5	5,5	3,5	2	2	1	1
7	6	6	6	5,5	5	2	2	1	1	1
8	6	6	5,5	5,5	5	2	2	1	1	1
9	6	5,5	5,5	5,5	3,5	2	1	1	1	1
10	6	5,5	5,5	5,5	2	2	1	1	1	1
11	6	5,5	5,5	5	2	2	1	1	1	1
12	6	5,5	5,5	5	2	1	1	1	1	1
13	6	5,5	5,5	3,5	2	1	1	1	1	1
14	6	5,5	5	3,5	2	1	1	1	1	1

##### Création des poudres artificielles et simulation de leurs densités crue et frittée

Pour créer des poudres artificielles de type Bayer, la valeur  $d_{50}$  est choisie constante et égale à 0.75, 1.6 et 3.75 $\mu\text{m}$ . Pour chaque valeur de  $d_{50}$ , une valeur de  $d_{90}$  est choisie dans les limites du domaine de validité et la valeur de  $d_{10}$  est obtenue par la relation  $d_{10} = \exp(2 \ln d_{50} - \ln d_{90})$  pour répondre à la restriction distribution en taille log-normale. La surface BET est obtenue à partir de la carte BET présentée ci-dessus et la valeur de  $[\text{SiO}_2]$  est choisie dans les limites du domaine de validité.

Les poudres artificielles ainsi créées sont utilisées dans le réseau de neurones éduqué afin de prédire leur densité crue et frittée.

Tableau de valeurs des caractéristiques des poudres artificielles Bayer :

d <sub>90</sub> ( $\mu\text{m}$ )	d <sub>50</sub> ( $\mu\text{m}$ )	d <sub>10</sub> ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_g$	BET ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	log [SiO <sub>2</sub> ] (log (ppm))	Densité crue simulée ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Densité frittée simulée ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	2	2,19	3,8543
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	2	2,20	3,8477
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	2	2,43	3,7962
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	2	2,42	3,7461
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	2	2,40	3,6916
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	2	2,36	3,6247
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	2,69897	2,19	3,9079
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	2,69897	2,20	3,908
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	2,69897	2,43	3,7743
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	2,69897	2,42	3,7415
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	2,69897	2,40	3,7103
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	2,69897	2,36	3,6736
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	3	2,19	3,9294
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	3	2,20	3,9299
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	3	2,43	3,7922
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	3	2,42	3,7639
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	3	2,40	3,7393
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	3	2,36	3,7115
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	3,69897	2,19	3,9441
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	3,69897	2,20	3,9428
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	3,69897	2,43	3,7984
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	3,69897	2,42	3,7721
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	3,69897	2,40	3,7499
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	3,69897	2,36	3,7233
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	4,30103	2,19	3,9337
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	4,30103	2,20	3,9296
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	4,30103	2,43	3,7766
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	4,30103	2,42	3,7462
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	4,30103	2,40	3,7171
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	4,30103	2,36	3,676
1,20	0,75	0,47	1,4937	9,0	4,60205999	2,19	3,9244
1,40	0,75	0,40	1,7027	9,0	4,60205999	2,20	3,9186
1,65	0,75	0,34	1,9592	8,0	4,60205999	2,43	3,7605
1,95	0,75	0,29	2,2607	8,0	4,60205999	2,42	3,7266
2,30	0,75	0,24	2,5981	8,0	4,60205999	2,40	3,6915
2,75	0,75	0,20	3,0252	8,0	4,60205999	2,36	3,6388
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	2	2,3837	3,7085
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	2	2,3917	3,7595
3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	2	2,5513	4,0391
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	2	2,5792	4,059
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	2	2,6066	4,0371
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	2,69897	2,3837	3,4983
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	2,69897	2,3917	3,5272

3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	2,69897	2,5513	3,6474
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	2,69897	2,5792	3,6097
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	2,69897	2,6066	3,4842
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	3	2,3837	3,5195
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	3	2,3917	3,539
3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	3	2,5513	3,6287
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	3	2,5792	3,5761
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	3	2,6066	3,4268
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	3,69897	2,3837	3,5684
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	3,69897	2,3917	3,5695
3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	3,69897	2,5513	3,5915
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	3,69897	2,5792	3,5062
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	3,69897	2,6066	3,3109
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	4,30103	2,3837	3,5794
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	4,30103	2,3917	3,5669
3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	4,30103	2,5513	3,518
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	4,30103	2,5792	3,3915
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	4,30103	2,6066	3,615
2,20	1,60	1,16	1,3119	8,0	4,60205999	2,3837	3,5768
2,65	1,60	0,97	1,5385	8,0	4,60205999	2,3917	3,5575
3,20	1,60	0,8	1,8066	6,0	4,60205999	2,5513	3,4719
3,90	1,60	0,66	2,1396	6,0	4,60205999	2,5792	3,3256
4,70	1,60	0,54	2,5063	6,0	4,60205999	2,6066	3,0957
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	2	2,35	3,094
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	2	2,33	2,9334
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	2	2,34	2,5013
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	2	2,32	2,4623
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	2,68897	2,35	2,0461
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	2,68897	2,33	2,0421
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	2,68897	2,34	2,0148
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	2,68897	2,32	2,112
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	3	2,35	1,8612
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	3	2,33	1,878
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	3	2,34	1,9435
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	3	2,32	2,0517
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	3,69897	2,35	2,0184
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	3,69897	2,33	2,0798
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	3,69897	2,34	2,2463
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	3,69897	2,32	2,3479
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	4,30103	2,35	2,243
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	4,30103	2,33	2,3193
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	4,30103	2,34	2,4819
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	4,30103	2,32	2,58
6,85	3,75	2,05	1,6719	5	4,60205999	2,35	2,2918
7,4	3,75	1,9	1,7860	5	4,60205999	2,33	2,3711
8	3,75	1,76	1,9090	3,5	4,60205999	2,34	2,5705
8,65	3,75	1,63	2,0408	3,5	4,60205999	2,32	2,6694

#### 8.4.1.2. Poudre précipitée

Pour ce type de poudre, les valeurs de la distribution en taille log-normale des particules ( $d_{90}$ ,  $d_{50}$ ,  $d_{10}$ ) et la valeur de  $[\text{SiO}_2]$  sont obtenues similairement à celles des poudres



artificielles de type Bayer. Par contre, la valeur de la surface spécifique BET est fixée à 14.1m<sup>2</sup>/g. Ces poudres sont ensuite utilisées dans le réseau de neurones pour en prédire leur densité crue et frittée.

Tableau de valeurs des caractéristiques des poudres artificielles précipitées :

d <sub>90</sub> (μm)	d <sub>50</sub> (μm)	d <sub>10</sub> (μm)	σ <sub>g</sub>	log [SiO <sub>2</sub> ] (log (ppm))	Densité crue simulée (g/cm <sup>3</sup> )	Densité frittée simulée (g/cm <sup>3</sup> )
1,6	0,75	0,3516	1,90884	2	2,1208	3,7613
1,8	0,75	0,3125	2,11065	2	2,1096	3,7595
2	0,75	0,2813	2,30918	2	2,0988	3,7561
2,2	0,75	0,2557	2,50482	2	2,0878	3,7514
2,4	0,75	0,2344	2,69786	2	2,0763	3,7452
2,6	0,75	0,2163	2,88855	2	2,0643	3,7378
2,8	0,75	0,2009	3,0771	2	2,0519	3,7292
3	0,75	0,1875	3,26368	2	2,0393	3,7195
3,2	0,75	0,1758	3,44844	2	2,0267	3,7088
3,4	0,75	0,1654	3,63152	2	2,0142	3,6972
3,6	0,75	0,1563	3,81302	2	2,002	3,6846
1,6	0,75	0,3516	1,90884	2,69897	2,1208	3,8071
1,8	0,75	0,3125	2,11065	2,69897	2,1096	3,8067
2	0,75	0,2813	2,30918	2,69897	2,0988	3,8052
2,2	0,75	0,2557	2,50482	2,69897	2,0878	3,8029
2,4	0,75	0,2344	2,69786	2,69897	2,0763	3,7999
2,6	0,75	0,2163	2,88855	2,69897	2,0643	3,7962
2,8	0,75	0,2009	3,0771	2,69897	2,0519	3,7918
3	0,75	0,1875	3,26368	2,69897	2,0393	3,7869
3,2	0,75	0,1758	3,44844	2,69897	2,0267	3,7814
3,4	0,75	0,1654	3,63152	2,69897	2,0142	3,7752
3,6	0,75	0,1563	3,81302	2,69897	2,002	3,7684
1,6	0,75	0,3516	1,90884	3	2,1208	3,8333
1,8	0,75	0,3125	2,11065	3	2,1096	3,8331
2	0,75	0,2813	2,30918	3	2,0988	3,8321
2,2	0,75	0,2557	2,50482	3	2,0878	3,8306
2,4	0,75	0,2344	2,69786	3	2,0763	3,8285
2,6	0,75	0,2163	2,88855	3	2,0643	3,8259
2,8	0,75	0,2009	3,0771	3	2,0519	3,8229
3	0,75	0,1875	3,26368	3	2,0393	3,8193
3,2	0,75	0,1758	3,44844	3	2,0267	3,8154
3,4	0,75	0,1654	3,63152	3	2,0142	3,8108
3,6	0,75	0,1563	3,81302	3	2,002	3,8057
3,2	1,6	0,8	1,80657	2	1,9523	3,573
3,4	1,6	0,7529	1,90248	2	1,9303	3,5647
3,6	1,6	0,7111	1,99756	2	1,9104	3,5587
3,8	1,6	0,6737	2,09187	2	1,8921	3,5519
4	1,6	0,64	2,18546	2	1,8757	3,5321
4,5	1,6	0,5689	2,41651	2	1,8436	3,5062
5	1,6	0,512	2,64381	2	1,8234	3,3997
6	1,6	0,4267	3,08882	2	1,8106	3,2023
7	1,6	0,3657	3,52302	2	1,8174	3,7273
9	1,6	0,2844	4,36558	2	1,8333	3,6434

