



HAL
open science

Etude expérimentale et numérique de la sensibilité de compositions énergétiques influence de la microstructure et rôle de l'endommagement

Elodie Kaeshammer

► To cite this version:

Elodie Kaeshammer. Etude expérimentale et numérique de la sensibilité de compositions énergétiques influence de la microstructure et rôle de l'endommagement. Traitement du signal et de l'image [eess.SP]. Université Paris sciences et lettres, 2021. Français. NNT : 2021UPSLM034 . tel-03485254

HAL Id: tel-03485254

<https://pastel.hal.science/tel-03485254v1>

Submitted on 17 Dec 2021

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

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

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PSL

Préparée à MINES ParisTech

**Étude expérimentale et numérique de la sensibilité de
compositions énergétiques : influence de la microstructure
et rôle de l'endommagement**

Soutenue par

Élodie KAESHAMMER

Le 31 03 2021

École doctorale n°621

ISMME

Spécialité

**Morphologie
mathématique**

Composition du jury :

Patrice BAILLY Professeur, INSA Centre Val de Loire	<i>Président</i>
Thierry FOURNEL Professeur, Université Jean Monnet	<i>Rapporteur</i>
Carole NADOT-MARTIN Professeur, Institut P'	<i>Rapporteuse</i>
Michel ARRIGONI Professeur, ENSTA Bretagne	<i>Examineur</i>
Lionel BORNE Chargé de recherche, ISL	<i>Examineur</i>
Petr DOKLÁDAL Chargé de recherche, MINES ParisTech	<i>Co- Directeur de thèse</i>
François WILLOT Chargé de recherche, MINES ParisTech	<i>Directeur de thèse</i>
Steve BELON Ingénieur, CEA Gramat	<i>Invité</i>
Louis-François LOBREAU Ingénieur, DGA	<i>Invité</i>

Remerciements

Cette thèse est le résultat de plus de trois ans de travail, et serait bien différente si je n'avais pas croisé la route de nombreuses personnes. Je vais donc profiter de ces quelques lignes pour les remercier.

Je commence par remercier la Direction Générale de l'Armement (DGA) et le Commissariat à l'Énergie atomique et aux Énergies alternatives (CEA) qui ont financé ces travaux de thèse.

Je tiens ensuite à remercier chaleureusement mes encadrants de thèse : mes deux directeurs François Willot et Petr Dokladal du Centre de Morphologie Mathématique de MINES ParisTech (CMM), Lionel Borne de l'Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis (ISL) et Steve Belon du CEA Gramat. Malgré leurs emplois du temps respectifs très chargés, ils étaient toujours disponibles pour répondre à mes questions et prendre part aux nombreuses visioconférences (quasi hebdomadaires!) d'avancement de thèse. Cette collaboration entre le CMM, le CEA Gramat et l'ISL a été pour moi stimulante. Je pense que peu de doctorants ont la chance de travailler dans d'aussi bonnes conditions. J'ai fini ma thèse avec quatre encadrants, mais nous étions initialement six. Je tiens donc à remercier Benjamin Erzar, qui a encadré mon stage de fin d'études, m'a encouragé à postuler pour cette thèse, et était présent pendant plus d'un an, ainsi que Justine Corbel qui a dû quitter cette équipe quelques mois après le début de la thèse.

Je remercie les membres du jury, présidé par Patrice Bailly, pour le temps qu'ils ont consacré à relire mon manuscrit et pour leurs remarques et questions lors de la soutenance. Je remercie plus particulièrement Carole Nadot-Martin et Thierry Fournel, les deux rapporteurs, pour leur relecture attentive et leurs remarques constructives qui ont permis l'amélioration du manuscrit.

Je tiens ensuite à saluer le travail des techniciens du CEA Gramat et de l'ISL, qui ont fourni les données nécessaires à cette étude. Je remercie donc Patrick Rey et Léa Travichon du CEA Gramat pour toutes les microtomographies. Ils ont accepté, à plusieurs reprises, de refaire des acquisitions pour gagner en résolution. Je remercie ensuite Alexandre Kolb et Cyril Wurthlin qui ont réalisé les expériences de récupération sous choc à l'ISL. Ils ont été efficaces et réactifs en réalisant les deux campagnes de tirs en un temps très court.

Tout au long de mon parcours de doctorante, j'ai pu échanger sur des thèmes scientifiques avec les chercheurs du CMM, du CEA et de l'ISL, mais également avec des chercheurs d'autres institutions lors de plusieurs conférences et séminaires. Je ne peux pas citer toutes les personnes qui m'ont permis de développer mes connaissances scientifiques. Ces échanges ont influencé ma manière de travailler en me permettant d'acquérir de nouvelles idées pour traiter mon sujet de thèse. Je remercie Gérard Baudin, chercheur au Laboratoire Détonique et Thermique (LDT) du CEA Gramat, pour nos discussions sur les équations d'états dans les calculs dynamiques et pour ses nombreux commentaires sur le manuscrit de thèse. Antoine Osmont, à la tête du LDT, a également pris le temps de relire attentivement ce manuscrit. Je remercie également Hervé Trumel du CEA Le Ripault, pour ses explications sur ses expériences de récupération sous choc. Cet échange eut lieu pendant un repas, lors d'une conférence à Oléron, et avait débuté sur une serviette de table avant qu'on ne réussisse à trouver du papier. Je souhaite aussi remercier Anthony Beaux,

rencontré lors des journées matériaux numériques, qui m’a envoyé ses planches pour partager son algorithme de calcul de points de contact.

La première partie de ma thèse s’est déroulée au CMM à Fontainebleau. Je souhaite donc remercier Michel Bilodeau pour m’avoir accueilli dans son laboratoire, ainsi que tous les chercheurs du CMM avec qui j’ai pu partager de beaux moments de convivialité autour d’un café et de viennoiseries. J’ai passé les deux dernières années de ma thèse au CEA Gramat, dans le laboratoire Matériaux et Structures sous Aggression (LMSA) dirigé par Marie Roudot. Je la remercie, tout comme mes autres collègues du CEA, pour l’accueil chaleureux qu’ils m’ont offert. J’ai apprécié partager les nombreuses pâtisseries comme les forêts noires, milles feuilles, croissants, galettes des rois, crêpes, éclairs, cake... dans la bonne humeur qui caractérise, entre autres, ce laboratoire.

Je souhaite maintenant remercier tous les collègues et amis que j’ai côtoyé pendant ces trois années. Ils m’ont permis de rester positive, même pendant la rédaction du manuscrit! Merci à tous les doctorants de Fontainebleau avec qui j’ai joué au tarot (non je ne suis pas toujours la vendue!), fait du ski, discuté tricot et couture, et pour ces innombrables vendrefrites. Malgré mon déménagement et la distance, ils peuvent passer me voir à tout moment dans la campagne gramatoise. Je remercie ensuite mes amis rencontrés à Gramat pour tous les tournois de pétanques, les après-midi et soirées jeux, les randonnées, les sorties cinéma pour voir les films d’auteurs (ou pas)... Un merci particulier à ceux qui ont accepté de me suivre au tournoi international de belote de Gramat. Dès la réouverture du bar, nous pourrons reprendre les entraînements et la prochaine fois, nous gagnerons le demi-chevreuil! Un grand merci à mes compagnons de confinement Maëlle, Pierre-Louis et Valentin sans qui la rédaction de la partie bibliographie aurait été nettement plus compliquée. Enfin, merci à Fanny, Maxime et Damien pour les repas gargantuesques du dimanche soir, et pour ma portion de restes qui me permettait de ne pas cuisiner pendant plusieurs jours, ce qui m’a permis de me consacrer pleinement à la rédaction.

Pour finir, je remercie toute ma famille, et plus particulièrement mes parents et ma sœur. Merci également à mes grands-parents qui ont réussi à dompter Zoom pour assister à ma soutenance. Et enfin, un gros merci à ma mère qui a relu entièrement, et à deux reprises, mon manuscrit pour corriger mes fautes d’orthographe.

Je tenais à clôturer ces remerciements en partageant avec vous mon fond d’écran, qui même après plus de deux ans me fait toujours autant rire. Quelques uns de mes collègues ont accepté de me faire des dessins... il est clair que la voie artistique n’est pas une option pour certains d’entre nous.

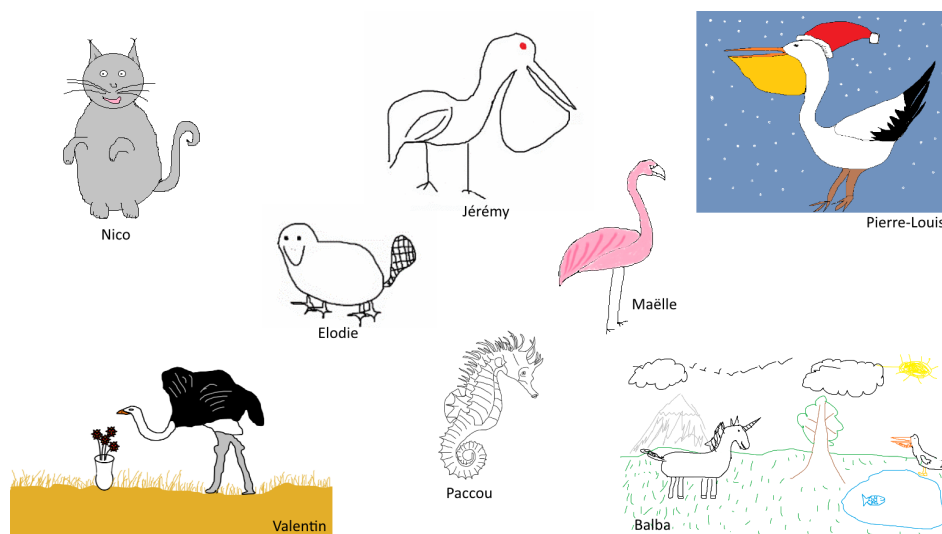


FIGURE 1 – Fond d’écran collaboratif

Table des matières

Table des matières	iii
Liste des figures	vii
Liste des tableaux	xv
Introduction	1
I Étude bibliographique	7
1 Introduction sur les matériaux énergétiques	9
1.1 Généralités sur les matériaux énergétiques	9
1.2 Théories classiques de la détonation	12
1.2.1 Physique des chocs	12
1.2.2 Modèle de détonation de Chapman-Jouguet (CJ)	13
1.2.3 Modèle de détonation de Zeldovitch, Von Neumann, Döring (ZND)	14
1.3 Transition Choc-Détonation (TCD)	15
1.3.1 Mesure de la sensibilité au choc d'un explosif	15
1.3.2 Introduction de la théorie des points chauds	18
1.3.3 Paramètres microstructuraux influençant la sensibilité au choc	20
1.3.4 Modèles d'amorçage par choc	22
2 Simulations dynamiques sur des matériaux énergétiques à l'échelle mésoscopique	27
2.1 Codes de calculs dynamiques	27
2.2 Modélisation à l'échelle mésoscopique	29
2.2.1 Modélisation du comportement des matériaux	29
2.2.2 Modélisation de la microstructure	33
2.3 Mécanismes identifiés conduisant à la formation d'un point chaud	36
2.3.1 Implosion de pores intra-granulaires	36
2.3.2 Bandes de cisaillement, fissuration et friction...	38
2.3.3 Influence de la microstructure et de la sollicitation	39
2.4 Conclusion	40
3 Outils de traitement d'images	43
3.1 Introduction sur le traitement d'images	43
3.2 Morphologie mathématique en traitement d'images	43
3.2.1 Éléments structurants	44
3.2.2 Opérateurs morphologiques	44
3.2.3 Outils de mesure morphologique	46
3.3 Segmentation d'images	47
3.3.1 Généralités sur la segmentation	47
3.3.2 Segmentation d'images expérimentales de milieux granulaires	48
3.3.3 Segmentation avec SAMG	53

3.4	Conclusions de l'étude bibliographique	59
II	Caractérisation fine de la microstructure des matériaux énergétiques d'étude	61
4	Présentation des matériaux énergétiques d'étude	63
4.1	Propriétés de l'hexogène (RDX)	63
4.1.1	Propriétés physico-chimiques du RDX	63
4.1.2	Propriétés mécaniques du RDX	65
4.1.3	Modélisation du comportement du RDX sous choc	66
4.2	Propriétés de la cire	68
4.2.1	Propriétés physico-chimiques de la cire	68
4.2.2	Propriétés mécaniques de la cire	69
4.2.3	Modélisation du comportement de la cire sous choc	71
4.3	Présentation des trois matériaux RDX/cire	72
4.3.1	Formulation	72
4.3.2	Modélisation macroscopique du comportement sous choc du matériau d'étude	73
4.3.3	Sensibilité au choc soutenu des trois matériaux	74
4.4	Conclusion	76
5	Traitement d'images sur les images de microtomographie	77
5.1	Présentation des microtomographies	77
5.1.1	Généralités sur la microtomographie	77
5.1.2	Microtomographies des matériaux d'étude	79
5.2	Traitement d'images sur les microtomographies avec l'outil SAMG	81
5.2.1	Paramètres de filtrage et de segmentation	81
5.2.2	Représentativité du volume segmenté	86
5.2.3	Comparaison des résultats de segmentation avec des données expérimentales	89
5.3	Conclusions sur la segmentation des microtomographies	99
6	Caractérisation des microtomographies segmentées	101
6.1	Caractérisation morphologique et globale	101
6.1.1	Granulométrie par ouverture	101
6.1.2	Covariance spatiale	102
6.1.3	Module de compressibilité	104
6.1.4	Points de contact	109
6.1.5	Conclusions sur la caractérisation globale	112
6.2	Caractérisation des différents types de grains de RDX	112
6.2.1	Descripteurs géométriques pour caractériser la forme de grains	112
6.2.2	Critère d'angularité	115
6.2.3	Analyse statistique	122
6.2.4	Conclusions sur la caractérisation des grains	134
III	Modélisation de matériaux énergétiques	137
7	Génération de microstructures à partir de microtomographies	139
7.1	Génération des microstructures	139
7.1.1	Méthodologie	139
7.1.2	Résumé des microstructures disponibles	141
7.2	Comparaison des microstructures virtuelles avec les matériaux réels	146
7.2.1	Contrôle de la granulométrie et de la covariance spatiale	146
7.2.2	Contrôle du module de compressibilité	147
7.3	Conclusions et perspectives	152

8 Simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique	155
8.1 Simulations avec le code de calcul OURANOS	155
8.1.1 Présentation du code OURANOS	155
8.1.2 Calcul de la température	156
8.2 Configurations testées	158
8.2.1 Géométries	158
8.2.2 Modélisation des matériaux	159
8.3 Exploitation des simulations numériques	161
8.3.1 Calculs en 2D	161
8.3.2 Calculs en 3D	173
8.4 Conclusions et perspectives	180
IV Expérimental	183
9 Mise en place d'expériences de récupération	185
9.1 Dispositifs de récupération sous choc envisagés	185
9.2 Conceptions et réalisation des tirs	186
9.2.1 Choix des matériaux et de la géométrie	186
9.2.2 Réalisation des tirs à l'ISL	190
9.3 Visualisation des premiers résultats	197
9.4 Conclusions et perspectives	206
Conclusions	207
Perspectives	211
A Détection des défauts intra-granulaires	I
B Informations complémentaires du chapitre 8	III
C Microtomographies	IX
Bibliographie	XXXVIII

Liste des figures

1	Fond d'écran collaboratif	ii
2	Plan de travail	3
1.1	Formules squelettiques de différents explosifs : (a) nitroglycérine (NG), (b) trinitrotoluène (TNT), (c) hexogène (RDX), (d) octogène (HMX) et (e) hexanitrohexaazaiso-wurtzitane (CL-20)	11
1.2	Schéma du principe de la mise en détonation par choc d'un explosif, soit des étapes de la TCD	12
1.3	Schéma d'une onde de choc se propageant dans un milieu au repos	12
1.4	Représentation dans le plan (P, ν) de la courbe d'Hugoniot et de la droite de Rayleigh	13
1.5	Représentation dans le plan (P, ν) de la courbe d'Hugoniot, de la courbe de Crussard et de la droite de Rayleigh pour déterminer l'état CJ	14
1.6	Représentation dans le plan (P, ν) de la courbe d'Hugoniot, de la courbe de Crussard et de la droite de Rayleigh pour déterminer l'état CJ et l'état ZND	15
1.7	Schéma du <i>small gap test</i> de l'US Naval Ordnance Laboratory (image extraite de [1]).	16
1.8	Diagramme Pop-plot de différents explosifs [2]	17
1.9	(a) Schéma du dispositif expérimental historique du test du coin et (b) image obtenue par la caméra à fente sur un échantillon de cyclotol (RDX/TNT 65/35) [3]	17
1.10	Schéma de la formation des points chauds suite à un choc inerte. D est la vitesse de l'onde de choc.	18
1.11	Schéma des étapes de l'amorçage par points chauds.	19
2.1	Microstructure générée par partitionnement de (a) Voronoï, (b) Laguerre et (c) Johnson-Mehl. Les images proviennent de [4].	35
2.2	Schéma du principe d'implosion de pore inspiré de [5, 6]	38
2.3	Image d'un explosif à base de TATB obtenue par microscopie optique en réflexion et lumière polarisée. Des bandes de cisaillement, indiquées par des flèches, apparaissent suite à la mise en forme par pressage. Image provenant de [7].	38
3.1	Éléments structurants élémentaires : (a) carré B_8^1 , (b) croix B_4^1 , (c) croix 3D B_6^1 . L'origine est indiquée en noir.	44
3.2	Schéma du principe de la dilatation d'un ensemble X par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$: (a) Image d'origine, (b) translaté par b_1 , (c) translaté par b_2 , (d) l'union des translatés donnant le résultat de la dilatation $\delta_B X$ en rouge	45
3.3	Schéma du principe de l'érosion d'un ensemble X par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$: (a) Image d'origine, (b) translaté par $-b_1$, (c) translaté par $-b_2$, (d) l'intersection des translatés (b) et (c) donnant le résultat de l'érosion $\epsilon_B X$ en rouge	45
3.4	Visualisation de l'influence du choix de l'élément structurant sur le résultat d'une dilatation et d'une érosion	46
3.5	(a) Image d'une microstructure granulaire seuillée, (b) sa covariance spatiale avec un élément structurant linéaire horizontal et (c) sa courbe granulométrique avec un élément structurant de type carré	47