3,2	1,6	0,8	1,80657	2,69897	1,9523	3,6805
3,4	1,6	0,7529	1,90248	2,69897	1,9303	3,6788
3,6	1,6	0,7111	1,99756	2,69897	1,9104	3,676
3,8	1,6	0,6737	2,09187	2,69897	1,8921	3,672
4	1,6	0,64	2,18546	2,69897	1,8757	3,6572
4,5	1,6	0,5689	2,41651	2,69897	1,8436	3,6323
5	1,6	0,512	2,64381	2,69897	1,8234	3,5102
6	1,6	0,4267	3,08882	2,69897	1,8106	3,2614
7	1,6	0,3657	3,52302	2,69897	1,8174	2,5685
9	1,6	0,2844	4,36558	2,69897	1,8333	3,7093
3,2	1,6	0,8	1,80657	3	1,9523	3,7385
3,4	1,6	0,7529	1,90248	3	1,9303	3,7383
3,6	1,6	0,7111	1,99756	3	1,9104	3,7371
3,8	1,6	0,6737	2,09187	3	1,8921	3,7348
4	1,6	0,64	2,18546	3	1,8757	3,7315
4,5	1,6	0,5689	2,41651	3	1,8436	3,7186
5	1,6	0,512	2,64381	3	1,8234	3,6955
6	1,6	0,4267	3,08882	3	1,8106	3,5736
7	1,6	0,3657	3,52302	3	1,8174	3,314
9	1,6	0,2844	4,36558	3	1,8333	2,5904
7,2	3	1,25	2,11065	2	1,599	2,872
7,8	3	1,1538	2,25983	2	1,547	2,6638
8,4	3	1,0714	2,40734	2	1,5086	2,5527
9	3	1	2,55331	2	1,4834	2,4018
9,6	3	0,9375	2,69786	2	1,4702	2,2077
10,2	3	0,8824	2,84109	2	1,468	2,0108
10,8	3	0,8333	2,98308	2	1,4758	1,8659
11,4	3	0,7895	3,12392	2	1,4926	1,7957
12	3	0,75	3,26368	2	1,517	1,7885
12,6	3	0,7143	3,40242	2	1,5473	1,821
13,2	3	0,6818	3,54019	2	1,5806	1,8692
13,8	3	0,6522	3,67704	2	1,6141	1,9148
14,4	3	0,625	3,81302	2	1,645	1,9456
7,2	3	1,25	2,11065	2,69897	1,599	2,8871
7,8	3	1,1538	2,25983	2,69897	1,547	2,7579
8,4	3	1,0714	2,40734	2,69897	1,5086	2,5856
9	3	1	2,55331	2,69897	1,4834	2,3568
9,6	3	0,9375	2,69786	2,69897	1,4702	2,1035
10,2	3	0,8824	2,84109	2,69897	1,468	1,884
10,8	3	0,8333	2,98308	2,69897	1,4758	1,7287
11,4	3	0,7895	3,12392	2,69897	1,4926	1,6312
12	3	0,75	3,26368	2,69897	1,517	1,5735
12,6	3	0,7143	3,40242	2,69897	1,5473	1,5417
13,2	3	0,6818	3,54019	2,69897	1,5806	1,527
13,8	3	0,6522	3,67704	2,69897	1,6141	1,5246
14,4	3	0,625	3,81302	2,69897	1,645	1,5301
7,2	3	1,25	2,11065	3	1,599	3,0215
7,8	3	1,1538	2,25983	3	1,547	2,8755
8,4	3	1,0714	2,40734	3	1,5086	2,6831
9	3	1	2,55331	3	1,4834	2,4376
9,6	3	0,9375	2,69786	3	1,4702	2,1878

10,2	3	0,8824	2,84109	3	1,468	1,9876
10,8	3	0,8333	2,98308	3	1,4758	1,851
11,4	3	0,7895	3,12392	3	1,4926	1,7629
12	3	0,75	3,26368	3	1,517	1,7041
12,6	3	0,7143	3,40242	3	1,5473	1,6618
13,2	3	0,6818	3,54019	3	1,5806	1,6284
13,8	3	0,6522	3,67704	3	1,6141	1,5998
14,4	3	0,625	3,81302	3	1,645	1,5733

#### 8.4.2. Poudres métalliques

Pour créer des poudres artificielles à partir de la base de données des poudres commerciales métalliques, la valeur  $d_{50}$ , du pic le plus grand de la distribution en taille des particules est choisie constante et égale à 45, 60, 75 et 90 $\mu\text{m}$ . la valeur  $d_{15,87}$  de ce même pic est choisie en fonction du domaine de validité et permet d'accéder à une valeur  $\sigma_g$ . Une valeur  $R_v$ , une valeur %CE ainsi qu'une valeur  $d_{50}$ , pour le second pic de la distribution en taille des particules sont également choisies dans les limites du domaine de validité.

Ces poudres sont ensuite utilisées dans le réseau de neurones pour en prédire leur densité tassée, crue et frittée.

Tableau de valeurs des caractéristiques des poudres artificielles métalliques :

1-%CE	$d_{50}$ grand pic	$\sigma_g$ grand pic	$d_{50}$ petit pic	$R_v$	porosité crue 75kN relative	porosité crue 135kN relative
1	45	1,8	45	1		
1	45	1,73076923	45	1		
1	45	1,66666667	45	1		
1	45	1,60714286	45	1		
1	45	1,55172414	45	1		
0,9	45	1,8	45	1		
0,9	45	1,73076923	45	1		
0,9	45	1,66666667	45	1		
0,9	45	1,60714286	45	1		
0,9	45	1,55172414	45	1		
0,8	45	1,8	45	1		
0,8	45	1,73076923	45	1		
0,8	45	1,66666667	45	1		
0,8	45	1,60714286	45	1		
0,8	45	1,55172414	45	1		
0,7	45	1,8	45	1		
0,7	45	1,73076923	45	1		
0,7	45	1,66666667	45	1		
0,7	45	1,60714286	45	1		
0,7	45	1,55172414	45	1		
0,75	45	1,8	45	1		
0,75	45	1,73076923	45	1		
0,75	45	1,66666667	45	1		

0,75	45	1,60714286	45	1		
0,75	45	1,55172414	45	1		
1	60	2,30769231	60	1	22,5352	15,4778
1	60	2,22222222	60	1	22,9477	15,5574
1	60	2,14285714	60	1	23,0983	15,5625
1	60	2,06896552	60	1	23,1517	15,5629
1	60	2	60	1	23,1755	15,5629
1	60	1,93548387	60	1	23,2013	15,5629
1	60	1,875	60	1	23,2648	15,5629
1	60	1,81818182	60	1	23,4361	15,5629
1	60	1,76470588	60	1	23,8145	15,5629
1	60	1,71428571	60	1	24,3927	15,5629
1	60	1,66666667	60	1	24,9474	15,5629
1	60	1,62162162	60	1	25,3014	15,5629
1	60	1,57894737	60	1	25,4784	15,5629
0,9	60	2,30769231	60	1	21,4119	15,2849
0,9	60	2,22222222	60	1	22,2895	15,544
0,9	60	2,14285714	60	1	22,8162	15,5614
0,9	60	2,06896552	60	1	23,0601	15,5628
0,9	60	2	60	1	23,2211	15,5629
0,9	60	1,93548387	60	1	23,4891	15,5629
0,9	60	1,875	60	1	24,0309	15,5629
0,9	60	1,81818182	60	1	24,728	15,5629
0,9	60	1,76470588	60	1	25,2282	15,5629
0,9	60	1,71428571	60	1	25,4668	15,5629
0,9	60	1,66666667	60	1	25,5624	15,5629
0,9	60	1,62162162	60	1	25,5993	15,5629
0,9	60	1,57894737	60	1	25,6139	15,5629
0,8	60	2,30769231	60	1	20,4517	14,7334
0,8	60	2,22222222	60	1	21,107	15,4989
0,8	60	2,14285714	60	1	22,0082	15,5579
0,8	60	2,06896552	60	1	22,8955	15,5625
0,8	60	2	60	1	23,8523	15,5629
0,8	60	1,93548387	60	1	24,7763	15,5629
0,8	60	1,875	60	1	25,3032	15,5629
0,8	60	1,81818182	60	1	25,5094	15,5629
0,8	60	1,76470588	60	1	25,5817	15,5629
0,8	60	1,71428571	60	1	25,6075	15,5629
0,8	60	1,66666667	60	1	25,6174	15,5629
0,8	60	1,62162162	60	1	25,6216	15,5629
0,8	60	1,57894737	60	1	25,6237	15,5629
0,75	60	2,30769231	60	1	20,2349	14,235
0,75	60	2,22222222	60	1	20,6695	15,4519
0,75	60	2,14285714	60	1	21,5839	15,5613
0,75	60	2,06896552	60	1	22,9895	15,5721
0,75	60	2	60	1	24,3676	15,5756
0,75	60	1,93548387	60	1	25,1329	15,579
0,75	60	1,875	60	1	25,4354	15,5828
0,75	60	1,81818182	60	1	25,5477	15,5872
0,75	60	1,76470588	60	1	25,5918	15,5922
0,75	60	1,71428571	60	1	25,6114	15,5979

0,75	60	1,66666667	60	1	25,623	15,6043
0,75	60	1,62162162	60	1	25,6344	15,6114
0,75	60	1,57894737	60	1	25,6517	15,6192
1	75	2,34375	75	1	22,4391	15,5629
1	75	2,27272727	75	1	22,4767	15,5629
1	75	2,20588235	75	1	22,5225	15,5629
1	75	2,14285714	75	1	22,6139	15,5629
1	75	2,08333333	75	1	22,7936	15,5629
1	75	2,02702703	75	1	23,1065	15,5629
1	75	1,97368421	75	1	23,5628	15,5629
1	75	1,92307692	75	1	24,0968	15,5629
1	75	1,875	75	1	24,5941	15,5629
1	75	1,82926829	75	1	24,9755	15,5629
1	75	1,78571429	75	1	25,2308	15,5629
1	75	1,74418605	75	1	25,3889	15,5629
1	75	1,70454545	75	1	25,4832	15,5629
1	75	1,66666667	75	1	25,5388	15,5629
1	75	1,63043478	75	1	25,5718	15,5629
1	75	1,59574468	75	1	25,5915	15,5629
1	75	1,5625	75	1	25,6035	15,5629
0,9	75	2,34375	75	1	22,4552	15,5629
0,9	75	2,27272727	75	1	22,4602	15,5629
0,9	75	2,20588235	75	1	22,469	15,5629
0,9	75	2,14285714	75	1	22,4885	15,5629
0,9	75	2,08333333	75	1	22,5298	15,5629
0,9	75	2,02702703	75	1	22,6127	15,5629
0,9	75	1,97368421	75	1	22,7659	15,5629
0,9	75	1,92307692	75	1	23,0213	15,5629
0,9	75	1,875	75	1	23,3929	15,5629
0,9	75	1,82926829	75	1	23,8501	15,5629
0,9	75	1,78571429	75	1	24,3189	15,5629
0,9	75	1,74418605	75	1	24,7245	15,5629
0,9	75	1,70454545	75	1	25,0311	15,5629
0,9	75	1,66666667	75	1	25,2427	15,5629
0,9	75	1,63043478	75	1	25,3812	15,5629
0,9	75	1,59574468	75	1	25,4699	15,5629
0,9	75	1,5625	75	1	25,5267	15,5629
0,8	75	2,34375	75	1	22,4552	15,5695
0,8	75	2,27272727	75	1	22,456	15,5714
0,8	75	2,20588235	75	1	22,4578	15,5737
0,8	75	2,14285714	75	1	22,4619	15,5764
0,8	75	2,08333333	75	1	22,4707	15,5795
0,8	75	2,02702703	75	1	22,4892	15,5831
0,8	75	1,97368421	75	1	22,526	15,5873
0,8	75	1,92307692	75	1	22,5955	15,5921
0,8	75	1,875	75	1	22,7194	15,5974
0,8	75	1,82926829	75	1	22,9257	15,6034
0,8	75	1,78571429	75	1	23,2417	15,6101
0,8	75	1,74418605	75	1	23,683	15,6175
0,8	75	1,70454545	75	1	24,2497	15,6257
0,8	75	1,66666667	75	1	24,9446	15,6345

0,8	75	1,63043478	75	1	25,8099	15,6442
0,8	75	1,59574468	75	1	26,9517	15,6546
0,8	75	1,5625	75	1	28,5289	15,6659
0,75	75	2,34375	75	1	22,4552	20,2269
0,75	75	2,27272727	75	1	22,4559	20,3555
0,75	75	2,20588235	75	1	22,4578	20,4549
0,75	75	2,14285714	75	1	22,4629	20,5321
0,75	75	2,08333333	75	1	22,4759	20,5925
0,75	75	2,02702703	75	1	22,5076	20,6399
0,75	75	1,97368421	75	1	22,5816	20,6776
0,75	75	1,92307692	75	1	22,7472	20,7078
0,75	75	1,875	75	1	23,1015	20,7321
0,75	75	1,82926829	75	1	23,8199	20,7518
0,75	75	1,78571429	75	1	25,1811	20,7679
0,75	75	1,74418605	75	1	27,5305	20,7813
0,75	75	1,70454545	75	1	31,092	20,7923
0,75	75	1,66666667	75	1	35,6516	20,8016
0,75	75	1,63043478	75	1	40,463	20,8094
0,75	75	1,59574468	75	1	44,6764	20,816
0,75	75	1,5625	75	1	47,852	20,8216
1	90	2,30769231	90	1	22,4549	15,5629
1	90	2,25	90	1	22,4549	15,5629
1	90	2,19512195	90	1	22,455	15,5629
1	90	2,14285714	90	1	22,4551	15,5629
1	90	2,09302326	90	1	22,4553	15,5629
1	90	2,04545455	90	1	22,4558	15,5629
1	90	2	90	1	22,4565	15,5629
1	90	1,95652174	90	1	22,4579	15,5629
1	90	1,91489362	90	1	22,4603	15,5629
1	90	1,875	90	1	22,4642	15,5629
1	90	1,83673469	90	1	22,4706	15,5629
1	90	1,8	90	1	22,4808	15,5629
1	90	1,76470588	90	1	22,4968	15,5629
1	90	1,73076923	90	1	22,5212	15,5629
1	90	1,69811321	90	1	22,5575	15,5629
1	90	1,66666667	90	1	22,6102	15,5629
1	90	1,63636364	90	1	22,6848	15,5629
1	90	1,60714286	90	1	22,7868	15,5629
1	90	1,57894737	90	1	22,9216	15,5629
1	90	1,55172414	90	1	23,0926	15,5629
0,9	90	2,30769231	90	1	22,4549	15,5629
0,9	90	2,25	90	1	22,4549	15,5629
0,9	90	2,19512195	90	1	22,455	15,5629
0,9	90	2,14285714	90	1	22,4553	15,5629
0,9	90	2,09302326	90	1	22,4559	15,5629
0,9	90	2,04545455	90	1	22,4573	15,5629
0,9	90	2	90	1	22,4603	15,5629
0,9	90	1,95652174	90	1	22,4664	15,5629
0,9	90	1,91489362	90	1	22,4786	15,5629
0,9	90	1,875	90	1	22,5023	15,5629
0,9	90	1,83673469	90	1	22,547	15,563

0,9	90	1,8	90	1	22,6289	15,563
0,9	90	1,76470588	90	1	22,775	15,563
0,9	90	1,73076923	90	1	23,0278	15,563
0,9	90	1,69811321	90	1	23,452	15,563
0,9	90	1,66666667	90	1	24,1378	15,563
0,9	90	1,63636364	90	1	25,1987	15,563
0,9	90	1,60714286	90	1	26,752	15,563
0,9	90	1,57894737	90	1	28,876	15,563
0,9	90	1,55172414	90	1	31,5512	15,563
0,8	90	2,30769231	90	1	22,4816	20,5228
0,8	90	2,25	90	1	22,5281	20,583
0,8	90	2,19512195	90	1	22,6454	20,6309
0,8	90	2,14285714	90	1	22,926	20,6693
0,8	90	2,09302326	90	1	23,5566	20,7003
0,8	90	2,04545455	90	1	24,8659	20,7254
0,8	90	2	90	1	27,2939	20,746
0,8	90	1,95652174	90	1	31,1149	20,7629
0,8	90	1,91489362	90	1	35,9475	20,777
0,8	90	1,875	90	1	40,7251	20,7886
0,8	90	1,83673469	90	1	44,4954	20,7984
0,8	90	1,8	90	1	47,0154	20,8067
0,8	90	1,76470588	90	1	48,539	20,8137
0,8	90	1,73076923	90	1	49,4157	20,8197
0,8	90	1,69811321	90	1	49,9119	20,8248
0,8	90	1,66666667	90	1	50,1935	20,8292
0,8	90	1,63636364	90	1	50,3559	20,8331
0,8	90	1,60714286	90	1	50,4527	20,8364
0,8	90	1,57894737	90	1	50,5135	20,8393
0,8	90	1,55172414	90	1	50,5554	20,8418
0,75	90	2,30769231	90	1	23,3301	20,867
0,75	90	2,25	90	1	24,7343	20,867
0,75	90	2,19512195	90	1	27,7238	20,867
0,75	90	2,14285714	90	1	32,7296	20,867
0,75	90	2,09302326	90	1	38,7491	20,867
0,75	90	2,04545455	90	1	43,8302	20,867
0,75	90	2	90	1	47,0711	20,867
0,75	90	1,95652174	90	1	48,8227	20,867
0,75	90	1,91489362	90	1	49,7022	20,867
0,75	90	1,875	90	1	50,1349	20,867
0,75	90	1,83673469	90	1	50,3489	20,867
0,75	90	1,8	90	1	50,4567	20,867
0,75	90	1,76470588	90	1	50,5123	20,867
0,75	90	1,73076923	90	1	50,5418	20,867
0,75	90	1,69811321	90	1	50,5581	20,867
0,75	90	1,66666667	90	1	50,5677	20,867
0,75	90	1,63636364	90	1	50,5741	20,867
0,75	90	1,60714286	90	1	50,579	20,867
0,75	90	1,57894737	90	1	50,5838	20,867
0,75	90	1,55172414	90	1	50,5892	20,867

### *8.5. Optimisation de l'apprentissage des réseaux de neurones artificiels.*

Dans cette annexe sont présentées les directions expérimentales chronologiques, suivies au fur et à mesure de l'avancée de cette étude. Un tableau récapitulatif permettra de visualiser les différentes étapes d'optimisation du réseau de neurones pour chacune des problématiques étudiées.

Rappelons que l'un des objectifs de l'approche neuronale est l'utilisation d'un minimum de neurones d'entrées pour prédire correctement la problématique, prédiction qui doit pouvoir être généralisée.

Un apprentissage sera donc jugé correct lorsque les 2 conditions suivantes seront remplies:

- les valeurs simulées des poudres d'apprentissage sont quasiment identiques aux valeurs réelles. Le NN est alors en bonne adéquation avec la problématique pour laquelle il est éduqué.
- les valeurs simulées pour les poudres test sont suffisamment proches de celles expérimentales (erreur relative inférieure à 10%). La généralisation des prédictions est alors possible.

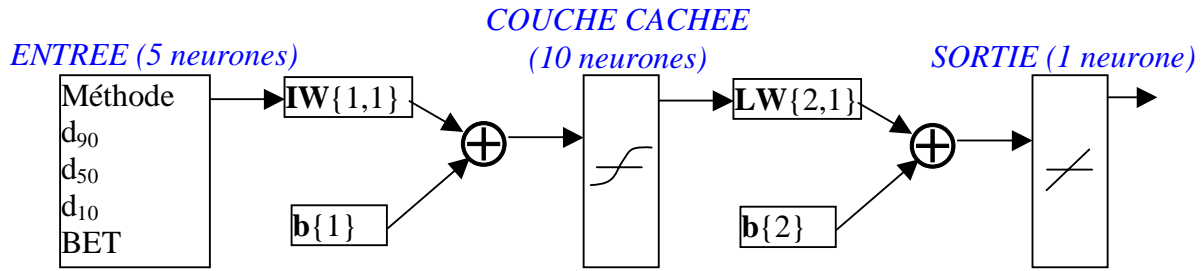
#### **8.5.1. Les alumines**

##### *8.5.1.1. Prédiction de la densité verte*

1. Dans un premier temps, vu que cette densité verte pouvait s'apparenter à la densité tassée (cf.: chapitre 6.1.1 comparaison des densités simulées par le réseau de neurones et les valeurs de la littérature), nous avons cherché à la prédire uniquement à partir de la PSD ( $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$ ). Mais ces 3 paramètres n'étaient pas suffisants. L'introduction de la largeur de la PSD n'a rien amélioré.
2. Le paramètre permettant l'affectation de la méthode de préparation a donc été introduit (1 pour les poudres précipitées et 10 pour les poudres Bayer, l'affectation du chiffre 0 pour une des catégories ayant un effet néfaste sur l'apprentissage). Les résultats des poudres test étaient corrects mais ceux obtenus pour les poudres artificielles étaient totalement incohérents.
3. La surface spécifique BET a donc été introduite pour refléter l'impact de l'agglomération des particules primaires. Cette fois, l'apprentissage du NN semble correct.

Le réseau de neurones artificiel pour cette problématique est donc le suivant :





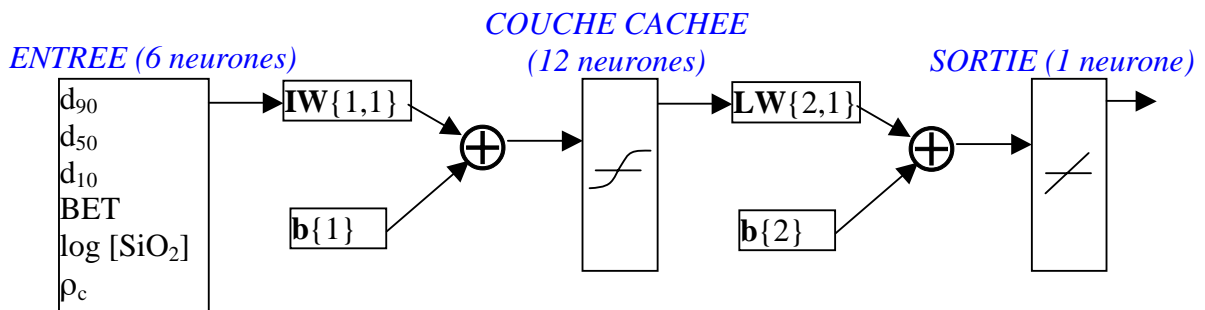
#### 8.5.1.2. Prédiction de la densité frittée

1. Le premier essai de prédiction par l'approche neuronale a été effectué avec les 5 inputs utilisés pour la densité verte, à savoir :
  - Les paramètres de la PSD  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$
  - La surface spécifique BET
  - La méthode de fabrication de la poudre d'alumine

Le NN ainsi créé s'est révélé inefficace pour prédire la densité frittée des poudres d'alumine.