3.6	Visualisation de l'effet de différents filtres sur (a) une image d'un milieu granulaire. Les filtres appliqués sont : (b) un filtre gaussien avec $\sigma = 3$, (c) un filtre médian de taille 7, (d) un filtre de débruitage par patches avec $s = 5$, $r = 10$ et le coefficient de similarité $h = 15$, (e) un filtre bilatéral avec $\sigma_r = 0.1$ et $\sigma_d = 10$	51
3.7	Histogramme de l'image 3.6a	52
3.8	Schéma simplifié des étapes de la chaîne de traitement de SAMG	54
3.9	Détermination de $\sigma_{r,i}^-$ et $\sigma_{r,i}^+$ pour le filtre bilatéral à partir des gaussiennes modélisant l'histogramme. L'histogramme apparait en pointillé, les gaussiennes modélisant les classes en bleu et rouge.	56
3.10	Illustration de la correction de la sur-segmentation avec le critère d'étranglement	57
3.11	Coupes extraites d'un volume microtomographié à différentes étapes du traitement de SAMG : (a) image originale, (b) image filtrée, (c) image sur-segmentée après la ligne de partage des eaux et (d) segmentation finale.	58
4.1	Représentation d'une molécule de RDX : (a) formule topologique, (b) visualisation en 3D	64
4.2	Diagramme de phase du RDX. Diagramme provenant de l'article [8]	64
4.3	Courbes de compression du RDX. Les données de Olinger [9], Yoo [10], Davidson [11] et Oswald [8] sont obtenues par compression isotherme. Les données provenant de Dobratz [12] et de Ilyukhin [13] sont obtenues par choc.	67
4.4	Mesure de la capacité calorifique en fonction de la température des cires LICOWAX et DICERA	69
4.5	Coefficient de dilatation thermique volumique de la cire DICERA mesuré au dilatomètre	70
4.6	Explications du procédé de fabrication et des caractéristiques du RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX. Les images sont obtenues au microscope optique avec adaptation de l'indice de réfraction.	72
4.7	Principe de l'expérience d'impact par petits projectiles de l'ISL	75
4.8	(a) Radiographies à deux temps différents pour déterminer la vitesse du projectile lors de l'impact. La radiographie du haut, postérieure à celle du bas, a été prise juste avant l'impact du projectile avec l'échantillon. (b) Relevé du temps de transit dans un échantillon à base de RS-RDX en fonction de la vitesse du projectile.	75
4.9	Seuils de détonation des matériaux avec différents types de grains de RDX obtenus par test d'impact par petits projectiles.	75
5.1	Schéma du principe de la microtomographie - image provenant de [14]	78
5.2	Coupe (2850x2850 pixels) d'une microtomographie du matériau RS-RDX/cire	80
5.3	Coupes (600x600 pixels) extraites de microtomographies des différents matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire, (c) VI-RDX/cire	80
5.4	Coupes extraites d'un volume segmenté RVI-RDX/cire à différentes étapes du processus de segmentation de SAMG : (a) microtomographie originale, (b) image seuillée, (c) image filtrée, (d) première segmentation avec beaucoup de grains sur-segmentés et (e) segmentation finale après correction de la sur-segmentation.	82
5.5	Volume de 1000^3 voxels microtomographiés de (a) RS-RDX/cire, (c) RVI-RDX/cire et (e) VI-RDX/cire et leur segmentation associée (respectivement (b),(d),(f))	84
5.6	Coupes extraites de volumes segmentés de 1000^3 voxels pour les matériaux (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire	85
5.7	Coupes de 1000^3 voxels du volume Vid présentant des anneaux de reconstruction sur (a) la microtomographie, (b) la segmentation correspondante et (c) la zone d'exclusion pour l'extraction des grains.	85
5.8	Fraction surfacique des grains dans des coupes extraites d'un volume microtomographié segmenté de 1000^3 voxels en fonction de la position de la coupe. La fraction surfacique moyenne de 55,5 % est tracée en pointillé.	87

5.9	Variance de la fraction volumique moyennée sur les quatre volumes segmentés pour chacun des matériaux en fonction de la taille du volume. Les régressions linéaires associées permettent de déterminer les grandeurs α et V_0 pour chacun des trois matériaux.	88
5.10	Distributions des diamètres des grains de RDX obtenues expérimentalement	89
5.11	Comparaison de la distribution de diamètre des grains de VI-RDX fournie par le dispositif de mesure expérimental (courbe lissée) avec la courbe recalculée à partir des données brutes	90
5.12	Comparaison de la distribution des diamètres moyens, équivalents en surface, équivalents en volume de la bibliothèque de grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX	91
5.13	Comparaison des diamètres expérimentaux et des diamètres équivalents en surface obtenus par traitement d'images pour les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. Les distributions en couleurs sont celles obtenues sur les bibliothèques de grains, les distributions en gris sont celles obtenues après la correction de Miles-Lantuéjoul.	93
5.14	Distributions cumulatives des densités des grains de RDX obtenues par méthode de flottation	94
5.15	Définition des classes de grains de RS-RDX à partir de la première mesure par méthode de flottation	94
5.16	Détermination de la densité du solvant dans les inclusions pour que la distribution cumulative de densité apparente des grains de RS-RDX obtenue par traitement d'images corresponde aux résultats expérimentaux	97
5.17	Comparaison des distributions cumulatives de densités obtenues expérimentalement et par analyse d'images pour les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. Les cavités visibles par traitement d'images dans les grains sont considérées comme remplies d'air (courbes claires) ou d'un solvant d'une densité de 1,0 (courbes foncées).	98
6.1	Granulométrie par ouverture des grains de RDX et du liant pour les matériaux (a-b) RS-RDX/cire, (c-d) RVI-RDX/cire et (e-f) VI-RDX/cire.	103
6.2	Comparaison des courbes granulométriques des trois matériaux pour (a) les grains de RDX et (b) le liant	104
6.3	Covariance spatiale des grains de RDX pour les matériaux à base de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. L'asymptote p^2 est tracé en pointillés noirs avec p égal à la moyenne de la fraction volumique sur les quatre volumes segmentés de chaque matériau (Tab. 5.3).	105
6.4	Comparaison des covariances spatiales entre tous les volumes segmentés. L'asymptote p^2 est tracée pour une valeur p égale à la fraction volumique théorique de RDX de 0,56.	106
6.5	Coupes extraites de volumes de 1000^3 voxels des contraintes moyennes pour les matériaux à base de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX	108
6.6	Distributions des contraintes moyennes, dans les quatre volumes de chaque matériau, sur une échelle logarithmique dans (a) les grains de RDX et (b) dans le liant. La valeur absolue des contraintes moyennes négatives est également tracée pour faire apparaître les contraintes moyennes négatives. Les distributions sur une échelle linéaire sont présentées sur la sous-figure en bas à gauche.	109
6.7	Bornes d'Hashin-Shtrikman pour les matériaux RDX/Cire. Les modules d'élasticité isostatiques moyens calculés à partir des quatre volumes de chaque matériau sont également indiqués.	109
6.8	Distribution de la connectivité sur les quatre volumes de chaque matériau. La distribution est représentée sur une échelle linéaire sur la sous-figure à droite.	111
6.9	Distribution de la surface de contact sur les quatre volumes de chaque matériau.	111

6.10	Diagramme de Zingg pour les particules de RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX	114
6.11	Schémas de la méthode de calcul des indices de sphéricité de (a) Wadell [15], (b) Bullard [16], (c) Alshibli [17] et (d) Delloro [18]	115
6.12	Comparaison de deux particules avec le même indice de rondeur selon Wadell [15] mais avec des angularités différentes	116
6.13	Schéma des éléments géométriques permettant de calculer le facteur de forme et l'indice d'angularité selon Sukumaran et Ashmawy [19]	117
6.14	Schéma du principe de calcul de l'indice d'angularité par gradient sur (a) une particule quelconque et (b) un disque	118
6.15	Schéma du principe de calcul de l'indice d'angularité par rayon	118
6.16	Schéma de rayons tangents maximaux inscrits	120
6.17	Nouvel indice d'angularité sur quelques formes de référence	121
6.18	Nouvel indice d'angularité en fonction de la taille de particules en forme de disque, carré ou triangle équilatéral	122
6.19	Distributions sur une échelle logarithmique (a) de la surface reconstruite et de la surface par gradient, ainsi que (b) du volume pour les trois types de RDX.	123
6.20	Distributions sur une échelle logarithmique (a) du diamètre équivalent en volume, (b) du diamètre équivalent en surface et (c) du diamètre moyen pour les trois types de RDX.	124
6.21	Comparaison des distributions des indices de sphéricité de (a) Wadell [15], (b) Bullard [16], (c) Alshibli [17] et (d) Delloro [18] sur les trois types de RDX	125
6.22	Distributions du nouvel indice d'angularité pour les trois types de RDX	125
6.23	Distributions de la convexité pour les trois types de RDX	126
6.24	Exemple de grains maclés de (a) RS-RDX et (b) RVI-RDX avec des tailles et des indices de convexité similaires	126
6.25	Distributions sur une échelle logarithmique (a) du volume total, (b) du volume moyen et (c) du nombre des défauts intra-granulaires par grain pour les trois types de RDX	127
6.26	Nuage de points de descripteurs des défauts intra-granulaires : (a) en 3D, (b) nombre de cavités en fonction du volume total des cavités et (c) nombre de cavités en fonction du volume moyen des cavités	128
6.27	Détermination du nombre de composantes principales à retenir avec (a) l'éboullis des valeurs propres et (b) la somme cumulée de la variance en fonction du nombre de composantes principales étudiées	130
6.28	Cercle de corrélation (a) des composantes principales 1 et 2 (avec (b) zoom sur le quart en haut à droite) et (c) des composantes principales 3 et 4	131
6.29	Projection du nuage de points dans les plans formés (a) des axes principaux 1 et 2, (b) des axes principaux 3 et 4 et (c) dans le repère formé des axes principaux 1, 2 et 3	132
6.30	Matrice de covariance des descripteurs (en valeurs absolues) pour chaque type de grain de RDX	133
7.1	Schéma des différentes étapes pour générer des microstructures virtuelles	140
7.2	Coupes extraites de volumes de 1000^3 (a) d'une microstructure segmentée, et de modèles générés avec une répulsion nulle en sélectionnant les grains (b) aléatoirement, (c) avec un indice de sphéricité $S_W < 0,82$, (d) avec un indice de sphéricité $S_W > 0,82$, (e) avec un indice d'angularité $I_a < 0,30$ et (f) avec un indice d'angularité $I_a > 0,30$	143
7.3	Comparaison des distributions entre le matériau réel et plusieurs modèles avec des méthodes de sélection des grains différents (modèles numérotés 10, 13, 14, 16, 19) de (a) l'indice d'angularité I_a et (b) l'indice de sphéricité de Wadell S_W	144
7.4	Comparaison des distributions entre le matériau réel et plusieurs modèles avec des méthodes de sélection des grains différentes (modèles numérotés 10, 13, 14, 16, 19) de (a) l'indice de sphéricité de Bullard S_B , (b) l'indice de sphéricité d'Alshibli S_A , (c) l'indice de sphéricité de Delloro S_D et (d) le nombre de défauts intra-granulaires par grain	145

7.5	Granulométrie des microstructures segmentées et de plusieurs modèles (numérotés 10, 14, 19) avec différentes méthode de sélection des grains pour (a) les grains et (b) le liant	146
7.6	Covariance spatiale des microstructures segmentées et de plusieurs modèles (numérotés 10, 14, 19) avec différentes méthodes de sélection des grains	147
7.7	Comparaison des distributions de (a) la connectivité et (b) les surfaces de contacts entre le matériau réel et trois modèles des distances de répulsion de 0 (modèle n°3), -3 (modèle n°4) et -5 voxels (modèle n°5)	149
7.8	Comparaison d'une microstructure (a) avant et (b) après l'introduction de points de contact par une fermeture puis une récupération de la porosité	149
7.9	Granulométrie des microstructures segmentées et du modèle 9 avec sélection aléatoire des grains de VI-RDX avant et après ajout de points de contact par fermeture morphologique pour (a) les grains et (b) le liant	149
7.10	Covariance spatiale des microstructures segmentées et du modèle 9 avec sélection aléatoire des grains de VI-RDX avant et après ajout de points de contact par fermeture morphologique	150
7.11	Comparaison des distribution (a) de la connectivité et (b) des surfaces de contact entre le matériau réel et deux modèles avec des paramètres identiques (1000^3 voxels, de distance de répulsion nulle, sélection aléatoire des grains) mais des fractions volumique de 54 % (modèle 8) et 56 % (modèle 10)	151
7.12	Distribution de la contrainte moyenne de la microtomographie segmentée VIb et du modèle généré avec une répulsion nulle et une sélection des grains aléatoire (modèle 9) avant et après fermeture (a) dans les grains de RDX et (b) dans le liant	151
7.13	Comparaison des distribution (a) de la connectivité et (b) des surfaces de contact entre le matériau réel et trois modèles avec différentes méthodes de sélection des grains : aléatoire (modèle 10), où l'indice de sphéricité est supérieur à 0,82 (modèle 14) , où l'indice d'angularité est supérieur à 0,3 (modèle 19)	152
7.14	Distribution de la contrainte moyenne de la microtomographie segmentée VIb et de différents modèles générés avec sélection aléatoire des grains ou selon leur angularité et sphéricité (modèle 9, 15, 19) après l'ajout des contacts (a) dans les grains de RDX et (b) dans le liant	152
8.1	Schéma de la géométrie des simulations numériques sur une coupe extraite du matériau RS-RDX/cire	159
8.2	Comparaison des distributions dans les grains de RDX 900 ns après le choc (a) de la pression et (b) de la température pour différentes équations d'état	160
8.3	Coupes extraites des microtomographies des matériaux (a-c) RS-RDX/cire, (d-f) RVI-RDX/cire et (g-h) VI-RDX/cire	162
8.4	Covariance spatiale des grains, granulométrie par ouverture des grains et granulométrie par ouverture du liant pour les coupes de (a-c) RS-RDX/cire, (d-f) RVI-RDX/cire et (g-i) VI-RDX/cire	163
8.5	Champs des pressions et des températures dans la coupe 848 (Fig. 8.3b) du matériau RS-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns	165
8.6	Champs des pressions et des températures dans la coupe 390 (Fig. 8.3e) du matériau RVI-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns	166
8.7	Champs des pressions et des températures dans la coupe 911 (Fig. 8.3i) du matériau VI-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns	167
8.8	Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de VI-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.	168
8.9	Comparaison des distributions de pression dans les grains entre les trois matériaux sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 750 ns après le choc	169

8.10	Comparaison des distributions de température dans les grains entre les trois matériaux sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 750 ns après le choc	170
8.11	Localisation des points chauds dans les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX	171
8.12	Granulométrie par ouverture morphologique (a) des grains et (b) de la cire dans les huit coupes sélectionnées de chaque matériau	172
8.13	Distribution de pression dans les grains de RVI-RDX à 100 ns : (a) distribution de huit coupes et (b) distribution moyenne et son enveloppe formée des valeurs minimales et maximales des distributions présentées sur la figure (a)	173
8.14	Distributions de pression dans les grains derrière le front de choc pour le matériau à base de VI-RDX à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns	174
8.15	Évolution de l'épaisseur de l'enveloppe en fonction du temps (a) des distributions de pression et (b) des distributions de température	175
8.16	Comparaison des distributions de pression dans les grains entre les trois matériaux sans porosités sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns et (c-d) 800 ns après le choc	175
8.17	Comparaison des distributions de température entre les trois matériaux sans porosités sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 800 ns après le choc	176
8.18	Comparaison des distributions de pression derrière le front de choc entre le cas 2D et le cas 3D : dans les grains de RS-RDX à (a) 100 ns et (b) 400 ns, dans les grains de RVI-RDX à (c) 100 ns et (d) 400 ns, dans les grains de VI-RDX à (e) 100 ns et (f) 400 ns	178
8.19	Comparaison des distributions de température derrière le front de choc entre le cas 2D et le cas 3D : dans les grains de RS-RDX à (a) 100 ns et (b) 400 ns, dans les grains de RVI-RDX à (c) 100 ns et (d) 400 ns, dans les grains de VI-RDX à (e) 100 ns et (f) 400 ns	179
9.1	Schéma (a) du dispositif de relèvement de plaque et (b) du boîtier de récupération	186
9.2	(a) Schéma de la configuration testée : projectile en aluminium avec une vitesse de 800 m/s, plaque arrêteur d'une épaisseur de 5mm, épaisseur du boîtier de 5 mm. La pression dans l'explosif est déterminée par (b) croisement des polaires de choc pour la configuration (a).	188
9.3	Pression de choc théorique dans l'explosif en fonction du type de projectile et de sa vitesse	188
9.4	Simulations AUTODYN réalisée par l'ISL pour contrôler la perforation d'une plaque en acier et la déformation du boîtier en téflon après l'impact d'un projectile en aluminium de 700 m/s	190
9.5	Simulations numériques d'un essai de récupération à 800 m/s : (a) position des traceurs sur la géométrie, (b) visualisation de l'onde de choc se propageant dans le dispositif à 5,5µm après l'impact, (c) pression dans l'explosif et (d) contrainte longitudinale dans l'explosif	191
9.6	Schémas (a) du dispositif de récupération sous choc et (b) dimensions du boîtier	192
9.7	Description du dispositif expérimental sur une vue latérale	193
9.8	Description du dispositif expérimental sur une vue axiale depuis la bouche du canon	193
9.9	Photos de (a) la capsule, du bouchon (téflon) et de l'échantillon (KCl/cire) avant impact, et (b) des éléments du boîtier récupérés après un impact avec un projectile en téflon à 1063 m/s	194
9.10	Analyse de la radio du tir numéro 10	195
9.11	Radiographies des tirs (a) numéro 2 sur l'échantillon RS-RDX/cire, (b) numéro 6 sur l'échantillon RVI-RDX/cire et (c) numéro 10 sur l'échantillon VI-RDX/cire	196
9.12	Photos des plaques en acier après impact pour les tirs (a) numéro 2 sur l'échantillon RS-RDX/cire, (b) numéro 6 sur l'échantillon RVI-RDX/cire et (c) numéro 10 sur l'échantillon VI-RDX/cire	197