2. La présence de silice semblait relativement importante et a donc été rajoutée dans les neurones inputs. De même pour la densité verte. Le deuxième NN contenait donc 7 inputs dans la couche d'entrée. Mais il y avait redondance entre la méthode de fabrication et la densité verte dans laquelle l'information de la méthode de fabrication était déjà contenue. Le NN créé possédait donc trop de neurones dans la couche d'entrée.
3. Le paramètre méthode de fabrication a donc été retiré des neurones d'entrée. Malgré cela, l'apprentissage du NN demeurait incorrect.
4. Le paramètre concentration en silice a été introduit sous forme logarithmique pour obtenir des inputs et output du même ordre de grandeur. Le NN ainsi élaboré s'avère être un outil relativement fiable pour prédire la densité frittée.

La configuration optimale de ce NN est la suivante :



Pour les alumines, la séparation en famille distincte selon le procédé de fabrication semble indispensable.

### 8.5.2. Les poudres de fer

Pour ces poudres métalliques, l'utilisation de l'approche neuronale s'est avérée très complexe, voire impossible. Voici le cheminement des tentatives pour rendre viable cette approche.

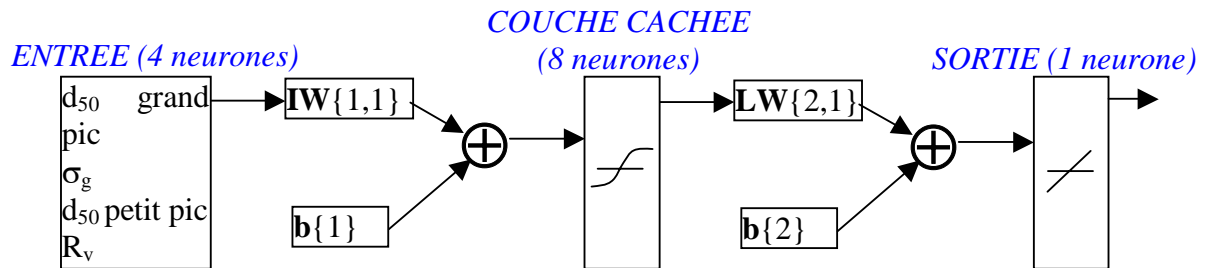
#### 8.5.2.1. Prédiction de la densité tassée

Les poudres étant toutes fabriquées de la même manière (atomisation à l'eau) et par quasiment le même fournisseur, leur forme était relativement similaire. La sphéricité des particules n'a donc pas été prise en compte dans les paramètres influents l'empilement de ces poudres.

1. Dans un premier temps, pour limiter le plus le nombre de neurones dans la couche d'entrée, seule la distribution en taille a été utilisée, via les paramètres  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$ . Pour toutes les configurations du NN tentées, les prédictions n'étaient pas suffisamment proches des valeurs réelles. Les inputs choisis étaient donc insuffisants ou inadéquats.
2. Pour avoir des neurones d'entrée et de sortie d'ordre de grandeur équivalent, nous avons modifié le neurone de sortie de la densité tassée absolue en la densité tassée relative exprimée en %.
3. Les poudres commerciales utilisées ayant une PSD soit monomodale, soit bimodale, une modélisation plus réaliste de cette PSD a été tentée avec l'introduction des paramètres  $d_{50}$  et  $\sigma_g$  pour le pic le plus important et  $d_{50}$  pour le 2<sup>nd</sup> pic. Lorsque la poudre est monomodale, les deux valeurs  $d_{50}$  sont donc égales.
4. Le rapport volumique des grosses particules par rapport aux petites est introduit pour tenter une modélisation encore plus réaliste de cette PSD. Mais là encore, le NN n'a pu être correctement optimisé pour permettre une prédiction cohérente de la densité tassée des poudres de fer.
5. Un paramètre permettant de classer les poudres en différentes catégories a été introduit. Le premier essai a été de séparer les poudres selon leur PSD (1 pour les poudres monomodales et 10 pour les bimodales, puis inversement). Cette tentative a essuyé un échec. La deuxième idée a été de trier les poudres selon leur composition chimique (1 pour les poudres en fer pur et 10 pour les poudres alliées, puis inversement). Mais là encore, le NN n'a pu être optimisé.
6. La base de données des poudres commerciales a été ré-échantillonnée: les poudres en acier inoxydable ont été ôtées, puis les poudres les plus exotiques, mais

toujours sans succès. L'utilisation restreinte aux poudres de fer pur n'a pas été possible, leur nombre étant trop faible (<25, nombre requis pour permettre l'apprentissage du NN. Cf.: § 3.4.3).

La meilleure optimisation pour cette problématique est la suivante:



Mais elle ne permet pas l'utilisation du NN comme outil de prédiction viable.

#### 8.5.2.2. Prédiction de la densité verte (compactée sous 75 kN et sous 135kN)

Pour avoir un ordre de grandeur le plus équivalent possible entre les neurones des couches d'entrée et de sortie, la porosité verte relative est choisie préférentiellement à la densité verte absolue.

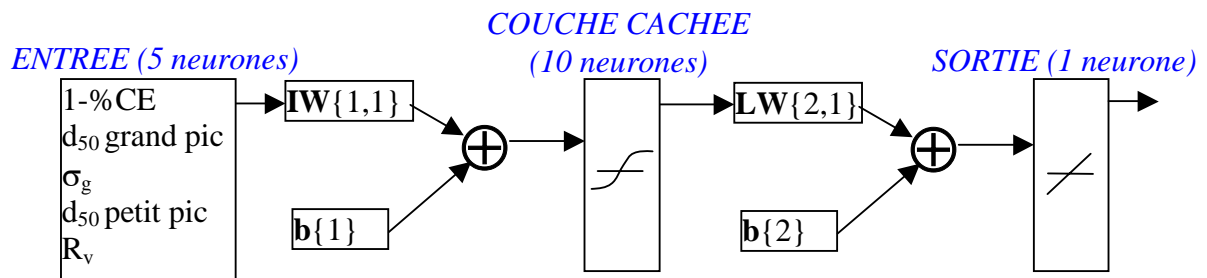
1. Les premières tentatives ont été effectuées avec un minimum de neurones d'entrée, à savoir les paramètres de la PSD,  $d_{90}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{10}$ . Des résultats plutôt médiocres étaient attendus mais nous ne voulions pas commettre l'erreur de négliger certaines configurations.

Lors du compactage des poudres métalliques, une déformation plastique a lieu. La composition chimique de ces poudres joue un rôle prépondérant pour cette plasticité et est donc utilisée comme paramètre d'entrée.

2. La composition chimique est introduite dans les neurones de la couche d'entrée pour simuler l'impact de la déformation plastique. Cette composition chimique est représentée par le pourcentage d'équivalent-carbone, %CE. Elle est associée aux paramètres de la PSD,  $d_{50}$  et  $\sigma_g$  pour le pic le plus important et  $d_{50}$  pour le 2<sup>nd</sup> pic. Ce NN, doté de 4 neurones d'entrée, n'a pu être optimisé, même après le changement %CE en (1-%CE), permettant d'éviter des valeurs nulles pour les neurones.
3. Le rapport volumique des grosses particules par rapport aux petites est introduit. Les valeurs simulées sont non seulement très éloignées des valeurs expérimentales, mais sont également incohérentes (elles ne respectent pas la hiérarchie des valeurs expérimentales).

4. De nouveau, les paramètres permettant de classer les poudres d'apprentissage en différentes catégories ont été introduits, sans succès.
5. Les poudres les plus exotiques ont été retirées, mais là encore, le NN n'a pu être éduqué correctement.

Le meilleur de tous ces NN reste le suivant:



Mais il n'est pas viable pour prédire correctement cette problématique de densité verte des poudres métalliques.

#### 8.5.2.3. Prédiction de la courbe de densification lors du compactage

##### Prédiction du point d'inflexion

1. Le premier essai a consisté en une prédiction des coordonnées du point d'inflexion (pression appliquée, porosité relative) de la courbe de densification, à partir de 4 neurones d'entrée ( $\%CE$ ,  $d_{50}$  et  $\sigma_g$  pour le pic le plus important et  $d_{50}$  pour le 2<sup>nd</sup> pic). Le NN ainsi créé n'a pu être éduqué correctement. Et le changement de  $\%CE$  en  $(1-\%CE)$  n'a rien amélioré.
2. La proportion de petites particules par rapport aux grosses est introduite via le rapport volumique  $R_v$ . Mais l'apprentissage du NN reste impossible.
3. Nous avons ensuite essayé de prédire ces coordonnées en 2 fois, grâce à 2 NN différents, l'un pour l'abscisse (pression appliquée), l'autre pour l'ordonnée (porosité relative). Mais de nouveau, l'optimisation des NN n'a pu être possible, même après ré-échantillonnage des poudres d'apprentissage.

##### Prédiction des pentes de la courbe de densification

Il y a deux pentes à prédire: celles avant et après le point d'inflexion de la courbe. L'utilisation d'un seul NN pour prédire 2 valeurs de sortie ne semble guère possible, vu les résultats précédents sur la prédiction des coordonnées du point d'inflexion. Nous avons donc choisi d'utiliser un NN pour chacune des pentes à prédire.

1. 4 neurones d'entrée ( $\%CE$ ,  $d_{50}$  et  $\sigma_g$  pour le pic le plus important et  $d_{50}$  pour le 2<sup>nd</sup> pic) sont utilisées pour prédire deux neurones de sortie (pente 1 et pente 2). Le NN

ne peut être optimisé pour devenir un outil fiable de prédiction des pentes de la courbe de densification, même lorsque le paramètre %CE est modifié en (1-%CE).

2. L'introduction du rapport volumique  $R_v$  n'y change rien.

Il est à noter que les valeurs de ces pentes sont très faibles (voisines de -0.07): elles possèdent donc près de 5 ordres de grandeurs de différence avec les valeurs  $d_{50}$  de certaines poudres, ce qui peut expliquer ces échecs.

3. Oter les poudres en acier inoxydables et "les plus fortement alliés" ne résout pas les problèmes.

#### 8.5.2.4. Prédiction de la dureté Brinell des corps frittés

Les mesures de dureté  $HB_{15.625}$  sont effectuées sur les corps crus, après frittage, obtenus sous une force de 75 et 135kN. L'importance de la composition chimique semble évidente pour ces mesures et ce paramètre est donc intégré à la couche d'entrée.

1. 4 neurones sont d'abord utilisés: (%CE),  $d_{50}$  et  $\sigma_g$  pour le pic le plus important et  $d_{50}$  pour le 2<sup>nd</sup> pic. Les duretés simulées ne correspondent pas suffisamment aux duretés expérimentales, même après l'utilisation de (1-%CE) à la place de (%CE).
2. Le paramètre  $R_v$ , et ceux permettant la classification en catégories n'ont rien donné de concluant.
3. Le ré-échantillonnage n'a pu permettre un apprentissage correct du NN.