9.13	Visualisation de l'orientation des plans de coupe	198
9.14	Coupes horizontales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de 6 μm /voxel) des échantillons sains de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm de la face d'entrée du choc.	200
9.15	Coupes verticales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de 6 μm /voxel) des échantillons sains de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm du bord de la capsule.	201
9.16	Coupes verticales extraites des microtomographies en région d'intérêt (résolution de 2 μm /voxel) des échantillons sains des matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire	202
9.17	Coupes horizontales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de 6 μm /voxel) des échantillons endommagés de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 1,5 mm de la face d'entrée du choc.	203
9.18	Coupes verticales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de 6 μm /voxel) des échantillons endommagés de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm du bord de la capsule	204
9.19	Coupes verticales extraites des microtomographies en région d'intérêt (résolution de 2 μm /voxel) des échantillons endommagés des matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire	205
A.1	Exemple d'une image d'un grain contenant trois cavités	I
A.2	Étapes dans la détection des cavités avec l'opérateur <code>fill holes</code>	II
A.3	Identification et labélisation des cavités	II
B.1	Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de RS-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.	IV
B.2	Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de RVI-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.	V
B.3	Huit coupes extraites des microtomographies des matériaux (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire avec une fraction surfacique de 56 %	VI
B.4	Enveloppe des distributions dans les grains pour le matériau à base de RS-RDX de la pression à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns	VII
B.5	Enveloppe des distributions dans les grains pour le matériau à base de RVI-RDX de la pression à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns	VIII
C.1	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RS-RDX/cire sain	X
C.2	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RS-RDX/cire endommagé	XI
C.3	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire sain	XII
C.4	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire endommagé	XIII
C.5	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau VI-RDX/cire sain	XIV
C.6	Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau VI-RDX/cire endommagé	XV
C.7	Microtomographie (coupe perpendiculaire front de au choc) du matériau RS-RDX/cire sain	XVI
C.8	Microtomographie (coupe perpendiculaire front de au choc) du matériau RS-RDX/cire endommagé	XVII
C.9	Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire sain	XVIII

C.10 Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire endommagé	XIX
C.11 Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau VI-RDX/cire sain	XX
C.12 Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau VI-RDX/cire endommagé	XXI

Liste des tableaux

1.1	Propriétés de détonation de différents explosifs	11
2.1	Modélisation de matériaux isotropes avec des comportements élastique linéaire et thermo-élastique linéaire	30
4.1	Paramètres de maille du RDX [20]	63
4.2	Résumé des coefficients de dilatation thermique du RDX disponibles dans la littérature	64
4.3	Propriétés de l'hexogène	65
4.4	Résumé des modules élastiques en GPa du RDX obtenus par différents moyens expérimentaux dans la littérature	65
4.5	Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ du RDX	67
4.6	Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser le RDX dans les simulations dynamiques	68
4.7	Propriétés de la cire	70
4.8	Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des cires DICERA et LICOWAX déterminés expérimentalement	71
4.9	Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser la cire dans les simulations dynamiques	72
4.10	Liste des échantillons RDX/cire (70/30 en masse) fournis par l'ISL	73
4.11	Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des matériaux RDX/cire (70/30 en masse)	73
4.12	Coefficients de l'équation d'état de Cochran-Chan du mélange RDX/cire (70/30 en masse)	73
5.1	Résolutions des microtomographies	79
5.2	Caractéristiques des volumes de 1000^3 voxels segmentés des matériaux RS-RDX/cire, RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire.	83
5.3	Nombre de grains extraits et fraction volumique moyenne sur quatre volumes segmentés pour chacun des trois matériaux	86
5.4	Résumé des résultats de l'étude de la variance de la fraction volumique en fonction de la taille du volume sur les volumes segmentés de chacun des trois matériaux.	88
5.5	Fraction volumique totale de défauts intra-granulaires (en %) déterminée selon deux méthodes et deux hypothèses. La première méthode utilise uniquement les données expérimentales pour calculer la fraction volumique de défauts. La deuxième méthode combine les données expérimentales avec le traitement d'images pour obtenir une meilleure précision. Chaque calcul est mené en supposant que les défauts sont soit des pores, soit des inclusions de solvant.	96
6.1	Modules de compressibilité pour les volumes des matériaux RS-RDX/Cire, RVI-RDX/Cire et VI-RDX/Cire	107
6.2	Moyenne du module de compressibilité K obtenue sur les quatre volumes d'étude de chaque matériau. L'écart type est indiqué entre parenthèses.	107

6.3	Moyenne de la connectivité et de la surface de contact par grain sur les quatre volumes segmentés. L'écart type est présenté entre parenthèses.	110
6.4	Connectivité et surface de contact moyenne par grain sur les différents volumes segmentés	111
7.1	Exemple de la répartition des grains dans 8 classes selon le volume des grains pour la bibliothèque de grains de VI-RDX.	140
7.2	Caractéristiques des différentes microstructures générées avec 8 classes de grains	142
7.3	Module de compressibilité et fraction volumique des différents modèles avant et après l'insertion de contacts entre les grains	148
8.1	Temps caractéristiques thermique et mécanique en fonction du diamètre équivalent en volume des grains de RDX. Les diamètres sont calculés sur l'ensemble des grains disponibles dans la bibliothèque de grains.	157
8.2	Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser le projectile en acier dans les simulations dynamiques	160
9.1	Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des différents matériaux utilisés dans les expériences de récupération	187
9.2	Équations d'état utilisées pour les simulations numériques de dimensionnement d'expériences de récupération sous choc	189
9.3	Lois de comportement utilisées pour les simulations numériques de dimensionnement d'expériences de récupération sous choc	189
9.4	Résultats de tirs de calibrage	192
9.5	Matrice des tirs de récupération sous choc réalisés à l'ISL. L'échantillon endommagé de chaque matériau transmis au CEA Gramat est indiqué en gras.	195

Introduction

La sensibilité au choc des explosifs est un aspect important dans la sûreté des munitions. À la suite de plusieurs accidents impliquant des munitions (USS Enterprise, USS Forestal en 1967...), les industriels de l'armement ont commencé à développer dans les années 70 des explosifs dits « insensibles ». Dans des situations accidentelles comme des incendies (augmentation progressive de la température dite *cook-off*) ou des chocs provoqués par des impacts de fragments ou de balles, ces explosifs ne doivent pas détoner, mais plutôt brûler.

Cette volonté d'un gain de sécurité passe, entre autres, par une meilleure compréhension de la phase d'initiation et une meilleure connaissance des seuils d'amorçage par choc, qui n'étaient jusqu'alors étudiés que dans le cadre d'un amorçage volontaire, et pas du point de vue de la vulnérabilité. Dès les années 50, des études ont révélé que la sensibilité au choc d'un matériau énergétique est liée à sa microstructure [21]. En effet, l'onde de choc interagit avec la microstructure et crée des sauts de pression et des hausses de température localisées. Les zones de température plus élevées sont appelées points chauds. Ces points chauds sont de potentiels sites d'amorçage de la détonation. La formation des points chauds est complexe à étudier car, du fait de l'échelle spatiale et temporelle du phénomène, une observation directe a pendant longtemps été impossible. En effet, la taille des points chauds est de l'ordre du micromètre et leur durée d'existence est de l'ordre de quelques dizaines de nanosecondes.

Parallèlement à ces études expérimentales, de nombreux modèles ont été développés pour décrire la transition du choc à la détonation (TCD) dans un explosif. La plupart de ces modèles sont homogènes et ne prennent pas directement en compte la microstructure. Certaines spécificités microstructurales, comme la porosité ou encore la granulométrie, apparaissent toutefois de manière indirecte dans des équations d'état via l'introduction de paramètres numériques empiriques. Une amélioration de la prédictivité de ces modèles, de plus en plus complexes et détaillés, nécessite une meilleure compréhension de la formation des points chauds.

Le développement du calcul haute performance et des codes de simulations numériques a permis la réalisation de simulations à l'échelle mésoscopique (échelle de la microstructure). Les simulations mésoscopiques, en modélisant directement l'interaction d'une onde de choc avec une microstructure donnée, permettent d'enrichir les modèles de TCD et de mieux comprendre certains résultats expérimentaux.

L'objectif à long terme des travaux menés sur ce thème est la réalisation de simulations numériques mésoscopiques prédictives de l'amorçage d'explosifs suite à un choc. À partir d'une microstructure quelconque (endommagée ou non) et de la composition de l'explosif, il serait alors possible d'évaluer le seuil de détonation. Une première étape pour accéder à cet objectif est une meilleure compréhension de l'influence de certains paramètres microstructuraux, comme la porosité intra-granulaire, la distribution de la taille des grains ou encore la morphologie des grains sur la formation des points chauds. L'endommagement mécanique (fissuration puis friction entre les grains, création de bandes de cisaillement) est également un paramètre qui peut entraîner la formation de points chauds. Cette thèse, coencadrée par le CEA/DAM, l'ISL et le CMM, soutenue par la DGA/AID, a pour but de mieux comprendre le rôle de certains paramètres microstructuraux sur la sensibilité au choc de matériaux énergétiques. La thèse a également permis de développer des outils pour étudier de manière quantitative, le rôle de l'endommagement. Dans cette étude, seules des observations visuelles de microtomographies de matériaux endommagés sont réali-

sées.

Plan d'étude

Pour étudier l'influence de la microstructure et, prochainement, de l'endommagement sur la sensibilité au choc, nous travaillons sur trois matériaux hétérogènes composés de grains d'explosif (70 % en masse) et d'une cire faisant office de liant (30 % en masse). Ces trois matériaux énergétiques ont été formulés à l'Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis (ISL). Ils ont la même composition, mais des microstructures différentes : distribution de taille des grains, forme des grains, porosités intra-granulaires. Nous travaillerons essentiellement par comparaison entre ces trois matériaux. Des expériences d'impacts ont été réalisées par l'ISL, en amont de cette étude, pour déterminer les seuils de sensibilité au choc soutenu de ces trois matériaux. Cette étude expérimentale révèle que, bien qu'ayant des compositions identiques, les trois matériaux présentent des seuils d'amorçage en détonation différents. Ces résultats expérimentaux vont servir de référence pour notre étude. Des microtomographies de chaque matériau ont été réalisées au CEA Gramat pour visualiser les différences entre les trois microstructures.

Le travail réalisé au cours de cette thèse se décompose en plusieurs phases (Fig. 2). La première étape est l'exploitation et la caractérisation des différentes microstructures. Dans ce but, les microtomographies sont filtrées et segmentées avec un logiciel de segmentation développé lors de la thèse de T. Chabardès menée au CMM [22]. La collaboration entre le CEA et le CMM pour mettre au point un outil de segmentation de milieux granulaires a débuté dès 2003 au cours de stages et d'un post-doctorat. Elle s'est poursuivie dans le cadre d'une REI (Recherche Exploratoire et Innovation) à partir de 2009 [23, 24]. La dernière version du code de segmentation a été développée lors de la thèse de T. Chabardès [22] qui s'est achevée en 2017. Les ressemblances et différences entre les microstructures sont ensuite identifiées sur les microtomographies segmentées en déterminant les paramètres suivants : la covariance spatiale, la granulométrie par ouverture, la réponse élastique à la déformation déterminée par méthode FFT et la géométrie des grains. Nous en profitons également pour extraire les grains labellisés pour former une base de données de grains d'explosifs réels.

La deuxième phase est la réalisation de simulations numériques dynamiques non réactives. Le code de simulation OURANOS du CEA est utilisé avec un solveur eulérien. Les simulations sont réalisées directement sur des volumes microtomographiés segmentés. Nous vérifions si, avec les outils de modélisation actuels, nous sommes capables de retrouver les mêmes tendances de sensibilité que celles obtenues expérimentalement par l'ISL. Les microstructures réelles étant complexes, nous travaillerons également dans un futur proche sur des microstructures virtuelles. Un code a été développé au cours de la thèse pour permettre la génération de microstructures représentatives du matériau réel, à partir de la base de données de grains. Avec ces microstructures virtuelles, il est possible de contrôler certaines propriétés microstructurales et ainsi décorréler certains paramètres, pour en étudier l'influence sur la sensibilité au choc.

La troisième phase est l'étude de l'influence de l'endommagement sur la sensibilité au choc. Des expériences de récupération sont dimensionnées puis réalisées à l'ISL. L'objectif est d'impacter un échantillon de chaque matériau sous le seuil de détonation, puis de le récupérer sans endommagements supplémentaires. Les échantillons endommagés sont ensuite microtomographiés. L'analyse des microtomographies permet d'observer les modes d'endommagement préférentiels et l'influence de la microstructure sur ces modes d'endommagement. De la même manière que ce qui a été effectué sur le matériau sain (Fig. 2), les grains segmentés peuvent être extraits pour former une bibliothèque de grains endommagés, puis des simulations numériques dynamiques non réactives peuvent être réalisées sur les microtomographies et sur des microstructures virtuelles aux propriétés contrôlées. Ces deux dernières tâches sont laissées en perspectives, pour des travaux futurs.

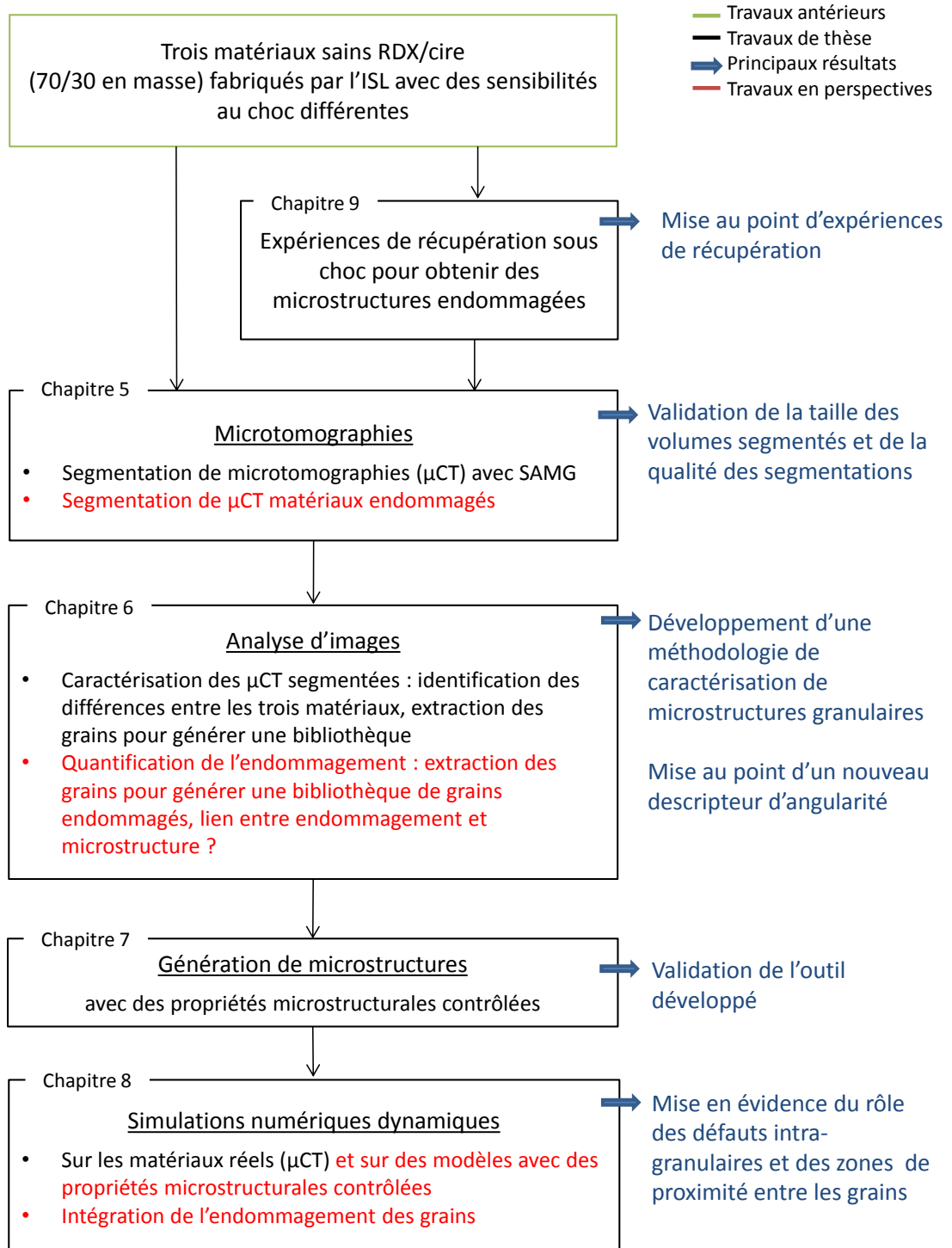


FIGURE 2 – Plan de travail

Cette thèse est le résultat d'un travail collaboratif entre trois institutions. L'ISL a formulé et caractérisé les trois matériaux composés de grains d'explosif et de cire. C'est également sur ce site qu'ont été effectuées les expériences de récupération sous choc. Le CEA Gramat, quant à lui, a réalisé les microtomographies et mis à disposition ses outils de simulations numériques. Enfin, le Centre de Morphologie Mathématiques de MINES ParisTech (CMM) apporte son savoir-faire dans le domaine du traitement d'images pour l'exploitation des microtomographies, la génération de modèles numériques et le calcul FFT.

Organisation du manuscrit

Le manuscrit est divisé en quatre grandes parties, chacune composée d'un ou de plusieurs chapitres. La première partie est une étude bibliographique qui comporte trois chapitres. La thèse fait en effet intervenir plusieurs disciplines scientifiques : la détonique et la physique des chocs, la simulation numérique, le traitement d'images. Les trois chapitres introduisent les bases et les notations propres à chacun de ces trois domaines. L'objectif est que tout lecteur, même non initié, soit en mesure d'aborder et de comprendre l'ensemble du manuscrit. Ainsi, le premier chapitre (Chap. 1) introduit les matériaux énergétiques et la modélisation de leur amorçage par choc. Le deuxième chapitre (Chap. 2) présente des généralités sur les simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique. Un état de l'art y est également réalisé sur les mécanismes conduisant à la formation de points chauds. Le troisième (Chap. 3) et dernier chapitre de cette partie aborde le traitement d'images avec une description des différents outils de morphologie mathématique. Ces outils permettent de segmenter et de caractériser des microstructures. Enfin, le logiciel de segmentation SAMG, développé lors d'une thèse précédente pour segmenter des milieux granulaires, est présenté en détail.

La deuxième partie porte sur la caractérisation des matériaux énergétiques. Elle est également décomposée en trois chapitres. Nous étudions trois matériaux composés de grains de RDX et de cire mais de microstructures différentes. Le chapitre quatre (Chap. 4) résume les propriétés physico-chimiques, mécaniques et la modélisation du comportement sous choc du RDX et de la cire. Le chapitre cinq (Chap. 5) présente le traitement d'images effectué sur les microtomographies des différents matériaux d'étude. L'outil SAMG est utilisé pour réaliser la segmentation. Un contrôle de la taille des volumes étudiés, et de la qualité de la segmentation est réalisé. La segmentation est vérifiée en comparant les diamètres et densités des grains de RDX obtenus par traitement d'images avec des mesures expérimentales. Le chapitre six (Chap. 6) est une caractérisation des volumes microtomographiés segmentés. Cette caractérisation s'effectue à deux échelles. Une première étude à l'échelle du volume est effectuée en mesurant les paramètres suivants : la covariance spatiale, la granulométrie par ouverture et la réponse élastique du matériau à une déformation par calculs FFT. La deuxième échelle est l'échelle du grain. En effet, tous les grains segmentés sont extraits et caractérisés avec une série de descripteurs géométriques pour former une bibliothèque de grains.

La troisième partie est composée de deux chapitres et traite des simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique. Le chapitre sept (Chap. 7) présente une méthodologie pour générer de nouvelles microstructures, représentatives du matériau réel, mais dont les propriétés microstructurales sont contrôlées. La représentativité des modèles est évaluée en comparant la covariance spatiale, la granulométrie du liant et la réponse élastique avec celle du matériau réel. Le chapitre huit (Chap. 8) montre les simulations numériques à l'échelle mésoscopique réalisées avec le code de calcul OURANOS. Ces simulations permettent d'identifier où se forment de manière préférentielle les points chauds.

Enfin, la dernière partie et le dernier chapitre décrivent les expériences de récupération sous choc réalisées à l'ISL. Ces expériences consistent à impacter des échantillons des matériaux sous le seuil de détonation, puis à les récupérer sans les endommager davantage. L'objectif est d'observer l'influence de la microstructure sur l'endommagement des grains. Le chapitre neuf (Chap. 9) présente la mise au point du dispositif expérimental et les premières observations effectuées sur

les microtomographies des échantillons endommagés.

Première partie

Étude bibliographique

Chapitre 1

Introduction sur les matériaux énergétiques

Ce chapitre présente, dans un premier temps, les définitions relatives aux matériaux énergétiques ainsi que les principaux modèles de détonation. Dans un second temps sera abordé l'amorçage par choc des explosifs. La description de la théorie des points chauds ainsi que l'état de l'art sur les différents paramètres microstructuraux favorisant leur formation seront également évoqués. Enfin, seront résumés les différents modèles et critères permettant de modéliser l'amorçage d'un explosif par choc.

1.1 Généralités sur les matériaux énergétiques

Un matériau énergétique est un matériau susceptible de libérer une grande quantité d'énergie en un temps très court [5]. Ces matériaux stockent de l'énergie chimique qui se libère au cours d'une réaction exothermique d'oxydo-réduction que l'on appelle également explosion. Le terme explosion peut définir plusieurs phénomènes; c'est pourquoi il en existe plusieurs définitions. Nous choisissons, ici, d'utiliser la définition donnée par Thevenin [25] : « l'explosion est un phénomène au cours duquel se dégage, en un temps extrêmement court, une énergie importante ». Une molécule énergétique comprend à la fois une partie oxydante et une partie réductrice. D'une manière générale, des atomes d'oxygène impliqués dans des systèmes hypervalents comme NO_2 ou ClO_4 font office d'oxydant, tandis que des atomes d'hydrogène et/ou de carbone remplissent le rôle de réducteur. Un matériau énergétique peut être un solide, un liquide ou un gaz.

Un matériau énergétique est susceptible de se décomposer selon trois régimes : la combustion, la déflagration et la détonation. Il n'y a pas de consensus sur les définitions exactes de ces trois régimes de décomposition. Nous nous appuyons sur l'ouvrage « The Detonation Phenomenon » [26] pour les définitions de la déflagration et de la détonation. La combustion n'est, quelques fois, pas considérée comme un régime de décomposition mais est vue comme une déflagration particulière. Nous choisissons ici de faire la distinction.

Une définition de la **combustion** est disponible dans le dictionnaire de pyrotechnie [27] : « réaction de décomposition exothermique et auto-entretenu d'un matériau énergétique ou d'un mélange oxydo-réducteur dont le front de réaction se propage à une vitesse inférieure à celle du son dans l'air ». La combustion transforme les réactifs en produits ce qui libère l'énergie stockée sous forme de gaz chauds. La propagation de la combustion est contrôlée par la conductivité thermique et les changements d'état. La combustion est donc un phénomène « lent » qui n'est pas associé à une augmentation significative de pression. Ainsi, la destruction des matériaux énergétiques est réalisée par combustion lors d'opérations de brûlage.

Lors d'une **déflagration**, une génération rapide de gaz chauds conduit à une augmentation de la pression et/ou à la formation d'ondes de surpression. D'une manière générale, une déflagration est composée d'une onde de compression suivie d'un front de réaction. Si les échanges thermiques

se font principalement par conduction dans le cas de la combustion, il se font principalement par convection, phénomène plus rapide, dans le cas de la déflagration.

Lors d'une **détonation**, la vitesse de réaction est supersonique. L'onde de choc est dite réactive car elle transforme les réactifs en produits. La pression et la température augmentent au passage de la détonation et la vitesse des produits diminue jusqu'à atteindre une vitesse sonique. La vitesse de propagation de l'onde de détonation est caractéristique de l'explosif. Elle ne dépend pas de l'intensité de la sollicitation initiale, mais uniquement de l'état thermodynamique initial. On parle de détonation de Chapman-Jouguet ou détonation CJ. Nous reviendrons plus en détails sur la modélisation de la détonation dans la section 1.2. Le mode de sollicitation le mieux maîtrisé et le plus courant pour mettre un explosif en détonation est le choc. On parle de Transition Choc-Détonation (TCD). La mesure de la sensibilité d'un matériau énergétique est, par ailleurs, basée sur les seuils de TCD (voir sous-section 1.3.1).

Les matériaux énergétiques peuvent être classifiés en trois groupes : les poudres propulsives, les compositions pyrotechniques et les explosifs [5]. Cette classification est principalement liée à l'utilisation et au régime de décomposition du matériau, plutôt qu'à sa composition.

Les poudres propulsives englobent les propergols et les poudres pour armes à tube. Elles brûlent ou déflagrent et ont pour rôle de propulser des fusées, des munitions ou encore de gonfler des airbags.

Les compositions pyrotechniques déflagrent. Ces compositions ont des effets différents : produire du bruit, de la fumée (fumigènes), de la lumière (feux d'artifices, fusées éclairantes) ou encore de la chaleur (fusées incendiaires).

Enfin, la dernière classe contient les explosifs. Au sein de cette catégorie, on retrouve encore une distinction entre explosifs primaires et secondaires. Les explosifs primaires sont très sensibles, ils demandent peu d'énergie pour détoner. Leur seul mode de décomposition est la détonation. Ils sont principalement utilisés dans les détonateurs pour amorcer des explosifs secondaires. Les explosifs secondaires demandent plus d'énergie pour détoner, ils sont plus stables. En modulant l'intensité de la sollicitation, les explosifs secondaires peuvent brûler, déflagrer ou encore détoner avec de nombreuses transitions possibles entre les trois modes de décomposition. La déflagration est néanmoins difficile à obtenir. Les explosifs secondaires peuvent être utilisés dans des compositions militaires mais également dans le civil par l'industrie minière, par les spéléologues ou par les pisteurs pour le déclenchement d'avalanches.

Pour finir ce paragraphe introductif, une présentation des explosifs secondaires les plus connus est proposée. Les explosifs sont souvent des dérivées nitrés c'est-à-dire qu'ils portent le groupe fonctionnel $-NO_2$. Ce groupe peut être attaché à :

- un atome d'oxygène pour former un ester nitrique,
- un atome de carbone pour former un nitro aromatique ou un nitro aliphatique,
- un atome d'azote pour former une nitramine.

Les groupes fonctionnels jouent un rôle sur la stabilité au choc et la performance d'un explosif. Un explosif est jugé performant si sa masse volumique ρ_0 , sa vitesse et sa pression de détonation sont élevées.

La nitroglycérine (NG), industrialisée dans les années 1860 par Nobel, est un ester nitrique. Il s'agit d'un des explosifs les plus connus car il entre dans la composition de la dynamite. Un autre explosif très connu est le trinitrotoluène aussi appelé TNT. Cette molécule a été utilisée à grande échelle dans les munitions allemandes lors de la 1^{ère} Guerre Mondiale. Une généralisation de l'utilisation des nitramines comme l'hexogène (RDX) ainsi que la découverte de l'octogène (HMX) se sont effectuées au cours de la 2^{ème} Guerre Mondiale. Le RDX et le HMX sont encore couramment utilisés aujourd'hui. Une nitramine plus récente, synthétisée en 1986, est le CL-20 (ou hexanitrohexaazaisowurtzitane). C'est actuellement la molécule la plus performante avec une vitesse de détonation théorique d'environ 10000 m/s et une pression de détonation théorique de 48,23 GPa [28].

Les propriétés de détonation des explosifs introduits ci-dessus sont rassemblées dans le tableau 1.1. Les mesures de vitesse et de pression dépendant de la densité de l'explosif, on indique également la masse volumique quand l'information est disponible. Les formules topologiques de ces même explosifs se trouvent sur la figure 1.1.

TABEAU 1.1 – Propriétés de détonation de différents explosifs

Sigle	État	Masse volumique	Vitesse de	Pression de	Référence
		maximale ρ_{max} (kg/m ³)	détonation (m/s) et ρ_0 (kg/m ³)	détonation (GPa) et ρ_0 (kg/m ³)	
NG	Liquide	1590	7650	25,3	[5]
TNT	Solide	1654	6942 (à 1637)	18,9 (à 1637)	[12]
RDX	Solide	1806	8639 (à 1767)	33,8 (à 1767)	[12]
HMX	Solide	1905	9110 (à 1890)	39,5 (à 1900)	[12]
CL-20	Solide	2000	9400	42,0	[5]

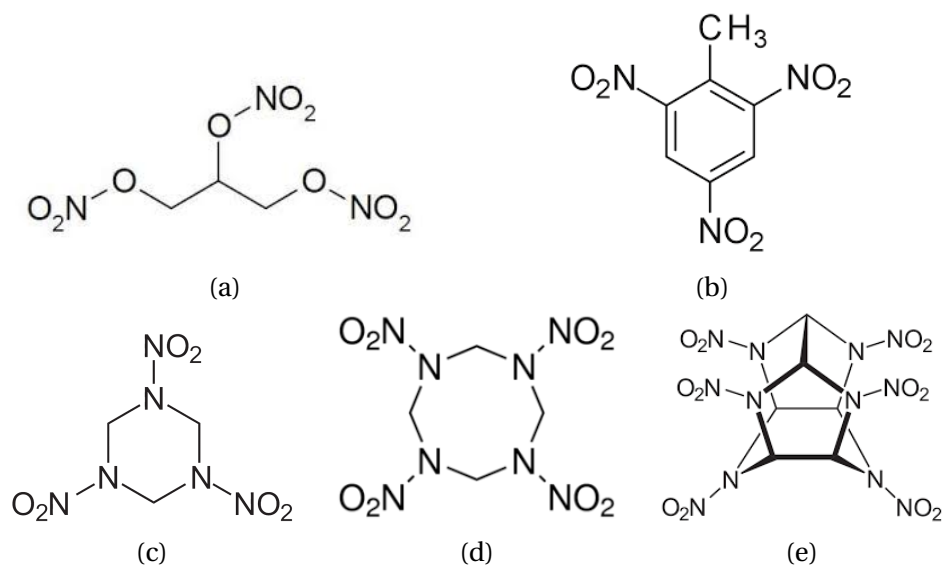


FIGURE 1.1 – Formules squelettiques de différents explosifs : (a) nitroglycérine (NG), (b) trinitrotoluène (TNT), (c) hexogène (RDX), (d) octogène (HMX) et (e) hexanitrohexaazaisowurtzitane (CL-20)

1.2 Théories classiques de la détonation

Cette section a pour but de présenter les éléments clés de la physique des chocs [29, 30] ainsi que les modèles de détonation de Chapman-Jouguet (CJ) et de Zeldovitch, Von Neumann, Döring (ZND). La modélisation d'un choc et de la détonation sont les briques élémentaires initiales et finales d'une Transition Choc-Détonation (Fig. 1.2). A noter que dans cette thèse, nous nous intéressons seulement à l'étape d'amorçage.

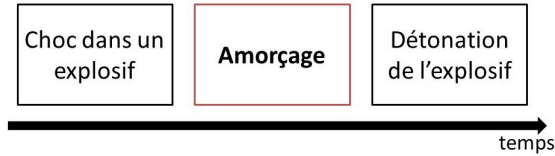


FIGURE 1.2 – Schéma du principe de la mise en détonation par choc d'un explosif, soit des étapes de la TCD

1.2.1 Physique des chocs

Un choc est une discontinuité qui se propage dans un milieu (Fig. 1.3). La discontinuité concerne les grandeurs thermodynamiques comme la température, la pression et la densité mais aussi la vitesse matérielle.

Les bilan de la masse (1.1), de la quantité de mouvement (1.2) et de l'énergie totale (1.3) s'écrivent en régime hydrodynamique sous les formes suivantes :

$$\rho_0 (D - u_0) = \rho (D - u), \quad (1.1)$$

$$P - P_0 = \rho_0 (D - u_0) (u - u_0), \quad (1.2)$$

$$e - e_0 = \frac{1}{2} (P_0 + P) (v_0 - v), \quad (1.3)$$

où ρ est la masse volumique, D la vitesse de la discontinuité soit de l'onde de choc, u la vitesse matérielle, P la pression, $v = 1/\rho$ le volume spécifique et e l'énergie interne de l'état (P, v, T) . L'indice 0 représente l'état initial, l'état sous choc n'a pas d'indice. Ces équations sont aussi appelées relations de saut ou relations de Rankine-Hugoniot. Les étapes de calculs pour les obtenir sont présentés en détail dans la thèse de T. Elia [31].