### 8.5.3. Tableau récapitulatif des procédures expérimentales

#### 8.5.3.1. Les alumines

Les réseaux de neurones optimisés, utilisables pour prédire les problématiques pour lesquelles il sont éduqués, sont notés en rouge.

Il est à noter que le nombre de neurones dans la couche cachée a été varié pour chaque NN afin de ne négliger aucune configuration.

	Couche de sortie	Neurones d'entrée	Configuration du NN	Echantillonnage	Apprentissage
n de la densité	Densité crue absolue	$d_{90}$ , $d_{50}$ , $d_{10}$	3-6-1, 3-7-1, 3-8-1, 3-10-1	28 poudres + 3 poudres test	Non correct

	(100MPa)	Méthode de fabrication (0 ou 1) d <sub>90</sub> , d <sub>50</sub> , d <sub>10</sub>	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1		Non correct
		Méthode de fabrication (1 ou 10) d <sub>90</sub> , d <sub>50</sub> , d <sub>10</sub>	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1		Non correct
		<b>Méthode de fabrication (1 ou 10)</b> <b>d<sub>90</sub>, d<sub>50</sub>, d<sub>10</sub></b> <b>BET</b>	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1 <b>5-10-1</b>		Non correct  Correct
Prédiction de la densité frittée	Densité frittée absolue (1500°C, 1h)	Méthode de fabrication (1 ou 10) d <sub>90</sub> , d <sub>50</sub> , d <sub>10</sub> BET	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1 5-10-1	28 poudres + 3 poudres test	Non correct
		Méthode de fabrication (1 ou 10) d <sub>90</sub> , d <sub>50</sub> , d <sub>10</sub> BET Densité crue [SiO <sub>2</sub> ]	7-12-1, 7-13-1, 7-14-1, 7-15-1, 7-16-1, 7-18-1, 7-21-1		Non correct
		d <sub>90</sub> , d <sub>50</sub> , d <sub>10</sub> BET Densité crue [SiO <sub>2</sub> ]	6-10-1, 6-11-1, 6-12-1, 6-13-1, 6-14-1, 6-16-1		Non correct
		<b>d<sub>90</sub>, d<sub>50</sub>, d<sub>10</sub></b> <b>BET</b> <b>Densité crue log [SiO<sub>2</sub>]</b>	6-10-1, 6-11-1, 6-13-1, 6-14-1, 6-16-1 <b>6-12-1</b>		Non correct  Correct

## 8.5.3.2. Les poudres de fer

Aucun des apprentissages n'est suffisamment correct pour permettre l'utilisation du NN artificiel comme outil de prédiction viable. Cependant, les meilleures configurations (ou plutôt les moins médiocres) sont notées en rouge.

	Couche de sortie	Neurones d'entrée	Configuration du NN	Echantillonnage	Apprentissage
Prédiction de la densité tassée	Densité tassée absolue	$d_{90}$ , $d_{50}$ , $d_{10}$	3-6-1, 3-7-1, 3-8-1, 3-10-1	44 poudres + 3 poudres test	Non correct
	Densité tassée relative (en %)				
	Densité tassée relative (en %)	$d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic	3-6-1, 3-7-1, 3-8-1, 3-10-1	44 poudres + 3 poudres test	
		$d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic $R_v$	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1	40 poudres + 3 poudres test (retrait des poudres inox)	
$d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic $R_v$ Tri (1 ou 10 pour PSD)		5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, 5-10-1	39 poudres + 3 poudres test (retrait d'1 poudre mal caractérisée)		

		$d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic $R_v$ Tri (1 ou 10 pour composition chimique)	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, <b>5-10-1</b>		
Prédiction de la densité crue (sous 75kN et 135kN)	Porosité crue relative (en %)	%CE $d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic (1-%CE)	4-7-1, <b>4-8-1</b> , 4-10-1, 4-12-1	44 poudres + 3 poudres test	Non correct
		$d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic		40 poudres + 3 poudres test (retrait des poudres inox)	
		1-%CE $d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic $R_v$	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, <b>5-10-1</b>	39 poudres + 3 poudres test (retrait d'1 poudre mal caractérisée)	
		(1-%CE) $d_{50}$ et $\sigma_g$ du pic le plus important $d_{50}$ du 2 <sup>nd</sup> pic $R_v$ Tri (1 ou 10 pour composition chimique)	6-10-1, 6-11-1, 6-13-1, 6-14-1, 6-16-1, <b>6-12-1</b>		



		(1-%CE) d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub> Tri (1 ou 10 pour PSD)			
Prédiction de la courbe de densification Méthode 1	Coordonnées du point d'inflexion	%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-2, 4-8-2, 4-10-2, 4-12-2, 4-16-2	44 poudres + 3 poudres test  40 poudres + 3 poudres test (retrait des poudres inox)	Non correct
		(1-%CE) d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-12-1, 4-16-1		
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub>	5-8-2, 5-9-2, 5-10-1, 5-15-2, 5-20-2	39 poudres + 3 poudres test (retrait d'1 poudre mal caractérisée)	
	Abscisse du point d'inflexion	%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1		
		(1-%CE) d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic			
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub>	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, 5-10-1		

	Ordonnée du point d'inflexion	%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1		
		(1-%CE) d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic			
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub>	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, 5-10-1		
Prédiction de la courbe de densification Méthode 2	Pentes avant et après le point d'inflexion	%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-2, 4-8-2, 4-10-2, 4-12-2, 4-16-2	44 poudres + 3 poudres test	Non correct
		(1-%CE) d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-12-1, 4-16-1	40 poudres + 3 poudres test (retrait des poudres inox)	
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub>	5-8-2, 5-9-2, 5-10-1, 5-15-2, 5-20-2	39 poudres + 3 poudres test (retrait d'1 poudre mal caractérisée)	

Prédiction de la dureté Brinell HB <sub>15.625</sub> des corps frittés	Dureté Brinell HB <sub>15.625</sub>	%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1	44 poudres + 3 poudres test  40 poudres + 3 poudres test (retrait des poudres inox)	Non correct
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic	4-7-1, 4-8-1, 4-10-1, 4-12-1	39 poudres + 3 poudres test (retrait d'1 poudre mal caractérisée)	
		1-%CE d <sub>50</sub> et $\sigma_g$ du pic le plus important d <sub>50</sub> du 2 <sup>nd</sup> pic R <sub>v</sub>	5-8-1, 5-9-1, 5-12-1, 5-15-1, 5-10-1		

### 8.6. Méthode statistique développée par Dr. Jacques Lemaître pour simuler les paramètres d'une distribution granulométrique

#### But

Calculer les paramètres d'une distribution granulométrique, dont on connaît le diamètre médian et l'étalement.

#### Hypothèses

La distribution granulométrique est supposée log-normale. On connaît son diamètre médian,  $d_{50}$ , ainsi que son étalement  $S$  (Span), défini conventionnellement comme :

$$[1] S = \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} \text{ où } d_{10} \text{ et } d_{90} \text{ sont respectivement les premier et neuvième déciles de la}$$

distribution granulométrique.

#### Méthode de calcul

Si  $\alpha$  est défini comme la probabilité de trouver une particule de diamètre inférieur à  $d_\alpha$ , la définition de la distribution log-normale donne :

$$[2] \log(d_\alpha) = \log(d_{50}) + z_\alpha \log(\sigma_g) \text{ où } z_\alpha \text{ est la valeur de la variable normale standard}$$

pour une probabilité de  $\alpha$ . De là, comme  $z_\alpha = -z_{1-\alpha}$

$$[3a] \log(d_{90}) = \log(d_{50}) + z_{90} \log(\sigma_g)$$

$$[3b] \log(d_{10}) = \log(d_{50}) - z_{90} \log(\sigma_g)$$

Ainsi,

$$[4] d_{10} = \frac{d_{50}}{\sigma_g}; d_{90} = d_{50} \sigma_g^{z_{90}}$$

Et par définition de  $S$ ,

$$[5] S = w - \frac{1}{w} \text{ avec } w = \sigma_g^{z_{90}}$$

En résolvant l'équation [5] par rapport à  $w$ , on trouve :

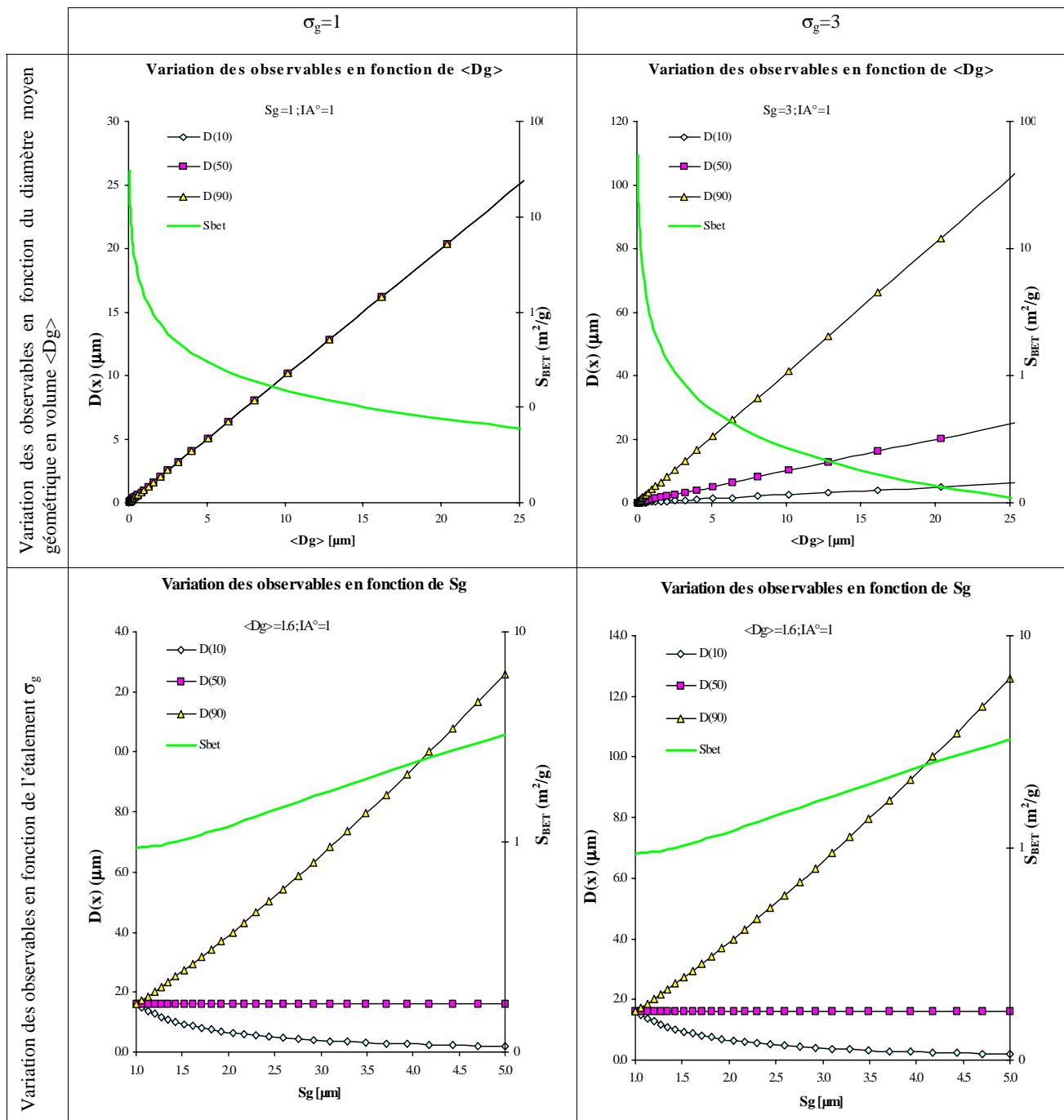
$$[6] w = \frac{S + \sqrt{S^2 + 4}}{2}$$

Compte-tenu de la définition de  $w$  (équation [5]), on trouve enfin :

$$[7] \log(\sigma_g) = \frac{1}{z_{90}} \log\left(\frac{S + \sqrt{S^2 + 4}}{2}\right)$$

Cette approche permet notamment d'évaluer la surface spécifique BET d'une poudre dont on ne connaît que le diamètre médian  $d_{50}$  et l'étalement  $\sigma_g$ . L'indice d'agglomération de la poudre peut également être fixé.

Un exemple type est donné à titre informel : le diamètre médian  $d_{50}$  est fixé à  $1.6\mu\text{m}$ , l'étalement  $\sigma_g$  est soit 1 (poudre monodisperse) soit 3 (poudre log-normale) et l'indice d'agglomération est fixé à 1 (pas d'agglomérat).



Pour les poudres Bayer (peu agglomérées), une comparaison est effectuée entre les valeurs de la surface spécifique BET expérimentales, celles calculées par la méthode graphique [BEA98], et celles calculées par la méthode statistique.

L'indice d'agglomération IA est fixé à 1 pour la méthode statistique, ce qui signifie que les poudres sont supposées être exemptes d'agglomérats et avec une distribution granulométrique log-normale.

La méthode graphique s'appuie sur les poudres commerciales, qui ne sont ni exemptes d'agglomérats, ni ne suivent une distribution log-normale parfaite.

<b>Surface spécifique BET (m<sup>2</sup>/g)</b>	<b>Méthode statistique</b>	<b>Méthode graphique</b>	<b>Valeur expérimentale</b>
Déviat ion standard de la distribution en taille des particules $\sigma_g=2$ ( $\Delta=d_{90}-d_{10}=11$ ) Diamètre médian $d_{50}=4.7\mu\text{m}$	0.4	1	0.7
<i>Commentaires : Avec IA=1.7, la surface spécifique calculée par la méthode statistique est égale à la valeur expérimentale.</i>			
Déviat ion standard de la distribution en taille des particules $\sigma_g=3.3$ ( $\Delta=d_{90}-d_{10}=10.8$ ) Diamètre médian $d_{50}=2.8\mu\text{m}$	1.1	2	2.1
<i>Commentaires : Avec IA=2, la surface spécifique calculée par la méthode statistique est égale à la valeur expérimentale.</i>			
Déviat ion standard de la distribution en taille des particules $\sigma_g=2$ ( $\Delta=d_{90}-d_{10}=2.2$ ) Diamètre médian $d_{50}=0.9\mu\text{m}$	2.1	6<BET<8	5.74
<i>Commentaires : Avec IA=2.7, la surface spécifique calculée par la méthode statistique est égale à la valeur expérimentale.</i>			
Déviat ion standard de la distribution en taille des particules $\sigma_g=2.2$ ( $\Delta=d_{90}-d_{10}=1.9$ ) Diamètre médian $d_{50}=0.76\mu\text{m}$	2.7	8<BET<9	8.25
<i>Commentaires : Avec IA=3.1, la surface spécifique calculée par la méthode statistique est égale à la valeur expérimentale.</i>			

Il est à noter que plus la taille médiane diminue, plus l'indice d'agglomération, nécessaire à l'obtention d'une valeur similaire à la valeur expérimentale, est élevé. Cela semble induire une agglomération plus forte pour les poudres Bayer de petite taille.

Les poudres Bayer commerciales n'ont pas une distribution log-normale parfaite : cela pourrait également expliquer les différences entre les valeurs expérimentales et issues de la méthode statistique.

## 9. BIBLIOGRAPHIE

- ADE2000 A.A. ADETAYO, B.J. ENNIS, A new approach to modeling granulation processes for simulation and control purposes, *Powder technology*, 2000, 108, pp. 202-209
- AGI84 D.A. AGIEVSKII, V.A. PRONIN, V.I. KVASHONKIN, Pore-size distribution in a disordered particle-packing model, *translated from Zavodskaya laboratoriya*, 1984, vol. 50 n°4, pp. 49-51
- AKI94 A. AKISANYA, A.C.F. COCKS, N.A. FLECK, Hydrostatic compaction of cylindrical particles, *Journal of mech. phys. Solids*, 1994, 42, pp. 1067
- APA94 N.D. APARICIO, A.C.F. COCKS, On the representation of random packings of spheres for sintering simulations, *Acta metallurgica materiala*, 1995, 43, n°10, pp. 3873-84
- AYE72 J.E. AYER, F.E. SOPPET, Vibratory compaction : I, compaction of spherical shapes, *Journal of the American ceramic society*, vol. 48, n°4
- BAR97 J. BARRALIS, G. MAEDER, Précis de métallurgie, NATHAN, 1997
- BEA99 P. BEAUD, Détermination de la densité des corps crus en céramique par réseau de neurones, *Projet de semestre LTP, EPFL*, 1999
- BER93 D. BERNACHE-ASSOLANT, Chimie-physique du frittage, *Hermes*, 1993
- BEZ02 A. BEZRUKOV, M. BARGIEL, D. STOYAN, Statistical analysis of simulated random packings of spheres, *Part. part. syst. characterization*, 2002, 19, pp. 111-118
- BIE74 G.P. BIERWAGEN, T.E. SAUNDERS, Studies of the effects of particle size distribution on the packing efficiency of particles, *Powder technology*, 1974, 10, pp. 111-119
- BOU01 D. BOUVARD, C. CARRY, JM CHAIX, C. MARTIN, JM MISSIAEN, L.PEIER-CAMBY, E. ERRIS, G. THOMAS, Compression and sintering of powder mixtures: experiments and modelling, *Advanced engineering materials*, 2001, 3, n°8, pp. 593-597
- BOU96 D. BOUVARD, R.M. McMEEKING, Deformation of interparticle necks by diffusion-controlled creep, *Journal of the American Society*, 1996, 79 (3), pp. 666-672
- BRI97 B.J. BRISCOE, N. ÖZKAN, Compaction behaviour of agglomerated alumina powders, *Powder technology*, 1997, 90, pp. 195-203
- BRO50 G. BROWN, Flow of fluids through porous media 1 - Single Fluid phase, 1950, pp. 210-216
- BRO69 R.J. BROOK, *Journal of American ceramic society*, 1969, 52, p.56
- BRO85 R.J. BROOK, Processing technology for high performance ceramics, *Materials Science Research*, 1985, 71, pp. 305-312
- BRY01 R. BRYDSON, P.C. TWIGG, F. LOUGHRAN, F.L. RILEY, *Journal of Materials Research*, 2001, 16, n°3, pp. 652-664
- CAL00 S. CALACTERRA, G. CAMPANA, L. TOMESANI, Prediction of mechanical properties in spheroidal cast iron by neural networks, *Materials processing technology*, 2000, 104, pp. 74-80
- CES95 J. CESARANO III, M.J. McEUEEN, T. SWILER, Computer simulations of particle packing, *27th international SAMPE Technical Conference Diversity Into the Next Century*, 1995, vol.27, pp. 658-665
- CHE00 R.P. CHERIAN, L.N. SMITH, P.S. MIDHA, A neural network approach for selection of powder metallurgy materials and process parameters, *Artificial intelligence in engineering*, 2000, 14, n°1, pp. 39-44

- CIS96 G. CISNEROS-GONZALES, J.L. ESTRADA-HAEN, D. JARAMILLO-VIGUERAS, H. BALMORI-RAMFREZ, Processing and sintering of a high purity  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> powder, *Book "Sintering technology"*, 1996, pp. 293-300
- COB73 R.L. COBLE, *Journal of American ceramic society*, 1973, 56, pp.461
- COC01 A.C.F. COCKS, Constitutive modelling of powder compaction and sintering, *Progress in materials science*, 2001, 46, pp.201-229
- COC89 A.C.F. COCKS, *Journal of mech. phys. Solids*, 1989, 37, pp. 693
- COC91 A.C.F. COCKS, A.A. SEARLE, Void growth by grain-boundary diffusion in fine grained, *Mechanics of materials*, 1991, 12, pp.279-287
- COC94 A.C.F. COCKS, The structure of constitutive laws for the sintering of fine grained materials, *Acta metal. Mater.*, 1994, 42 (7), pp. 2191-2210
- DEX72 A.R. DEXTER, D.W. TANNER, Packing densities of mixtures of spheres with log-normal size distributions, *Nature physical science*, 1972, vol. 238, pp. 31-32
- DIH00A L.V. DIHORU, L.N. SMITH, R. ORBAN, R.M. GERMAN, Experimental study and neural network modeling of the stability of powder injection molding feedstocks, *Materials and manufacturing processes*, 2000, 15, n°3, pp. 419-438
- DIH00B L.V. DIHORU, L.N. SMITH, R. M. GERMAN, Experimental analysis and neural network modelling of the rheological behaviour of powder injection moulding feedstocks formed with bimodal powder mixtures, *Powder metallurgy*, 2000, 43, n°1, pp. 31-36
- DIN00 D.R. DINGER, One-dimensional packing of spheres, Part I, *American ceramic society bulletin*, 2000, pp. 71-76
- DOD85 J. DODDS, M. LEITZELEMENT, The relation between the structure of packings of particles and their properties, *Physics of finely divided matter*, 1985, proceedings in physics 5
- DOR01 R.A. DOREY, J.A. YEOMANS, P.A. SMITH, J. PAN, In situ optical dilatometric measurements of the initial stages of sintering of alumina, *Acta Materiala*, 2001, 49, pp. 519-527
- DRN00 D. DRNDAREVIC, B. RELJIN, Accuracy modelling of powder metallurgy process using backpropagation NN, *Powder metallurgy*, 2000, 43, n°1, pp. 25-29
- DU01 W.B. DU, K. TATSUZAWA, T. AIZAWA, J. KIHARA, Processing and characterization of alumina wire by controlled fracture forming process: forming behavior and evolution of green microstructure, *Materials science and engineering*, 2001, A316, pp. 238-247
- DUW49 P. DUWEZ, H. MARTENS, A dilatometric study of the sintering of metal powder compacts, *Trans. TMS-AIME*, 1949, 185, pp. 572-576
- EPS62 N. EPSTEIN, M.J. YOUNG, *Nature*, 1962, 196, pp.885
- FLE92 N.A. FLECK, L.T. KUHN, R.M. Mc MEEKING, *Journal of Mech. Phys. Solids*, 1992, 40, pp.1139
- FOU02 J. FOURCADE, F. SUREAU, P. PAPET, Study and modelling of UO<sub>2</sub> powders uniaxial pressing, *Proceedings CIMTEC July 2002 Florence*, 2002
- FRE84 R.G. FREY, J.W. HALLORAN, Compaction behavior of spray-dried alumina, *Journal of the American ceramic Society*, 1984, vol.67 issue 3, pp. 199-203
- GAN02A M.L. GAN, C.L.FENG, R.P. ZOU, A.B. ZOU, The packing of binary mixtures of fine and coarse particles, *proceeding world congress on particle tec*, 2002
- GAN02B M.L. GAN, R.P. ZOU, A.B. YU, The effect of moisture content on the packing of fine particles, *proceeding world congress on particle tec*, 2002