Les équations (1.1), (1.2) et (1.3) sont insuffisantes pour décrire le comportement de la matière derrière le front de choc. Il manque une relation liant de manière indépendante la pression à la masse volumique (ou la contrainte à la déformation). Cette relation est appelée équation d'état et est caractéristique de chaque matériau. L'équation d'état lie tous les états que peut prendre le

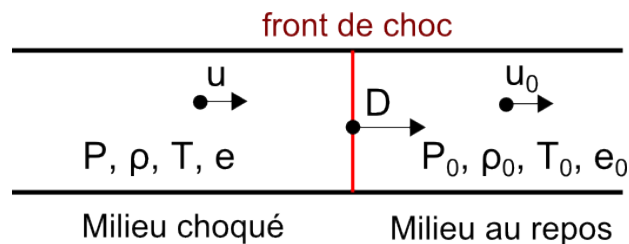


FIGURE 1.3 – Schéma d'une onde de choc se propageant dans un milieu au repos

matériau. C'est une surface dans l'espace (P, v, e) . L'équation (1.3) décrit une transformation mécanique par choc. C'est également une surface dans l'espace (P, v, e) . L'intersection de ces deux surfaces est la courbe d'Hugoniot, qui à partir d'un état thermodynamique initial, donne tous les états atteignables par une transformation de type choc. En pratique, l'équation d'état du matériau n'est souvent pas connue. La courbe d'Hugoniot est alors obtenue expérimentalement avec une multitude d'essais sous choc. La sollicitation varie à chaque essai pour obtenir un nouveau point (P, v) pour le même état de référence. La courbe d'Hugoniot ne décrit pas le chemin de compression pour passer de l'état initial (P_0, v_0) à l'état final (P, v) . C'est la droite de Rayleigh qui représente ce chemin de compression par onde de choc. La droite de Rayleigh est obtenue en combinant les équations (1.1) et (1.2). Elle représente donc la conservation du débit massique et de la quantité de mouvement entre l'état initial et l'état final. Sa pente est égale $-\rho_0^2 D^2$.

$$P - P_0 = \rho_0^2 D^2 (v_0 - v) \quad (1.4)$$

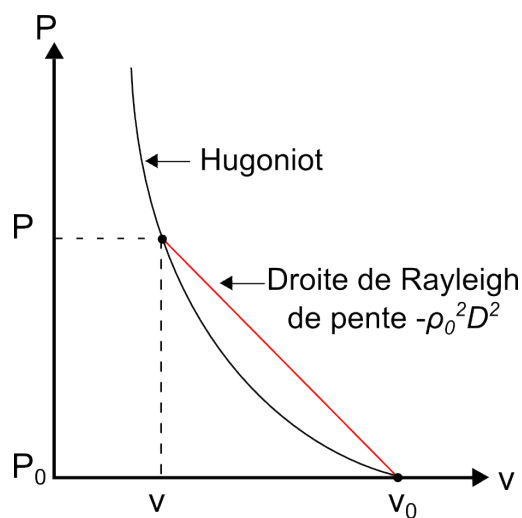


FIGURE 1.4 – Représentation dans le plan (P, v) de la courbe d'Hugoniot et de la droite de Rayleigh

La courbe d'Hugoniot peut aussi s'exprimer dans l'espace (P, u) avec les relations de sauts, on parle alors de polaire de choc.

1.2.2 Modèle de détonation de Chapman-Jouguet (CJ)

Le modèle de Chapman-Jouguet a été développé simultanément et de manière indépendante par D. Chapman [32] et E. Jouguet [33]. L'onde de détonation est considérée comme une onde de choc réactive en régime hydrodynamique. Le modèle CJ est donc construit avec les relations de Rankine-Hugoniot. L'hypothèse principale est la suivante : l'explosif se transforme instantanément en produits de détonation au passage de l'onde de choc. Par conséquent, la zone de réaction chimique est infiniment mince et la vitesse de réaction infiniment grande. Les gaz chauds, produits de réaction, sont à l'équilibre à l'aval du choc. La diffusion et la conduction ne sont pas prises en compte. L'énergie chimique libérée lors de la transformation des réactifs en produits intervient dans l'équation de conservation de l'énergie :

$$e - e_0 = e - e_0^{produits} = \frac{1}{2} (P_0 + P) (v_0 - v) + Q \quad (1.5)$$

avec $e_0^{produits}$ l'énergie de formation des produits de détonation et Q l'énergie chimique. Cette relation de conservation décrit les états (P, v) atteignables par les produits de détonation à partir de l'état initial (P_0, v_0) des réactifs. Cette courbe est appelée courbe de Crussard. La courbe de Crussard est la courbe d'Hugoniot des produits de détonation à partir de l'état (e_0, ρ_0, P_0) . Le pôle (point décrivant l'état initial) ne se trouve donc pas sur la courbe de Crussard, mais sur la courbe

d'Hugoniot. L'état initial et l'état final ne se trouvent pas sur la même courbe car il ne s'agit plus du même matériau à cause de la transformation chimique de l'explosif en produits de détonation. Le point CJ est l'état final des produits de détonation à l'équilibre thermodynamique. Cette solution correspond au point de tangence entre la droite de Rayleigh et la courbe de Crussard (Fig. 1.5). Il est observé expérimentalement que la vitesse de propagation de l'onde de détonation est constante et ne dépend que du matériau. Les conditions de stabilité (thermodynamique et hydrodynamique) de cette onde de détonation conduisent à la sonicité : $D = c + u$. Cette onde étant sonique elle ne peut pas être perturbée par l'aval.

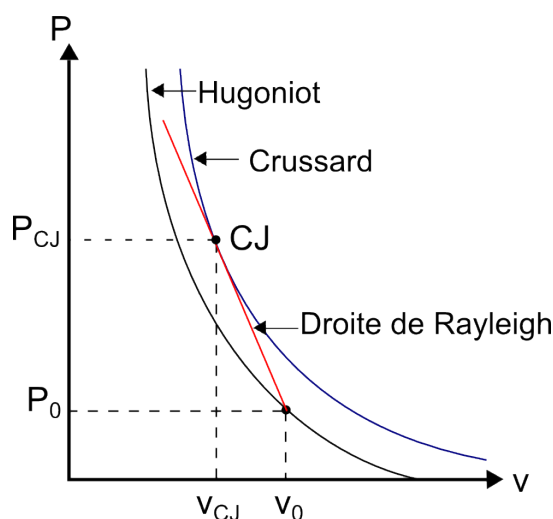


FIGURE 1.5 – Représentation dans le plan (P, v) de la courbe d'Hugoniot, de la courbe de Crussard et de la droite de Rayleigh pour déterminer l'état CJ

Cette modélisation simple à mettre en équation est toujours utilisée dans de nombreux codes de calculs. En toute rigueur, elle est restreinte au cas d'une onde plane. Or des études expérimentales ont montré que la vitesse de détonation dans une cartouche cylindrique dépend de son diamètre et que le front de détonation est courbe.

1.2.3 Modèle de détonation de Zeldovitch, Von Neumann, Döring (ZND)

Le modèle de détonation ZND est développé simultanément dans trois pays différents par J. Zeldovich [34], J. Von Neumann [35] et W. Döring [36] pendant la 2^{ème} Guerre Mondiale. La détonation est modélisée comme un choc plan inerte et stationnaire suivie d'une zone de réaction où les réactifs se transforment en produits de détonation jusqu'à l'état CJ. Le choc inerte a une vitesse subsonique par rapport à l'aval. Aux trois relations de conservation (1.1), (1.2), (1.5) est ajoutée une nouvelle équation pour modéliser la génération des produits de détonation.

$$\frac{\partial \rho \lambda}{\partial t} + \nabla \rho \lambda u = \rho R \quad (1.6)$$

où R est la cinétique de réaction et λ l'avancement de la réaction ($\lambda \in [0, 1]$).

Le pic de pression après le passage du choc est appelé pic de Von Neumann. Il se situe sur la courbe d'Hugoniot car la réaction chimique qui transforme les réactifs en produits n'a pas encore eu lieu juste après le passage du choc. Il y a conservation du débit massique entre l'amont et l'aval du choc donc l'état ZND se situe également sur la droite de Rayleigh (Fig. 1.6). Le pic de pression de Von Neumann est environ deux fois supérieur à la pression CJ.

D'autres modèles se sont développés à partir du modèle ZND pour permettre de décrire les ondes de détonation courbes [37] et courbes et instationnaires [38]. Des modèles plus récents proposent de nouvelles structures de l'onde de détonation donc un nouveau découpage. On trouve

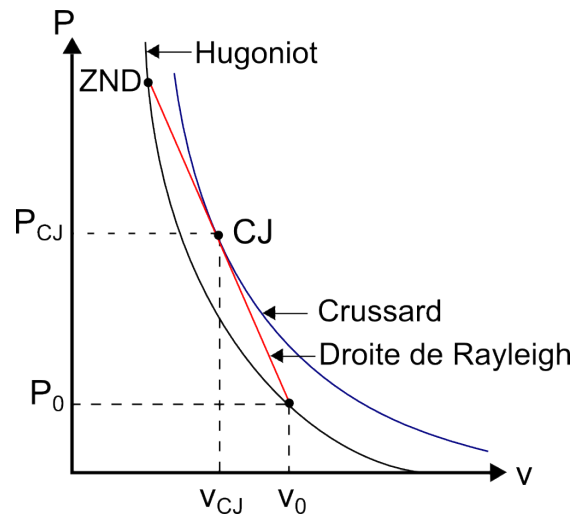


FIGURE 1.6 – Représentation dans le plan (P, v) de la courbe d'Hugoniot, de la courbe de Crussard et de la droite de Rayleigh pour déterminer l'état CJ et l'état ZND

par exemple le modèle NEMD [39] ou le modèle NE-ZND [40]. Une description plus détaillée des différents modèles de détonation a été réalisée dans la thèse de V. Chuzeville [41].

Les modèles les plus employés dans les codes de calculs hydrodynamiques restent tout de même les modèles CJ et ZND car ils sont faciles à implémenter et donnent des résultats cohérents avec les expériences pour la plupart des explosifs.

1.3 Transition Choc-Détonation (TCD)

Un explosif est mis en détonation lorsqu'il reçoit suffisamment d'énergie extérieure pour initier les réactions chimiques et atteindre le régime de la détonation. Le dépôt d'énergie externe doit être suffisant pour d'une part, compenser les inévitables pertes d'énergie et, d'autre part, chauffer le matériau pour démarrer les réactions chimiques auto-catalytiques et conduire à leur emballement (explosion thermique).

Dans le cadre de cette étude, nous nous intéressons à l'apport d'énergie par onde de choc. La sensibilité au choc d'un explosif est une caractéristique importante. En effet, les explosifs sont souvent mis en détonation grâce à un choc produit par un détonateur ou un slapper. Dans ces cas précis, le fonctionnement de l'explosif est dit nominal, l'explosif détone de la manière souhaitée et au moment souhaité. Mais l'amorçage par choc peut aussi être accidentel suite à une chute, un impact de fragment ou un impact de balle. Le fonctionnement de la charge explosive est alors dit non nominal car l'amorçage n'est pas voulu.

1.3.1 Mesure de la sensibilité au choc d'un explosif

La sensibilité au choc d'un matériau énergétique dépend du type de sollicitation : forme du choc (plan ou courbe), pression, durée. Il existe plusieurs dispositifs expérimentaux avec des types de sollicitation différents. Nous présentons dans cette sous-section quatre moyens de mesure : le test du « mouton de choc », le « gap test », le « wedge test » et « l'impact de plaque ».

Le principe du test du mouton de choc est de lâcher une masse métallique sur l'échantillon d'explosif à tester depuis une certaine hauteur. La hauteur est progressivement augmentée jusqu'à ce que les échantillons détonent dans 50 % des cas. Il s'agit d'un test de type *go/no go* ou détone/ne détone pas. Les machines de test varient d'un laboratoire à l'autre mais le principe reste le même. On retrouve notamment des différences sur le poids et la forme des masses, la quantité d'explosif

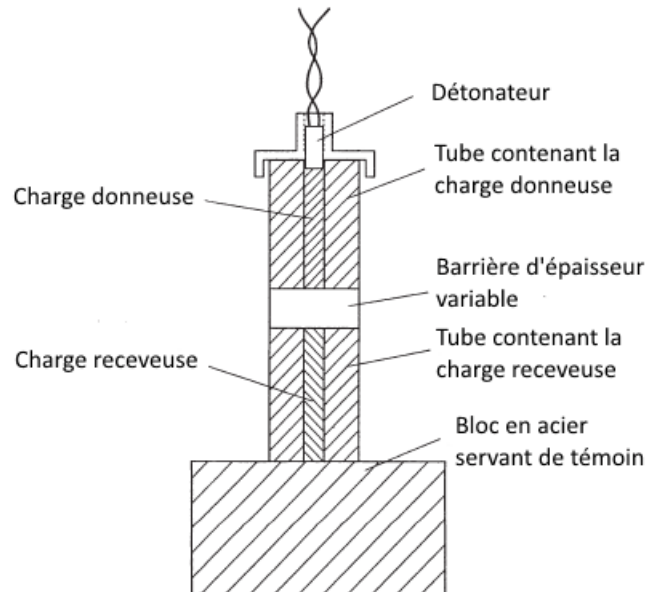


FIGURE 1.7 – Schéma du *small gap test* de l'US Naval Ordnance Laboratory (image extraite de [1]).

testé ou encore le confinement de l'explosif [42]. Les tests du mouton de choc sont des tests de caractérisation standardisés reconnus par l'OTAN. Le chargement avec le dispositif du mouton de choc n'est pas un choc plan pur car il y a du cisaillement et du frottement.

Le *gap test* ou test de l'Indice d'Amplitude à la Détonation (IAD), est souvent constitué de quatre éléments : une charge donneuse qui génère une onde de choc, une barrière qui atténue le choc, une charge receveuse, une plaque témoin (Fig. 1.7). Encore une fois, la configuration peut changer d'un laboratoire à l'autre mais le principe reste le même. L'explosif à tester, charge receveuse, est placé dans un tube en acier à côté du bloc atténuateur et de la charge donneuse. La plaque témoin se trouve au bout de cet empilement, après la charge la charge receveuse. La détonation de la charge donneuse génère une onde de choc non plane et non soutenue (profil de pression triangulaire) qui traverse le bloc barrière pour arriver dans le matériau à caractériser. L'épaisseur du bloc barrière est diminuée jusqu'à ce que la charge receveuse détone c'est-à-dire jusqu'à ce que la plaque témoin soit perforée. Il s'agit donc d'un test de type *go/no go* [42]. Les *gap test* sont des tests standardisés reconnus par l'OTAN.

Le *wedge test*, ou test du coin, permet de déterminer la sensibilité au choc d'un explosif en mesurant sa profondeur d'amorçage. Un choc parcourt une certaine distance dans un explosif avant de l'amorcer. La distance dépend du niveau de pression du choc. Plus la pression de choc est élevée, plus la profondeur d'amorçage est faible. La variation de la profondeur d'amorçage en fonction de la pression sur une échelle logarithmique est linéaire. Cette représentation est appelée diagramme Pop-plot, d'après le nom du chercheur Popolato qui l'a utilisé la première fois [2]. La courbe Pop-plot est caractéristique d'un explosif ce qui permet de comparer la sensibilité au choc de plusieurs matériaux (Fig. 1.8). Pour déterminer cette profondeur d'amorçage, une onde de choc est générée avec un générateur d'onde plane (GOP). Cette onde traverse ensuite une plaque de transfert avant d'atteindre le matériau à tester. Le matériau de la plaque de transfert permet d'atténuer et de contrôler la pression du choc transmis à l'explosif. Pour le test du coin, le GOP génère une onde de détonation donc un choc non soutenu. L'explosif à tester, placé au-dessus de la plaque de transfert, a une forme de coin. Cette forme spécifique permet de suivre la propagation de l'onde de choc dans le matériau avec une caméra à fente. Un schéma d'un des premiers dispositifs utilisé par Campbell *et al.* [3] est présenté sur la figure 1.9a. L'explosif est recouvert d'une fine couche de matière métallique réfléchissant la lumière émise par un flash pyrotech-

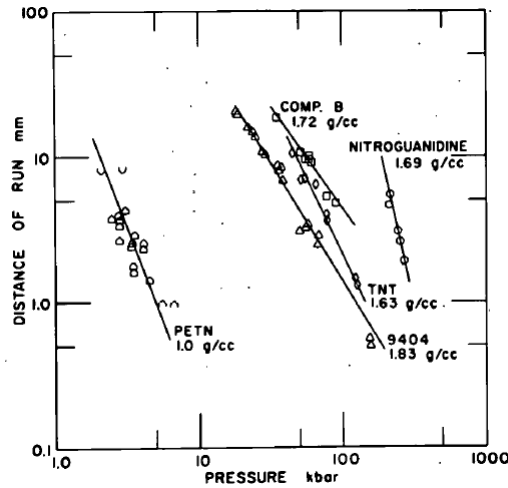


FIGURE 1.8 – Diagramme Pop-plot de différents explosifs [2]

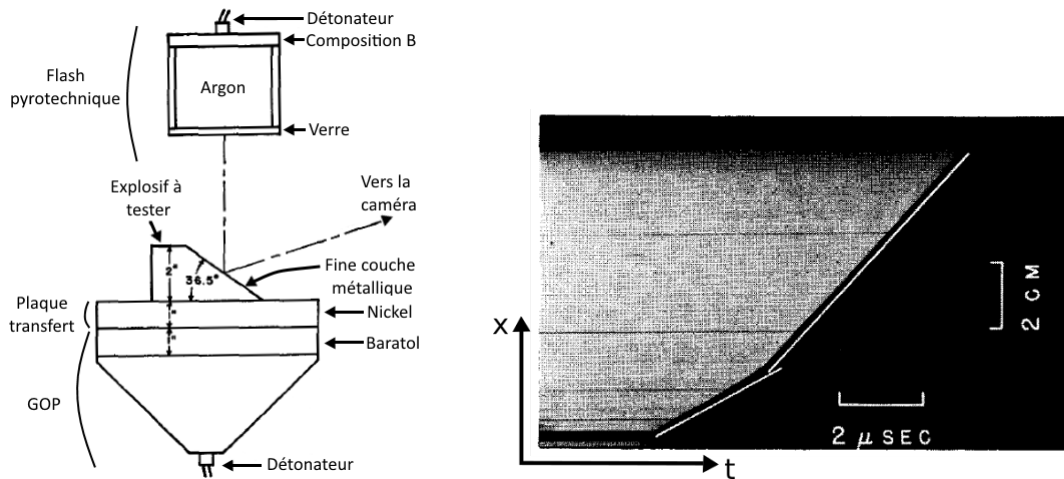


FIGURE 1.9 – (a) Schéma du dispositif expérimental historique du test du coin et (b) image obtenue par la caméra à fente sur un échantillon de cyclotol (RDX/TNT 65/35) [3]

nique, et la caméra à fente est alignée de manière précise pour détecter le reflet de la lumière. Au passage de l'onde de choc, la surface réfléchissante de l'explosif est détruite. Cette extinction de la lumière permet de suivre la propagation de l'onde de choc dans le milieu. Lors de la transition choc-détonation, la vitesse de propagation de l'onde augmente ce qui entraîne une rupture de pente sur l'acquisition de la caméra et l'identification de la profondeur d'amorçage (Fig. 1.9(b)). Cette configuration historique n'est actuellement plus utilisée. Le chargement avec le test du coin est un choc plan pur non soutenu. Un choc est considéré comme soutenu lorsque la pression dans le matériau est maintenue pendant un laps de temps suffisamment long pour conduire à la réaction. Pour un choc non soutenu, au contraire, la pression est immédiatement relâchée.

Une méthode alternative pour étudier les propriétés d'un explosif et définir son diagramme Pop-plot est l'impact de plaque [43]. L'onde de choc est générée par l'impact d'une plaque projetée par un lanceur à gaz comprimé ou à poudre. Cette plaque impacte la plaque transfert derrière laquelle se trouve l'explosif. L'épaisseur de l'impacteur permet de moduler la durée du choc. En effet, la durée du choc correspond à la durée que met l'onde pour faire un aller-retour dans l'impacteur. Plus l'impacteur est épais, plus le choc est soutenu. Cette méthode est donc plus avantageuse pour caractériser la sensibilité au choc d'un explosif car le chargement est un choc plan pur et soutenu dont il est possible de contrôler de manière indépendante l'intensité et la durée du choc.

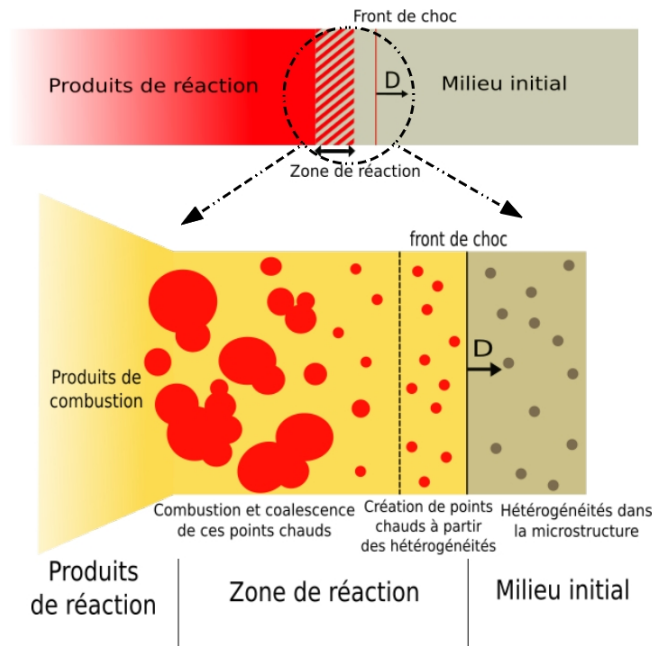


FIGURE 1.10 – Schéma de la formation des points chauds suite à un choc inerte. D est la vitesse de l'onde de choc.

1.3.2 Introduction de la théorie des points chauds

En 1952, Bowden et Yoffe [21] introduisent la théorie des points chauds pour décrire la TCD, et permettre d'expliquer que cette TCD est possible avec des apports d'énergie externe (choc) bien inférieurs au niveau requis pour obtenir un chauffage homogène de l'explosif. Le principe est le suivant : l'onde de choc interagit avec les hétérogénéités de la microstructure, ce qui génère des surpressions et des élévations de températures localisées appelées points chauds. Ces points chauds peuvent éventuellement croître jusqu'à coalescence pour former une zone de réaction derrière le front de choc (Fig. 1.10). Un régime de déflagrations locales est alors atteint. Les points chauds sont les sites localisés de démarrage des réactions chimiques. Le modèle d'amorçage par points chauds est donc décomposé en trois étapes : 1) l'allumage des points chauds, 2) la formation de déflagrations locales, 3) la coalescence des fronts de déflagrations locales. En reprenant le schéma des étapes de la TCD, on peut maintenant commencer à détailler l'étape de l'amorçage (Fig 1.11). Pour des chocs soutenus de faible niveau de pression, la première étape est limitante tandis que pour les chocs brefs et intenses, c'est la deuxième étape qui est dimensionnante et qui pilote la vitesse de réaction.

On dit que les points chauds sont de potentiels sites d'amorçage car ils ne conduisent pas tous à la déflagration. Les réactions chimiques étant des réactions auto-catalytiques, elles s'emballent à partir d'un certain niveau de température. C'est l'explosion thermique [44]. Si la température du point chaud dépasse la température seuil, on parle de points chauds critiques. Pour une température de point chaud donnée, il faut un certain temps avant que l'explosion thermique ait lieu. Ce temps sera d'autant plus court que la température du point chaud est élevée. La température atteinte dans un point chaud est dépendante de la pression de choc initiale et de la microstructure. La microstructure, et plus particulièrement la présence de porosité, conduit à la formation de points chauds au passage d'une onde de choc par phénomène d'implosion de pore (sous-section 2.3.1). La température atteinte lors de l'implosion d'un pore est d'autant plus importante

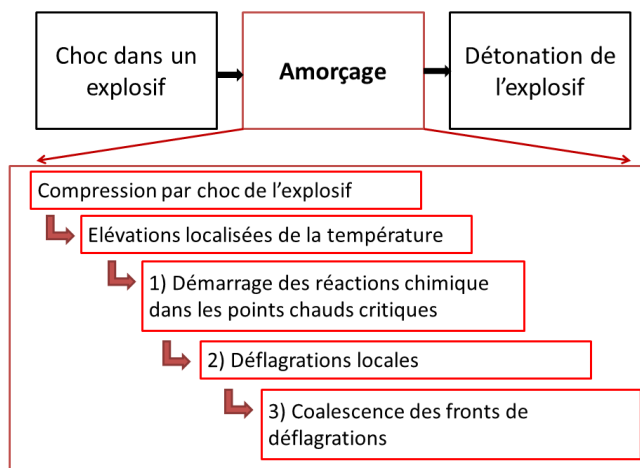


FIGURE 1.11 – Schéma des étapes de l'amorçage par points chauds.

que le choc est fort et que le pore est grand. En fonction de la pression du choc, de la durée du choc et de la taille d'un point chaud, il existe donc une température critique à atteindre pour que l'explosion thermique ait lieu. Dans le cadre des chocs faibles (cadre de la thèse), le choc doit être soutenu et les porosités suffisamment grandes pour atteindre la température critique.

L'étude des points chauds critiques s'est faite dans un premier temps de manière analytique [45–47]. L'idée est de déterminer la température critique du point chaud en fonction de sa taille pour que la chaleur produite par réaction chimique soit suffisamment élevée pour contrebalancer la dissipation par conduction thermique. Ces résultats dépendent fortement de la vitesse de réaction chimique utilisée pour modéliser la transformation des réactifs en produits (souvent en plusieurs étapes [48]). Dans un second temps, la taille des points chauds critiques a été déterminée à partir de simulations mésoscopiques de l'implosion d'un pore [49, 50]. Ces nouvelles méthodes d'analyse sont assez récentes et ont été rendues possibles avec l'accroissement des capacités de calculs et l'amélioration des solveurs numériques. Les résultats obtenus en prenant en compte le phénomène d'implosion de pores donnent des diamètres de pores inférieurs à ceux obtenus de manière semi-analytique. Cela semble plus cohérent avec les observations expérimentales de la taille des défauts intra-granulaires dans les matériaux énergétiques qui sont classiquement compris entre 0,1 et 10 μm . Une fois encore, les résultats dépendent de la manière de modéliser la cinétique chimique (une seule étape pour [49, 50]).

Déterminer les points chauds critiques revient à identifier tous les points chauds qui vont intervenir dans la première étape du modèle d'amorçage. D'autres études se sont intéressées aux critères limitant la deuxième étape du modèle d'amorçage (coalescence des points chauds). L'idée est qu'un point chaud critique isolé n'est pas en mesure de conduire à une détonation établie dans un explosif. Il faut donc définir un critère spatial, comme un nombre critique de points chauds par volume ou une distance critique entre deux points chauds, pour que la coalescence ait lieu. La détermination d'un critère spatial est, pour l'instant, quasi empirique. Ainsi certaines études considèrent une fraction surfacique critique de 0,22 mm^{-2} ce qui est équivalent à deux points chauds dans un carré de 3 mm de côté [51–54]. Une autre étude détermine la densité de points chauds critiques pour que 50 % de l'explosif réagisse en 1 μs , 0,1 μs ou 0,01 μs [55]. Cela correspond à une densité de points chauds critiques comprise entre 1×10^3 et $1 \times 10^6 \text{ mm}^3$ ou une distance moyenne comprise entre 0,1 et 100 μm entre deux points chauds. La densité de points chauds est donc bien plus élevée que dans les premières études. Cette forte variation est liée au fait que, jusqu'à présent, il n'y a pas eu d'observation directe de la formation et de la coalescence des points chauds.

L'observation directe de la formation des points chauds est complexe car les temps d'apparition des points chauds sont de l'ordre de quelques nanosecondes et leur tailles sont de quelques micromètres. Bassett *et al.* [56, 57] développent depuis plusieurs années une nouvelle méthode expérimentale qui permet d'étudier directement la formation des points chauds. Le principe est d'impacter avec un projectile une mince couche d'environ 40 μm du matériau à étudier. La température et l'émissivité globale sont relevées au cours du temps, ce qui permet de déterminer la fraction volumique de points chauds au cours du temps. L'étude des points chauds s'est donc, jusqu'à présent, faite de manière indirecte, en étudiant l'influence de la microstructure sur les seuils d'amorçage des explosifs.

1.3.3 Paramètres microstructuraux influençant la sensibilité au choc

Plusieurs études expérimentales ont démontré l'influence de la microstructure des explosifs sur leur sensibilité au choc. Ce paragraphe est un résumé des différents paramètres microstructuraux identifiés comme ayant une influence sur la formation de points chauds.

Le premier paramètre microstructural jouant un rôle sur la sensibilité au choc est la granulométrie de l'explosif. Certaines études ont montré qu'une réduction de la taille des grains entraîne une augmentation de la sensibilité. D'autres, au contraire, démontrent l'inverse. Campbell *et al.* [3] ont mesuré par test du coin la sensibilité au choc de deux échantillons de TNT pressés à la même densité mais avec une granulométrie différente. L'échantillon avec les petits grains détone près de deux fois plus tôt que l'échantillon avec les gros grains. Moulard *et al.* [58, 59] ont observé l'effet inverse sur des échantillons composés de 70 % en masse de RDX et d'un liant en polyuréthane. Le test du coin est, comme précédemment, utilisé pour obtenir la sensibilité au choc mais la configuration est telle que la sollicitation est soutenue. Le résultat dépend en fait de la sollicitation : pour des pressions élevées, la granulométrie fine est la plus sensible, alors que pour des pressions modérées et soutenues, c'est la granulométrie la plus grossière. Cette inversion de sensibilité à une pression critique a été observée avec le test du coin [59, 60]. Une étude bibliographique plus complète sur l'influence de la taille des grains sur la sensibilité au choc a été réalisée par Khasainov *et al.* [61].

Si l'on trouve de nombreuses études sur le rôle de la taille des grains, il y a nettement moins de résultats sur l'influence de la distribution de taille des grains. Song *et al.* [62] révèlent cependant que ce paramètre influence la sensibilité à l'impact. Dans cette étude, la stabilité thermique et mécanique d'échantillons de RDX pressés est étudiée. La taille médiane des grains de RDX est la même mais la distribution est, dans un cas très étendue, dans l'autre cas bien plus étroite. La sensibilité à l'impact est étudiée avec le test du mouton de choc. Les résultats indiquent que l'échantillon avec la distribution de taille la plus étendue est la plus sensible. Ces résultats ont été confirmés par des simulations numériques réactives à l'échelle mésoscopique [63]. Cette différence de sensibilité provient du fait que les points chauds ont plus de facilité à grandir jusqu'à coalescence lorsque la distribution de taille est plus étendue.

L'influence de la forme des grains a été étudiée sur des échantillons composés de grains de RDX et d'un liant polyuréthane par Van der Steen *et al.* [64]. Les échantillons contiennent des grains de formes irrégulières et endommagés ou bien des grains sphériques. La sensibilité au choc est déterminée avec le *gap test* et révèle que les échantillons les moins sensibles sont ceux avec les grains les plus sphériques. Cette étude confirme que la morphologie des grains est importante mais il est difficile de quantifier dans quelles proportions car d'autres paramètres varient d'un échantillon à l'autre. Ainsi, en plus d'un changement de forme des grains, il y a également une légère variation sur la granulométrie.

Dans les études présentées ci-dessus, la porosité extra-granulaire est identique d'un échantillon testé à l'autre. C'est un paramètre facilement ajustable et contrôlable car les expériences

sont menées sur des explosifs comprimés. Pour obtenir une porosité extra-granulaire plus importante, il suffit de moins comprimer le matériau lors de la mise en forme. L'influence de la porosité extra-granulaire, ou de la densité, a été étudiée expérimentalement par *wedge test* sur des échantillons à base de RDX [3], de tétryl [65] ou encore de PETN [66]. Les trois études indiquent une profondeur d'amorçage plus faible lorsque la porosité extra-granulaire est importante. Pour de très hauts niveaux de pression, en revanche, la différence est mineure [65]. Ce résultat met en évidence l'existence de plusieurs modes d'initiation selon la pression du choc. Pour de faibles niveaux de pression, la sensibilité au choc est davantage influencée par certains paramètres microstructuraux.

Si la porosité extra-granulaire est facilement quantifiée à travers la densité du matériau, les moyens expérimentaux permettant de mesurer la porosité intra-granulaire sont plus complexes et plus récents. Les méthodes actuelles permettant de mesurer la porosité intra-granulaire de manière quantitative sont : la flottation (brevet ISL) [67, 68], la diffusion de neutrons aux petits angles (*Small Angle Neutron Scattering* ou SANS) [69], la thermoporosimétrie ou encore la diffraction X. Le dispositif de flottation est décrit plus en détails dans la section 5.2.3. Une mesure plus qualitative a également été réalisée avec des essais de compression quasi statique [70]. Après avoir quantifié le volume de défauts intra-granulaires, il est également intéressant de déterminer la nature de ces défauts. En effet, les défauts peuvent être des pores mais également des inclusions de solvant. Les espèces chimiques présentes dans les cavités intra-granulaires ont été déterminées pour des grains de RDX cristallisés, soit dans de l'acétone, soit dans du cyclohexanone [71]. L'étude expérimentale révèle que la majorité des défauts contiennent de l'eau et du solvant ainsi que de l'air en moins grande quantité. Nous n'avons toutefois pas accès à la répartition de ces espèces chimiques dans les cavités. En d'autres termes, nous ne sommes pas capables de dire si certaines cavités sont remplies uniquement d'air ou bien si chaque cavité est remplie d'un mélange des trois espèces. La détermination des espèces présentes dans les cavités est importante car le mécanisme d'implosion de pores (voir section 2.3) responsable de la formation de points chauds, est affecté par ce qu'il contient (gaz ou fluide).

L'influence des défauts intra-granulaires sur la sensibilité au choc a été étudiée sur des compositions RDX/cire [72, 73] et HMX/cire [74] (70/30 % en masse). Le principe du dispositif expérimental utilisé est d'impacter le matériau à tester avec un projectile cylindrique de petite taille. Le choc est plan et soutenu. La vitesse du projectile est augmentée progressivement jusqu'à atteindre le seuil de détonation, c'est à dire la vitesse pour laquelle 50 % des échantillons détonent. Il s'agit d'un test de type *go/no go*. Une description plus complète du dispositif expérimental est réalisée dans la section 4.3.3. Les résultats de ces études montrent que les échantillons sont d'autant plus sensibles que le volume de défauts intra-granulaires est important.

Dans les différentes études expérimentales portant sur l'influence de la taille des grains sur la sensibilité au choc, des mesures sur la quantité de défauts intra-granulaires n'étaient pas disponibles. Or, on sait que les défauts intra-granulaires sont en grande partie responsables de la formation de points chauds à cause du mécanisme d'effondrement de pores. De plus, la probabilité que les gros grains contiennent des défauts intra-granulaires est plus élevée que pour les petits grains pour la plupart des matériaux (ce n'est pas le cas des grains de RDX recristallisés par exemple). Il existe donc une corrélation entre la taille des grains et la présence de défauts intra-granulaires. Cette corrélation entraîne une incertitude sur l'influence de chaque paramètre sur la sensibilité au choc. Si des simulations numériques à l'échelle mésoscopique ont confirmé le rôle de la granulométrie, une étude expérimentale a démontré que l'influence du volume de défauts intra-granulaires était prépondérante devant celle de la granulométrie [73]. Cette même étude indique aussi que la porosité extra-granulaire est un paramètre négligeable devant la porosité intra-granulaire.