- GAS00 M. GASIK, B. ZHANG, A constitutive model and FE simulation for the sintering process of powder compacts, *Computational materials science*, 2000, 18, pp. 93-101
- GER89A R.M. GERMAN, Packing of monosized nonspherical particles, *Book "Powder packing characteristics"*, 1989, pp. 122-133
- GER89B R.M. GERMAN, Introduction to particle packing, *Book "Powder packing characteristics"*, 1989, pp. 1-20
- GER94A R.M. GERMAN, Chapter 5 : tailoring powders for shaping and consolidation, *Book "Powder Metallurgy science"*, 1994, pp. 158-189
- GER94B R.M. GERMAN, Powder characterization, shaping and compaction, *Book "Powder metallurgy science"*, 1994, pp. 69-70, 205-210
- GER96 R.M. GERMAN, Microstructure and processing relations in solid-state sintering, *Book "Sintering theory and practice"*, 1996
- GRE73 Ja. E. GREGUZIN, Physik des Sinterns, *VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie*, 1973
- GUA02 R. GUARDANI, C.A.O. NASCIMENTO, R.S. ONIMARU, Use of neural networks in the analysis of particle size distribution by laser diffraction: tests with different particle systems, *Powder technology*, 2002, 126, pp. 42-50
- GUP79 S.C. GUPTA, W.E. LARSON, A model for predicting packing density of soils using particle size distribution, *Soil Science of society American journal*, 1979, 43, pp. 758-764
- HAG96 M.T. HAGAN, H.B. DEMUTH, M. BEALE, Neural Network Design, *PWS Publishing Company*, 1995
- HAR83 M.P. HARMER, Use of solid-solution additives in ceramic processing, *Structure and properties of MgO and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*, 1983, 10, pp. 679-696
- HE01 Z. HE, J. MA, Densification and grain growth during interface reaction controlled sintering of alumina ceramics, *Ceramics international*, 2000, 27, pp. 261-4
- HEL85 A.S. HELLE, K.E. EASTERLING, M.F. ASHBY, *Acta Metallographia*, 1985, 33, pp. 2163
- HIR92 Y. HIRATA, A. NISHIMOTO, Y. ISHIHARA, Effects of addition of polyacrylic ammonium on colloidal processing of  $\alpha$ -alumina, *Journal of ceramic society of Japan*, 1992, 100, n°8, pp. 983-990
- HOF96 H. HOFMANN, Characterization of the sintering behavior of commercial alumina powder with a neural network, *Book "Sintering technology"*, 1996, pp. 301-308
- IWA74 H. IWATA, T. HOMMA, Distribution of coordination number in random packing of homogeneous spheres, *Powder technology*, 1974, 10, pp. 79-83
- JI01 C.H. JI, N.H. LOH, K.A. KHOR, S.B. TOR, Sintering study of 316L stainless steel metal injection molding parts using Taguchi method : final density, *Materials science & engineering*, 2001, A311, pp. 74-82
- JIA01 X. JIA, R.A. WILLIAMS, A packing algorithm for particles of arbitrary shapes, *Powder technology*, 2001, vol.120, pp. 175-186
- KEL89 B.J. KELLET, F.F. LANGE, *Journal of American ceramic society*, 1989, 72, pp. 725
- KEN96 V.M. KENKRE, M.R. ENDICOTT, A theoretical model for compaction of granular materials, *Journal of American ceramic society*, 1996, 79, pp. 3045-54
- KIM01 H.S. KIM, Y. ESTRIN, E.Y. GUTMANAS, C.K. RHEE, A constitutive model for densification of metal compacts : the case of copper, *Materials science & engineering A*, 2001, A307, pp. 67-73

- KIM02 H.S. KIM, Constitutive model for cold compaction of ceramic powder, *J. of am. ceramic society*, 2002, 85, pp. 2137-38
- KIN76 W.D. KINGERY, B. FRANCOIS, The sintering of crystalline oxides, *Book "Sintering and related phenomena"*, 1976, pp. 471
- KNI01 P.C. KNIGHT, Structuring agglomerated products for improved performance, *Powder technology*, 2001, 119, pp. 14-25
- LAN89 F.F. LANGE, Powder processing science and technology for increased reliability, *Journal of American ceramic society*, 1989, 72, n°1, pp. 3-15
- LEW01 R.W. LEWIS, A.R. KHOEI, A plasticity model for metal powder forming processes, *International journal of plasticity*, 2001, 17, pp. 1659-1692
- LIU94 Y.M. LIU, H.N.G. WADLEY, J.M. DUVA, *Acta Metall. et Materiala*, 1994, 42, pp. 2247
- LIU96 D.M. LIU, Influence of solid loading and PSD on the porosity development of green alumina ceramic mouldings, *Ceramics international*, 1997, 23, pp. 513-520
- LIU99 D.M. LIU, J.T. LIN, W.H. TUAN, Interdependence between green compact property and powder agglomeration and their relation to the sintering behaviour of zirconia powder, *Ceramics international*, 1999, 25, pp. 551-559
- LOH95 K.C. LOH, D.I.C. WANG, Characterization of pore size distribution of packing materials used in perfusion chromatography using a network model, *Journal of chromatography A*, 1995, n°718, pp. 239-255
- LU94 G.Q. LU, X. SHI, Computer simulation of CIP by random packing of monosized particles, *Journal of materials science letters*, 1994, vol.13, n°23, pp. 1709-1711
- LUK78 S.J. LUKASIEWICZ, J.S. REED, Character and compaction response of spradried agglomerates, *Ceramic bulletin*, 1978, 57, n°9, pp. 798-801
- MAS99 J.C. MASTEAU, G. THOMAS, Modelling to understand porosity and specific surface area changes during tableting, *Powder technology*, 1999, 101, pp. 240-248
- MET99 A. MEHTA, G.C. BARKER, Glassy dynamics in granular compaction, 1999, PACS nb: 45.70, 81.05Rm
- MIL78 J.V. MILEVSKI, Handbook of fillers and reinforcement plastics, *Eds Van Nostrand*, 1978
- NAR85 M. NARDIN, E. PAPIRER, J. SCHULTZ, *Powder Technology*, 1985, 44, pp. 131-140
- NOL93 G.T. NOLAN, P.E. KAVANAGH, Computer simulation of random packings of spheres with log-normal distributions, *Powder technology*, 1993, vol. 76, pp. 309-316
- NOL94 G.T. NOLAN, P.E. KAVANAGH, The size distribution of interstices in random packings of spheres, *Powder technology*, 1994, vol. 78, pp. 231-238
- NOL95 G.T. NOLAN, P.E. KAVANAGH, Random packing of nonspherical particles, *Powder technology*, 1995, vol. 84, pp. 199-205
- ODA02 K. ODAGI, T. TANAKA, K. YAMANE, DEM simulation of compression test of particles, *World congress on particle technology*, 2002, July, Sydney
- PAG96 E. PAGOUNIS, M. TALVITIE, V.K. LINDROOS, Consolidation behavior of a particle reinforced metal matrix composite during HIPing, *Materials research bulletin*, 1996, 31, n°10, pp.1277-1285
- PAN01 R. PANELLI, F.A. FILHO, A study of a new phenomenological compacting equation, *Powder technology*, 2001, 114, pp. 255-261

- PAN98 J. PAN, H. LE, S. KUCHERENKO, J.A. YEOMANS, *Acta Materiala*, 1998, 46, pp. 4671
- PAR98 F. PARHAMI, R.M. McMEEKING, A network model for initial stage sintering, *Mechanics of materials*, 1998, 27, pp. 111-124
- PHI96 A.P. PHILIPSE, The random contact equation and its implications for (colloidal) rods in packings, suspensions, and anisotropic powders, *American chemical society*, 1996, 12, n°5, pp. 1127-33
- PHI97 A.P. PHILIPSE, A. VERBERKMOES, Statistical geometry of caging effects in random thin-rod structures, *Physica A*, 1997, 235, pp. 186-193
- POL00 G.S. POLLOCK, R.B. ELDRIDGE, NN modeling of structured packing of height equivalent to a theoretical plate, *Industrial and engineering chemistry research*, 2000, 39, n°5, pp. 1520-1525
- POQ02 D. POQUILLON, J. LEMAITRE, V. BACO-CARLES, Ph. TAILHADES, J. LACAZE, Cold compaction of iron powders, relations between powder morphology and mechanical properties. Part 1: preparation and compaction, *Powder technology*, 2002, 126, pp. 65-74
- POW80 M.J. POWELL, Computer simulated random packing of spheres, *Powder technology*, 1980, 25, pp. 45-52
- RAH95 M.N. RAHAMAN, Ceramic processing and sintering, *Marcel Dekker Inc.*, 1995
- REE94 J.S. REED, Pressing, *Principles of ceramic processing*, John Wiley & Sons Inc., 1994, pp. 418-447
- SCH92 W. SCHATT, Sintervorgänge, Grundlagen, *VDI Verlag*, 1992
- SER02 C. SERVAIS, R. JONES, I. ROBERTS, The influence of particle size distribution on the processing of food, *Journal of food engineering*, 2002, 51, pp. 201-208
- SHI98 F.S. SHIAU, T.T. FANG, T.S. LEU, Effects of milling and PSD on the sintering behavior and the evolution of the microstructure in sintering powder compacts, *Materials chemistry and physics*, 1998, 57, pp. 33-40
- SHU02 A. SHUI, N. UCHIDA, K. UEMATSU, Origin of shrinkage anisotropy during sintering for uniaxially pressed alumina compacts, *Powder technology*, 2002, 127, pp. 9-18
- SLA92 E.B. SLAMOVICH, F.F. LANGE, *Journal of American ceramic society*, 1992, 75, pp. 2498
- SMI00 L.N. SMITH, L. DIHORU, R. ORBAN, Combining image analysis and NN's optimize powder packing density, *MPR*, 2000, march, pp. 28-31
- SMI02A L.N. SMITH, R.M. GERMAN, M.L. SMITH, A neural network approach of the inverse problem for selection of powder metallurgy materials, *Materials processing technology*, 2002, 120, pp. 419-425
- SMI02B L.N. SMITH, R.M. GERMAN, M.L. SMITH, A neural network approach for solution of the inverse problem for selection of powder metallurgy materials, *Journal of Materials processing technology*, 2002, 120, pp. 419-425
- SMI95 L.N. SMITH, P.S. MIDHA, A knowledge based system for the design of axisymmetric components for manufacture by powder metallurgy techniques
- SMI96 L.N. SMITH, P.S. MIDHA, An interactive system for optimum and concurrent design of components for manufacture by powder metallurgy technology, *Materials processing technology*, 1996, 61, n°1-2, pp. 187-192
- SMI97A L.N. SMITH, P.S. MIDHA, Computer simulation of morphology and packing behaviour of irregular particles, for predicting apparent powder densities, *Computational materials science*, 1997, 7, n°4, pp. 377-383