Un autre paramètre microstructural pouvant influencer la formation de points chauds est l'état de surface des grains. L'influence de ce paramètre, plus complexe à mesurer et à modéli-

ser, est encore à l'étude.

Enfin, la présence d'impuretés peut également influencer la sensibilité au choc. On s'intéresse en particulier au cas du HMX et du RDX. Le RDX peut être synthétisé de deux manières différentes : celle de Bachmann ou celle de Woolwich. Pour ces deux voies de synthèse, le HMX est un sous-produit présent en plus ou moins grande quantité. La voie Bachmann produit très peu de HMX contrairement à la voie Woolwich. Le HMX peut donc se retrouver dans l'explosif final en tant qu'impureté. Des études expérimentales quantifiant la quantité de HMX dans des échantillons composés de RDX ont néanmoins démontré que ce paramètre était secondaire pour la sensibilité au choc [75, 76].

Cette étude bibliographique nous a permis d'identifier les paramètres microstructuraux influençant la sensibilité au choc : la porosité intra-granulaire, la morphologie des grains, la taille des grains, la porosité extra-granulaire, l'état de surface des grains et la présence d'impuretés. Ces résultats expérimentaux alimentent et permettent de perfectionner les modèles d'amorçage et les simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique.

1.3.4 Modèles d'amorçage par choc

Ce paragraphe a pour objectif d'introduire les différents modèles existants et de mettre en évidence l'importance d'une meilleure compréhension de la formation des points chauds pour améliorer ces modèles. Il ne s'agit pas de décrire en détail chaque modèle mais plutôt d'expliquer quels sont les principes utilisés pour les construire. Des descriptions plus complètes sont disponibles dans différentes thèses et articles [31, 41, 55].

Les modèles d'amorçage visent à prévoir le plus fidèlement possible l'amorçage par choc (soutenu ou non soutenu) d'un explosif. Ces modèles ne prennent pas en compte les hétérogénéités de la microstructure. Les particularités de la microstructure comme la porosité ou la taille des grains apparaissent généralement de manière indirecte dans les équations d'états des réactifs.

Dans un premier temps, des critères d'initiation empiriques ont été développés pour résumer et regrouper les résultats expérimentaux pour différentes sollicitations. Les critères les plus utilisés sont ceux développés par Walker et Wasley [77] puis par James [78]. Ils s'expriment sous la forme $P^2\tau = cst$ avec P la pression du choc, τ sa durée et cst une constante. Le tracé de cette courbe critique permet de différencier deux domaines : sous la courbe il n'y a pas de détonation, au-dessus, la détonation a lieu. Ce critère n'étant pas validé pour tous les explosifs, différentes modifications et ajustements y sont apportés au cours des années [78–80].

Hubbard et Johnson [81] introduisent les bases des modèles d'amorçages cinétiques en 1959. Les modèles cinétiques sont composés de quatre briques élémentaires : une vitesse de réaction chimique, une équation d'état des réactifs solides, une équation d'état des produits de détonation gazeux, une loi de mélange qui génère une équation d'état du mélange réactif non réagi et produits de détonation. Les différentes lois de mélange ainsi que les équations d'états des produits de détonation ne sont pas détaillées dans ce paragraphe. Des informations complémentaires sont disponibles dans l'article de Handley *et al.* [55]. Les étapes de transformation des réactifs en produits étant encore mal connues, la transformation se fait souvent en une seule étape. Les modèles d'amorçage sont semi-empiriques avec un certain nombre de paramètres ajustables pour reproduire les résultats expérimentaux. Les différents modèles ont été améliorés au cours du temps pour être de plus en plus prédictifs et généralisables à tous les types d'explosifs. On peut ainsi distinguer plusieurs générations de modèles d'amorçage.

Modèle de 1^{ère} génération

Le modèle Forest Fire [82] est un modèle de 1^{ère} génération construit pour retrouver les profondeurs d'amorçage des essais Pop-plot. C'est un modèle empirique qui décrit l'évolution de la vitesse du front de choc en fonction du temps. Il se base uniquement sur des observations expérimentales, les phénomènes physiques comme l'amorçage par points chauds ne sont pas pris en compte.

Modèle de 2^{ème} génération

La prise en compte des points chauds est réalisée dans les modèles de 2^{ème} génération. Après des améliorations successives, Tarver [83] propose en 1985 un modèle de cinétique de réaction du type Ignition & Growth en 3 étapes : initiation des points chauds, croissance lente des points chauds jusqu'à coalescence, transition vers la détonation lorsque la moitié de l'explosif a réagi. Ce modèle nécessite 12 paramètres ajustables. Le nombre de points chauds initiés pour la première étape dépend de la pression du choc. Les équations d'états pour les réactifs et les produits sont de type Jones Wilkins Lee (JWL) et la loi de mélange est basée sur un équilibre thermique et mécanique. Ce modèle d'amorçage est implémenté dans beaucoup de codes hydrodynamiques. Le modèle WSD [84] fonctionne sur le même principe. Les équations d'état des produits et des réactifs sont différentes mais la cinétique de réaction en trois étapes et la loi de mélange restent identiques.

Le développement des moyens de mesure ont permis d'accéder à des vitesses matérielles au sein de l'explosif. De nouveaux modèles sont construits à partir de ces nouvelles données comme le modèle CREST. La cinétique de réaction ne dépend plus de la pression mais de l'entropie des réactifs. L'équation d'état pour les réactifs est de type déformation finie [85] et l'équation d'état pour les produits de réaction est une JWL modifiée. La loi de mélange est une ISE (Isentrope Solid Equation) assumant un équilibre mécanique mais un déséquilibre thermique. Le modèle CREST [86] prend en compte les effets de la porosité et de la température initiale. Il fait une distinction entre les points chauds qui apparaissent suite à une interaction de l'onde de choc avec la microstructure et ceux qui apparaissent suite aux réflexions d'ondes. On trouve également, dans les modèles de 2^{ème} génération les modèles SURF développé par R. Menikoff [87] et KRAKATOA développé par G. Damamme [88] puis par G. Baudin [89].

Le modèle JTF (Johnson Tang Forest) [90] aussi appelé *empirical hot spot model* est novateur car la température n'est plus homogène au sein de chaque phase. En effet, il distingue la température moyenne dans la phase des réactifs et la température des points chauds. Ce modèle est donc basé sur un amorçage thermique. La vitesse de réaction $\dot{\lambda}$ est écrite sous la forme :

$$\dot{\lambda} = \frac{d\lambda}{dt} = \underbrace{\mu \dot{f}}_{\text{points chauds}} + \underbrace{[1 - \lambda - \mu(1 - f)] \frac{f - f_0}{1 - f_0} G(P, P_s)}_{\text{croissance homogène}}, \quad (1.7)$$

avec μ la fraction massique d'explosif décomposé dans les points chauds, f le degrés de réaction des points chauds ($0 < f < 1$) et f_0 une valeur seuil pour débiter la phase de croissance homogène dans l'explosif. En effet, lorsque $f < f_0$, la vitesse de réaction dépend de l'avancement de la réaction dans les points chauds car $(f - f_0)/(1 - f_0) = 0$. La cinétique de décomposition autour des points chauds est modélisée avec une loi d'Arrhénius et est donnée par l'équation (1.8). L'évolution de la température des points chauds θ_s est donnée par l'équation (1.9).

$$\dot{f} = \frac{df}{dt} = (1 - f)Z \left(\frac{\alpha\beta}{\theta_s^2} \right) \exp(-\alpha/\theta_s) \quad (1.8)$$

$$d\dot{\theta}_s = \frac{\dot{\theta}_s}{dt} = \theta_s \Gamma K_s \dot{P} - \frac{\dot{q}}{c_p} \quad (1.9)$$

Les coefficients α et Z correspondent à la température d'activation et au facteur pré-exponentiel de la loi d'Arrhénius. Γ est le coefficient de Gruneisen, K_s le module de compressibilité isotrope, q le flux de chaleur et c_p la capacité calorifique à pression constante.

La phase de croissance homogène qui décrit l'avancement de la réaction dans le reste de l'explosif dépend de $G(P, P_s)$ qui est une fonction de la pression de choc P_s :

$$G(P, P_s) = G_0 P \left(1 + \frac{\dot{\mathcal{F}}(P_s)}{G_0 P_s} \right), \quad (1.10)$$

avec G_0 un paramètre ajustable et $\dot{\mathcal{F}}(P_s)$ la vitesse de réaction du modèle Forest-fire. La croissance est construite de telle sorte que pour des pressions de choc élevées ($\dot{\mathcal{F}}(P_s) > G_0 P_s$), la croissance est contrôlée par le modèle Forest-fire $G(P, P_s) \cong \dot{\mathcal{F}}(P_s)$, tandis que pour des choc faibles $G(P, P_s) \cong G_0 P_s$. La vitesse de réaction du modèle Forest-fire est mise sous la forme :

$$\dot{\mathcal{F}}(P_s) = A \left(\frac{P_s}{P_0} \right)^n \left[1 + \left(\frac{P_s}{P_0} \right)^{7-n} \right], \quad (1.11)$$

avec A , B , n et m des paramètres ajustables.

La construction du modèle JTF par bloc permet, en ajoutant des briques, d'être employé pour certains matériaux énergétiques particuliers. Il a ainsi été adapté pour modéliser l'amorçage de matériaux fortement comprimés ou avec une granulométrie fine [91]. Pour ces types de matériaux, le mécanisme de croissance homogène peut être prépondérant devant le mécanisme de réaction des points chauds. Un nouveau bloc de croissance homogène a donc été ajouté. Celui-ci n'est plus décorrélé, mais en compétition avec le mécanisme des points chauds. Le modèle JTF a également été adapté pour modéliser l'amorçage de compositions aluminisées [92, 93].

Le modèle WSD(T) [94] est également un modèle d'amorçage thermique. Il est similaire au modèle WSD, mais la cinétique de réaction est contrôlée par la température plutôt que par la pression. Les trois phases de la réaction (initiation des points chauds indexée I, croissance des points chauds indexée G, combustion jusqu'à la détonation indexée B) contribuent successivement à la vitesse de réaction (Eq. (1.12)). Le passage d'un régime à l'autre se fait avec une fonction S_X dépendant de l'avancement de la réaction λ .

$$r = r_I S_I(\lambda) + r_G S_G(\lambda) + r_B [1 - S_G(\lambda)] \quad (1.12)$$

Les vitesses de réaction r_X des différents régimes sont données par :

$$r_X = k_X \left(\frac{T}{T^*} \right)^{n_X} f_X(\lambda) \quad (1.13)$$

avec k_X , n_X , T^* des paramètres ajustables pour retrouver les résultats expérimentaux. La fonction $f_X(\lambda)$ module la vitesse de réaction de chaque régime.

Modèle de 3^{ème} génération

La formation des points chauds dans les modèles de 2^{ème} génération est définie de manière empirique, en ajustant un nombre plus ou moins important des paramètres du modèle pour reproduire des résultats expérimentaux. C'est à partir des modèles de 3^{ème} génération que l'apparition des points chauds va être plus intimement liée à la microstructure grâce à la prise en compte de certains mécanismes. La tendance des nouveaux modèles est d'utiliser des paramètres caractérisés expérimentalement plutôt qu'empiriquement. Cela est rendu possible par l'amélioration simultanée des moyens expérimentaux et numériques. On trouve ainsi le modèle américain CHARM [95] et le modèle français AMORC [96] et AMOREA [97] où l'apparition des points chauds est basée sur le mécanisme d'implosion de pores.

Dienes *et al.* [98] développent et améliorent au cours des années le modèle SCRAM basé sur la formation de points chauds par apparition statistique de fissures. Les modèles d'amorçage prennent en compte de plus en plus de phénomènes physiques et deviennent de plus en plus complexes. La formation des points chauds par friction des lèvres des fissures est aussi l'approche retenue dans les travaux de Picart *et al.* [99].

Cette complexité croissante va souvent de paire avec un nombre de paramètres ajustables de plus en plus importants qui peuvent être quelques fois difficiles à déterminer. Ce sont les limites des modèles de 3^{ème} génération.

Les points chauds sont des paramètres d'entrée de beaucoup de modèles de cinétique de réaction. Leur localisation et les mécanismes de leur formation restent des points clés pour modéliser plus finement l'amorçage d'un explosif par choc. Les simulations à l'échelle mésoscopique (voir chapitre 2) permettent de répondre, en partie, à ces besoins.

Chapitre 2

Simulations dynamiques sur des matériaux énergétiques à l'échelle mésoscopique

Les simulations numériques à l'échelle mésoscopiques ont pour objectif d'étudier l'interaction d'une onde de choc avec la microstructure d'un matériau énergétique. L'échelle mésoscopique se situe entre l'échelle de la molécule et l'échelle macroscopique. Elle permet de distinguer la microstructure du matériau.

Les simulations mésoscopiques permettent d'enrichir les modèles de TCD mais également de mieux comprendre et d'approfondir certains résultats expérimentaux. Les matériaux utilisés pour les expériences présentées dans la sous-section 1.3.3 sont des matériaux réels dont les microstructures sont complexes. Il est impossible, expérimentalement, de faire varier uniquement un seul paramètre entre deux microstructures. Certains paramètres microstructuraux peuvent, de plus, être corrélés comme par exemple la taille des grains et le volume de défauts intra-granulaires. D'autres paramètres sont encore très difficiles à contrôler expérimentalement, comme par exemple la taille des défauts intra-granulaires dans les grains d'explosif. Les simulations numériques permettent de travailler sur des géométries idéales, mieux maîtrisées, et ainsi d'étudier l'influence des différents paramètres microstructuraux. C'est également un moyen de mieux comprendre les mécanismes de formation des points chauds étant donné qu'il n'est pas possible actuellement d'observer et de mesurer les phénomènes mis en jeu de par leurs temps caractéristiques ($\sim 10^{-9}$ s).

2.1 Codes de calculs dynamiques

Les équations des bilans, les lois de comportements et les équations d'états sont présentées brièvement dans les paragraphes suivants. Le lecteur peut se référer aux références [100–103] pour une description plus complète. Un code de simulation dynamique résout les équations du bilan de la masse (2.1), du bilan de la quantité de mouvement (2.2) et du bilan de l'énergie totale (2.3). Les bilans s'écrivent sous forme intégrale dans un référentiel animé d'une vitesse \vec{U} ,

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho dV' + \int_S \rho (\vec{u} - \vec{U}) \cdot \vec{n} dS' = 0, \quad (2.1)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho \vec{u} dV' + \int_S \rho \vec{u} \otimes (\vec{u} - \vec{U}) \cdot \vec{n} dS' = \int_V \rho \vec{F} dV' + \int_S \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{n} dS', \quad (2.2)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \left(e + \frac{\vec{u}^2}{2} \right) dV' + \int_S \left(e + \frac{\vec{u}^2}{2} \right) (\vec{u} - \vec{U}) \cdot \vec{n} dS' = \int_V \rho \vec{F} \cdot \vec{u} dV' + \int_S \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{u} \cdot \vec{n} dS' - \int_S \vec{q} \cdot \vec{n} dS', \quad (2.3)$$

avec V le volume, S la surface, ρ la masse volumique, \vec{u} la vitesse matérielle, e l'énergie interne massique et \vec{q} le flux de chaleur. \vec{F} représente les forces volumiques s'exerçant sur le milieu, il peut s'agir par exemple de la pesanteur ou de forces électromagnétiques. $\underline{\sigma}$ est le tenseur des contraintes qui modélise les efforts internes générés par la déformation du volume. Il peut se décomposer en une partie sphérique et une partie déviatorique $\underline{\tau}$:

$$\underline{\sigma} = -P\underline{I} + \underline{\tau}, \quad (2.4)$$

\underline{I} étant le tenseur identité et la pression P étant égale à un tiers de la trace du tenseur des contraintes

$$P = \sigma_m = \frac{1}{3} \text{tr} \underline{\sigma}. \quad (2.5)$$

De manière analogue, le tenseur des déformations $\underline{\varepsilon}$ peut se mettre sous la forme :

$$\underline{\varepsilon} = \varepsilon_m \underline{I} + \underline{\varepsilon}' \quad (2.6)$$

où la déformation moyenne est donnée par la variation relative de volume $\Delta V/V$

$$\varepsilon_m = \frac{1}{3} \text{tr} \underline{\varepsilon} = \frac{1}{3} \frac{\Delta V}{V} = \frac{1}{3} \left(\frac{v_0 - v}{v} \right) = \frac{1}{3} \left(\frac{v_0}{v} - 1 \right). \quad (2.7)$$

La décomposition du tenseur des contraintes amène à des modélisations séparées de P et de $\underline{\sigma}$:

$$P = f(\varepsilon_m, T), \quad (2.8)$$

$$\underline{\tau} = f(\underline{\varepsilon}', \dot{\underline{\varepsilon}}', T, \dots). \quad (2.9)$$

La pression est reliée à la déformation moyenne ε_m grâce à une équation d'état. Le déviateur des contraintes $\underline{\tau}$ est lié au déviateur des déformations ainsi qu'à un nombre plus ou moins important d'autres grandeurs en fonction de la loi de comportement utilisée (voir section 2.2.1).