- SMI97B L.N. SMITH, P.S. MIDHA, Computer simulation of morphology and packing behaviour of irregular particles, for predicting apparent powder densities, *Computational materials science*, 1997, 7, pp. 377-383
- SMI97C L.N. SMITH, P.S. MIDHA, A computer model for relating powder density to composition employing simulations of dense random packings of monosized and bimodal spherical particles, *Materials processing technology*, 1997, 72, pp. 277-282
- SMI98A L.N. SMITH, P.S. MIDHA, Simulation of metal powder compaction for the development of a knowledge based powder metallurgy process advisor, *Materials processing technology*, 1998, 79, n°1-3, pp. 94-100
- SMI98B L.N. SMITH, P.S. MIDHA, On-line control of apparent density : computer simulation and analysis, *The international journal of powder metallurgy*, 1998, 34, n°3, pp. 47-55
- SMI99 L.N. SMITH, P.S. MIDHA, A knowledge based system for optimum and concurrent design, and manufacture by powder metallurgy technology, *International Journal of Production Research*, 1999, 37, n°1, pp. 125-137
- SOH68 H.Y. SOHN, C. MORELAND, The effect of particle size distribution on packing density, *Canadian journal of chemical engineering*, 1968, vol. 46, pp. 162-167
- SON01 J.M. SONNEGAARD, Investigation of a new mathematical model for compression of pharmaceutical powders, *European journal of pharmaceutical sciences*, 2001, 14, pp. 149-257
- STA75 W.J. STAPLE, Influence of size distribution on the bulk density of uniformly packed glass particles, *Soil science society American processing*, 1975, 39, pp. 404-408
- STR99 P. STROEVEN, M. STROEVEN, Assessment of packing characteristics by computer simulation, *Cement and concrete research*, 1999, 29, pp. 1201-1206
- SUN99 X.K. SUN, S.J. CHEN, J.Z. XU, L.D. ZHEN, K.T. KIM, Analysis of cold compaction densification behaviour of metal powders, *Materials science and engineering*, 1999, A267, pp. 43-49
- SUZ01 M. SUZUKI, H. SATO, M. HASEGAWA, M. HIROTA, Effect of size distribution on taping properties of fine powders, *Powder technology*, 2001, 118, pp. 53-57
- SUZ83 M. SUZUKI, T. OSHIMA, Estimation of the coordination number in a multicomponent mixture of spheres, *Powder technology*, 1983, 35, pp. 159-166
- SUZ85 M. SUZUKI, T. OSHIMA, Coordination number of a multicomponent randomly packed bed of spheres with size distribution, *Powder technology*, 1985, 44, pp. 213-8
- SWE03 S.M. SWEENEY, C.L. MARTIN, Pore size distributions calculated from 3D images of DEM-simulated powder compacts, *Acta Materiala*, 2003, 51, n°12, pp. 3635-39
- TAR96 S. TARUTA, N. TAKUSAGAWA, K. OKADA, N. OTSUKA, Slip casting of alumina powder mixtures with bimodal size distribution, *Journal of ceramic society of Japan*, 1996, 104, pp. 447-50
- WAK75 R.J. WAKEMAN, Packing densities of particles with log-normal size distributions, *Powder technology*, 1975, 11, pp. 297-299
- YAN00 R.Y. YANG, R.P. ZOU, A.B. YU, Computer simulation of the packing of fine particles, *Physical review E*, 2000, vol. 62, n°3, pp. 3900-8
- YAN02 R.Y. YANG, R.P. ZOU, A.B. YU, J.Z. LIU, Delaunay analysis of packings of fine uniform particles, *proceeding world congress on particle tec*, 2002

- YAN95 K. YANAI, S. ISHIMOTO, T. KUBO, K. ITO, T. ISHIKAWA, H. HAYASHI, Characterization of ceramic powder compacts, *Journal of nuclear materials*, 1995, 224, pp. 79-84
- YAN81 M.F. YAN, Microstructural control in the processing of electronic ceramics, *Materials science and engineering*, 1981, 48, n°1, pp.53-72
- YU88 A.B. YU, N. STANDISH, An analytical parametric theory of the random packing of particles, *Powder technology*, 1988, 55, pp. 171-186
- YU92A A.B. YU, R.P. ZOU, N. STANDISH, Packing of ternary mixtures of nonspherical particles, *Journal of American ceramic society*, 1992, 75, n°10, pp. 2765-2772
- YU92B A.B. YU, N. STANDISH, Determination of the packing size of a non-spherical particle: an empirical approach, *Particle size analysis (book)*, 1992, Eds. Stanley Wood
- YU93 A.B. YU, N. STANDISH, Characterisation of non-spherical particles from their packing behaviour, *Powder technology*, 1993, vol. 74, pp. 205-213
- YU97 A.B. YU, J. BRIDGWATER, A. BURBIDGE, On the modelling of the packing of fine particles, *Powder technology*, 1997, 92, pp. 185-194
- ZAH01 N. ZAHLAN, D.T. KNIGHT, A. BACKHOUSE, G.A. LEIPER, Modelling powder compaction and pressure cycling, *Powder technology*, 2001, 114, pp. 112-117
- ZHA01 Z.P. ZHANG, L.F. LIU, Y.D. YUAN, A.B. YU, A simulation study of the effects of dynamic variables on the packing of spheres, *Powder technology*, 2001, 116, pp. 23-32
- ZHA99 Y.F. ZHANG, L. LU, S.M. YAP, Prediction of the amount of PCA for mechanical milling, *Materials processing technology*, 1999, vol. 89-90, pp. 260-265
- ZOK91 F. ZOK , F.F. LANGE , Packing density of composite powder mixtures, *journal of American ceramic society* , 1991, 74 n°8, pp. 1880-85
- ZOU01 R.P. ZOU, C.L. FENG, A.B. YU, Packing density of binary mixtures of wet spheres, *Journal to American ceramic society*, 2001, 84, n°3, pp. 504-508
- ZOU96 R.P. ZOU, A.B. YU, Evaluation of the packing characteristics of monosized non-spherical particles , *Powder technology*, 1995, vol. 88, pp. 71-79

GUERIN Violaine  
4, avenue du Léman  
FR-74100 Annemasse  
violaine.guerin@epfl.ch

28 ans

Française, Célibataire, 1 enfant  
+33(0)4 50 43 17 28

**INGÉNIEUR EN SCIENCES ET GÉNIE DES MATÉRIAUX**  
**DOCTORAT EN SCIENCES DE S MATÉRIAUX**

**EXPÉRIENCE PROFESSIONNELLE**

- 2001-2004    Doctorat dans le domaine des matériaux, plus spécifiquement dans la technologie des poudres, EPFL (Lausanne, Suisse)  
- Etude et compréhension des mécanismes de densification de poudres céramiques et métalliques par une approche neuronale
- 2000        Ingénieur recherche, laboratoire de technologie des poudres EPFL, Suisse  
- Recherche de matériaux intermétalliques résistants à l'attaque chimique de l'aluminium liquide, pour l'élaboration de matrices d'injection d'aluminium
- 2000        Stage ingénieur de 6mois, KODAK, Châlon s/s (71, France)  
- Etude, compréhension et résolution des défauts générés lors de la prise de vue sur caméra cinématographique 16mm
- 1999        Stage ingénieur de 5mois, CASE FRANCE, St Dizier (52, France)  
- Etude de la fiabilité et mise en place d'un banc de contrôles non destructifs par courants de Foucault
- Été 1997    Responsable de divers manèges dans un parc d'attraction à Myrtle Beach (South Carolina, USA)
- Été 1996    Employée en supermarché pendant 3 mois, Lyon (69, France)
- Étés 1992-95    Animatrice en colonie et centres de loisirs

**FORMATION**

- 2001 – 2004    Doctorat en sciences des matériaux  
Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, Suisse  
Département des Sciences des Matériaux,  
Laboratoire de Technologie de Poudre
- 1999        Programme intensif sur les matériaux nouveaux et haute technologie  
Université de Zaragoza (Espagne)
- 1999        Diplôme d'ingénieur en sciences et génie des matériaux  
Institut des sciences et techniques de Grenoble (ISTG, France)
- 1996        DEUG A, mathématiques et physique, Université Claude Bernard Lyon 1 (France)
- 1994        Baccalauréat C, mathématiques et sciences physiques (71, France)

**COMPÉTENCES**

Scientifique

- Caractérisation des matériaux (Diffraction par rayons X, Microscopies électronique à balayage et à transmission, Distribution en taille des particules, Essais de dureté, Analyse thermique dilatométrique)
- Mise en forme et frittage de poudres céramiques et métalliques

Management

- Superviseur d'élèves ingénieur en stage au sein d'un laboratoire
- Assistant pour les travaux pratiques des étudiants en métallurgie et technologie des poudres

Informatiques

- Système d'exploitation : Environnement Windows
- Logiciels : Microsoft Office, Origin, Matlab

## Langues

- Français, langue maternelle
- Anglais, courant (langue de travail)
- Allemand, niveau scolaire

## CENTRES D'INTÉRÊTS

Sports : ski, escalade, randonnée en petite et moyenne montagne, Roller-Blade, équitation.

Loisirs : dessin au fusain, jardinage, lecture, voyages

## PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES

Violaine GUERIN, Paul BOWEN, Heinrich HOFMANN, An artificial neural network in order to predict green and sintered densities of commercial powders, *Proceedings of CIMTEC International Conferences Materials and Technologies*, Florence Italie, Juillet 2002.

Violaine GUERIN, Paul BOWEN, Heinrich HOFMANN, Comparison of theoretical Prediction and Experimental Results of the Density of Compacted Powder using a Neural Network, *Proceedings of PM<sup>2</sup>TEC International Conference on Powder Metallurgy and Particulate materials*, New Orleans, Mai 2001.