La résolution du système s'effectue couramment par méthode des éléments finis, mais on trouve aussi d'autres méthodes de résolution comme la méthode des cellules (Method of Cells MOC) [104] ou la méthode des éléments discrets (Discrete Element Method DEM) [105]. Les codes de simulation par éléments finis discrétisent l'espace en éléments. Un élément est formé de plusieurs nœuds qui définissent une maille. Le système d'équations présenté ci-dessous est résolu pour chaque élément, ce qui permet d'accéder aux champs de contraintes, de déformations, de température, de pression... On trouve principalement deux méthodes de résolution : la méthode lagrangienne et la méthode eulérienne. Dans la configuration lagrangienne, le maillage est attaché aux objets et se déforme avec eux. Dans la configuration eulérienne, au contraire, la grille est fixe et les objets se déplacent et se déforment sur cette grille. Les codes eulériens permettent de traiter plus simplement les grandes déformations car ils s'affranchissent des déformations de mailles trop importantes et, dans le pire des cas, des retournements de mailles. Le pas de temps étant calculé à partir du plus petit élément, une déformation de maille importante fait chuter le pas de temps et rallonge les calculs. Les inconvénients des solveurs eulériens résident dans la gestion des contacts et des frottements entre les différents objets qui sont plus complexes à prendre en considération [106]. C'est pourquoi les simulations mésoscopiques s'intéressant à la décohésion entre les grains d'explosifs et le liant, à la fissuration et à la friction entre les grains [52, 107–109] sont réalisées avec un solveur lagrangien. Une exception est le travail de Brauer *et al.* [110] qui étudie la décohésion liant/grains avec un solveur eulérien. Enfin, certaines simulations mésoscopiques sont réalisées avec un solveur ALE (*Arbitrary Lagrange Euler*) combinant la méthode lagrangienne et eulérienne [111, 112]. Les calculs sont menés avec le formalisme lagrangien puis, lorsque les déformations deviennent trop importantes, les objets sont remaillés et le calcul se poursuit.

Dans notre étude, les simulations mésoscopiques sont réalisées avec un solveur eulérien qui se décompose, en réalité, en une phase lagrangienne et une phase de projection des grandeurs sur

la grille fixe. Dans une description lagrangienne du mouvement, la vitesse du référentiel est égale à la vitesse matérielle ($\vec{U} = \vec{u}$). Les équations (2.1), (2.2) et (2.3) se simplifient sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho dV' = 0, \quad (2.10)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \rho \vec{u} dV' = \int_V \rho \vec{F} dV' + \int_S \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{n} dS', \quad (2.11)$$

$$\frac{d}{dt} \int_V \left(e + \frac{\vec{u}^2}{2} \right) dV' = \int_V \rho \vec{F} \cdot \vec{u} dV' + \int_S \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{u} \cdot \vec{n} dS' - \int_S \vec{q} \cdot \vec{n} dS. \quad (2.12)$$

Lors de simulations de l'interaction d'une onde de choc avec une microstructure, différents phénomènes peuvent être négligés comme la conduction thermique, le rayonnement thermique et les forces externes. Si la conduction thermique est prise en compte dans certaines études [113–116], elle est globalement négligée car le temps caractéristique de la conduction thermique ($\sim 10^{-6}$ s) est supérieur au temps caractéristique mécanique ($\sim 10^{-7}$ s). Un calcul des temps caractéristiques en fonction de la taille des grains d'explosif est présenté dans le chapitre 9 pour justifier cette hypothèse. La radiation thermique n'est, généralement, pas intégrée dans les calculs mésoscopiques d'interaction d'une onde de choc avec une microstructure [117]. Des études expérimentales semblent néanmoins indiquer qu'elle joue un rôle [118]. Les forces extérieures comme la gravité n'ont qu'un effet négligeable pour des phénomènes de quelques microsecondes. Elles ne sont donc pas prises en compte dans les simulations dynamiques.

2.2 Modélisation à l'échelle mésoscopique

2.2.1 Modélisation du comportement des matériaux

Dans une simulation à l'échelle mésoscopique de matériaux solides, il faut affecter à chaque phase du matériau une équation d'état (*Equation of State* EOS) et une loi de comportement dans le but de lier les parties sphérique et déviatorique du tenseur des contraintes et des déformations. Dans le cas des simulations réactives, une EOS et une loi de comportement sont également nécessaires pour les produits de réaction et pour le réactif partiellement réagi. La force de cohésion entre le liant et les grains d'explosifs ou encore le coefficient de friction entre les grains sont aussi des paramètres à ajuster lorsqu'ils sont pris en compte dans les simulations.

Dans le cadre de la thèse, nous réaliserons des simulations eulériennes non réactives, c'est pourquoi les éléments de modélisation des produits de réaction ne sont pas présentés.

Il est courant de déterminer les propriétés d'un matériau à de faibles vitesses de déformation avec des essais de traction et de compression. Il est déjà plus difficile d'accéder à ces propriétés en dynamique. Les moyens de caractérisation les plus utilisés pour déterminer les propriétés d'un matériau sous choc sont les barres d'Hopkinson (aussi appelées barres de Kolsky) [119] ou l'impact de plaques (voir section 1.3.1). La caractérisation des matériaux énergétiques est encore plus complexe car le matériau peut réagir violemment. Une difficulté supplémentaire réside dans le fait que les moyens d'essai habituels sont adaptés pour de la caractérisation macroscopique (voir test de Steven et barres d'Hopkinson sur PBX dans [99, 120]), et non de la caractérisation à l'échelle de la microstructure. La caractérisation du comportement sous choc de matériaux énergétiques à l'échelle microscopique est encore très récente [121]. Les données sont, par conséquent, encore incomplètes et disponibles seulement pour quelques explosifs.

Les incertitudes sur des grandeurs comme la capacité calorifique, le coefficient de conduction thermique, les paramètres des EOS et des lois de comportement restent importantes. Pour des simulations réactives, d'autres paramètres encore moins maîtrisés interviennent, comme les

cinétiques chimiques des transformations des réactifs en produits.

Les lois de comportement

La résistance à la déformation d'un matériau est modélisée grâce à une loi de comportement. La loi de comportement fait le lien entre le tenseur des contraintes et le tenseur des déformations.

Sous de faibles déformations, la microstructure du matériau n'est pas modifiée de manière irréversible. Le matériau retourne dans son état initial dès que la contrainte est relâchée. Le matériau est alors modélisé avec un comportement élastique linéaire où thermo élastique linéaire lorsque la température intervient. Dans le cas d'un matériau isotrope, la partie sphérique et déviatorique du tenseur sont données dans le tableau 2.1 où K_T et G_T sont les modules de compressibilité et de cisaillement isotherme, ν le coefficient de Poisson et E le module d'Young. δ_{ij} est le symbole de Kronecker égal à 1 lorsque $i = j$ et à 0 lorsque $i \neq j$. Dans cette étude, les calculs FFT quasi statiques présentés dans le chapitre 6 sont menés en supposant que les différents constituants ont un comportement élastique linéaire.

TABLEAU 2.1 – Modélisation de matériaux isotropes avec des comportements élastique linéaire et thermo-élastique linéaire

Elasticité linéaire (loi de Hooke)
$P = f(\epsilon_m) = 3K_T \epsilon_m = K_T \left(\frac{\nu_0}{\nu} - 1 \right)$
$\underline{\tau} = f(\epsilon') = 2G_T \epsilon'$
ou $\sigma_{ij} = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} \epsilon_{kk} \delta_{ij} + \frac{E}{1+\nu} \epsilon_{ij}$
Thermoélasticité linéaire
$P = f(\epsilon_m, T) = K_T \left(\frac{\nu_0}{\nu} - 1 \right) + \alpha K_T T$
$\underline{\tau} = f(\epsilon') = 2G_T \epsilon'$
ou $\sigma_{ij} = [K_T \left(\frac{\nu_0}{\nu} - 1 \right) + \alpha K_T T] \delta_{ij} + 2G_T \epsilon'_{ij}$ avec $\alpha K_T = \frac{\Gamma C_\nu}{\nu}$

Lorsqu'un matériau est modélisé avec une loi de comportement viscoélastique, sa réponse dépend de la vitesse du chargement. Pour des phénomènes dynamiques, il est souvent nécessaire d'utiliser ce type de loi car la réponse du matériau dépend de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ d'où $\underline{\sigma} = f(\underline{\epsilon}, \dot{\underline{\epsilon}}, \dots)$. Ce phénomène peut être illustré en considérant un sac de sable. Le sac de sable est très malléable à de faibles vitesses de déformation. En revanche, ce même sac de sable est capable de stopper un projectile. Il est donc bien plus résistant pour des vitesses de déformations élevées.

Pour des déformations plus importantes, des modifications irréversibles peuvent avoir lieu. Ces déformations irréversibles, dites plastiques, peuvent prendre la forme de fissures, de bandes de cisaillement. La limite au-delà de laquelle des déformations subsistent est définie avec une fonction \mathfrak{F} appelée limite d'écoulement plastique. La limite d'écoulement plastique peut être plus ou moins complexe selon les phénomènes pris en compte. Elle peut ainsi dépendre de la contrainte, de la déformation, de la vitesse de déformation, de la température... Dans le cas d'une modélisation avec une plasticité parfaite, \mathfrak{F} ne dépend que de la contrainte $\mathfrak{F} = \mathfrak{F}(\sigma_{ij})$ et est définie de telle sorte que :

- si $\mathfrak{F}(\sigma_{ij}) < 0$, le comportement est élastique;
- si $\mathfrak{F}(\sigma_{ij}) = 0$ et $d\mathfrak{F}(\sigma_{ij}) = 0$, le comportement est plastique.

Les lois de comportement élasto-plastiques ou visco-élasto-plastiques modélisent la réponse élastique ou visqueuse puis plastique du matériau.

La loi de comportement de Johnson-Cook est, par exemple, est une loi visco-plastique permettant de prendre en compte l'effet de l'érouissage, de la vitesse de déformation et de la température. La contrainte dans le matériau est donnée par :

$$\sigma = \left[A + B \varepsilon_p^n \right] \left[1 + C \ln \left(\frac{\dot{\varepsilon}_p}{\dot{\varepsilon}_0} \right) \right] \left[1 - \frac{T - T_0}{T_f - T} \right]^m \quad (2.13)$$

avec ε_p la déformation plastique équivalente, $\dot{\varepsilon}_p$ la vitesse de déformation plastique équivalente et $\dot{\varepsilon}_0 = 1$ la vitesse de déformation de référence. Le coefficient A représente la limite élastique, les coefficients B et n quantifient l'érouissage, les coefficients C et m quantifient, respectivement, la sensibilité du matériau à la vitesse de déformation et à la température. $T_0 = 300$ K et T_f sont les températures de référence et de fusion du matériau. Dans cette étude, la loi de comportement de Johnson-Cook est utilisée dans les calculs de dimensionnement d'une expérience de récupération sous choc (Chap. 9).

Plus la modélisation du matériau est fine, plus l'implémentation dans un code de calcul est complexe et plus les temps de calculs deviennent importants. Une loi complexe nécessite également plus de données qu'il faut déterminer expérimentalement. Les matériaux énergétiques sont souvent modélisés à l'échelle mésoscopique avec des lois de comportement élastoplastiques [107, 112, 113, 122–124] ou viscoplastiques [49, 54, 111, 125, 126]. Le liant, s'il est présent, est modélisé avec des lois viscoélastiques [53, 107, 108].

Les équations d'état

Les équations d'état s'appuient sur les relations de la thermodynamique. Elles relient les différentes grandeurs thermodynamiques entre elles, et plus particulièrement la partie sphérique du tenseur des contraintes (soit la pression P) à la partie sphérique du tenseur des déformations (soit la variation de volume v_0/v). L'énergie interne massique $e(v, s)$ est une fonction du volume massique v et de l'entropie massique s et est donnée par $de = -Pdv + Tds$. Les dérivées premières de l'énergie interne permettent d'accéder à la pression et à la température. Les dérivées secondes permettent d'accéder à différents coefficients thermodynamiques comme le module de compressibilité isotrope K_s , la capacité calorifique à volume constant c_v ou encore le coefficient de Gruneisen Γ . Pour des matériaux solides, le coefficient de Gruneisen ne dépend que du volume massique (2.14). Cette hypothèse est justifiée par Debye [127] en considérant des oscillations quasi harmoniques d'un réseau cubique d'atomes. L'intégration de (2.14) mène à l'équation d'état incomplète (2.15) dite de Mie-Gruneisen. Cette forme d'équation d'état est largement utilisée dans les codes de simulations.

$$\Gamma = v \left(\frac{\partial P}{\partial e} \right)_v = \Gamma(v) \quad (2.14)$$

$$P = P^*(v) + \frac{\Gamma(v)}{v} [e - e^*(v)] \quad (2.15)$$

$P^*(v)$ et $e^*(v)$ sont la pression et l'énergie sur une courbe de référence. La courbe de référence peut être une courbe de compression par choc (courbe d'Hugoniot), une courbe de compression isentropique ou une isotherme à 0 K.

Dans la plupart des cas, c_v est constant et la température est alors calculée par :

$$T = T^*(v) + \frac{e - e^*(v)}{c_v}. \quad (2.16)$$

La courbe de référence utilisée le plus couramment, lorsqu'il n'y a pas besoin d'accéder à la température, est la courbe de compression par choc. L'énergie de référence e_H (2.17) est directement calculée à partir de la relation d'Hugoniot (1.3) :

$$e_H(v) = e_0 + \frac{1}{2} (P_0 + P_H(v)) (v_0 - v). \quad (2.17)$$

Une relation linéaire entre la vitesse du choc D et la vitesse matérielle u est observée expérimentalement. La vitesse du choc en fonction de la vitesse matérielle est donnée par la relation linéaire $D = c_0 + su$ où c_0 est la vitesse du son dans le matériau et s une caractéristique du matériau. En combinant cette relation avec la relation de la conservation de la masse (1.1), il est possible d'exprimer la vitesse du choc uniquement en fonction du volume spécifique v :

$$D = \frac{c_0}{1 + s \left(\frac{v}{v_0} - 1 \right)}. \quad (2.18)$$

L'expression de la pression de référence est ensuite obtenue grâce aux équations (2.18) et (1.2) :

$$P_H(v) = P_0 + \rho_0 \left(1 - \frac{v}{v_0} \right) \frac{c_0^2}{\left(1 + s \left(\frac{v}{v_0} - 1 \right) \right)^2}. \quad (2.19)$$

Les formulations de Murnaghan et de Birch-Murnaghan peuvent prendre pour référence une isotherme à 0 K. La formulation de Murnaghan est basée sur l'hypothèse que le module de compressibilité sur une isotherme varie linéairement en fonction de la pression $K_T(P) = K_0 + K'_0(P_T - P_0)$ avec $K'_0 = \left(\frac{\partial K_T}{\partial P} \right)_T$. L'énergie et la pression de référence sont données par :

$$de_T(v) = \left(-P_T(v) + T c_v \frac{\Gamma}{v} \right) dv. \quad (2.20)$$

$$P_T(v) = P_0 + \frac{K_0}{K'_0} \left[\left(\frac{v_0}{v} \right)^{K'_0} - 1 \right]. \quad (2.21)$$

L'intégration de l'énergie dépend du choix des formes de $c_v(T)$ et de $\Gamma(v)$. Ces grandeurs sont généralement considérées comme des constantes.

Pour des niveaux de pression très élevés (supérieur à 100 GPa), l'équation d'état ne reproduit plus correctement la polaire de choc. Le formalisme de Birch-Murnaghan permet de corriger ces biais. La pression est alors donnée par :

$$P_T(v) = \frac{3K_0}{2} v \left[\left(\frac{v_0}{v} \right)^{7/3} - \left(\frac{v_0}{v} \right)^{5/3} \right] \left[1 + \frac{3}{4} (K'_0 - 4) \left(\left(\frac{v_0}{v} \right)^{2/3} - 1 \right) \right]. \quad (2.22)$$

La formulation de référence de Cochran-Chan [128] utilise également une isotherme à 0 K comme courbe de référence. Le coefficient de Grüneisen Γ et la capacité calorifique à volume constant c_v sont considérés comme des constantes. La pression est modélisée comme la somme d'un potentiel attractif et d'un potentiel répulsif :

$$P_T(v) = A_1 \left(\frac{v_0}{v} \right)^{E_1} - A_2 \left(\frac{v_0}{v} \right)^{E_2}. \quad (2.23)$$

Cochran et Chan proposent de déterminer les coefficients A_1 , A_2 , E_1 et E_2 à partir d'une polaire de choc $D = c_0 + su$. Le CEA Gramat a développé une autre méthode qui permet de mieux restituer les états sous choc pour des pressions élevées [41]. Cette nouvelle méthode utilise toujours les données de la polaire de choc. L'énergie sur l'isotherme à 0 K est donnée par : $de_T(v) = -P_T(v)dv$. Par intégration, on obtient :

$$e_T(v) = \frac{A_1 v_0}{E_1 - 1} \left(\frac{v_0}{v} \right)^{E_1 - 1} - \frac{A_2 v_0}{E_2 - 1} \left(\frac{v_0}{v} \right)^{E_2 - 1} + e_0 - c_v T_0. \quad (2.24)$$

D'autres formes de pression de référence existent dans la littérature mais les formes les plus utilisées pour modéliser un matériau inerte sont les formes présentées ci-dessus.

Influence du choix des modèles matériaux

Le choix des propriétés des matériaux influence les résultats des simulations numériques. Dans l'étude de l'implosion des pores, par exemple, la prise en compte de la viscosité du matériau influence les mécanismes d'implosion du pore et les niveaux de température atteints [111, 126, 129]. L'implosion d'un pore dans un matériau viscoplastique orthotrope ou viscoplastique isotrope conduit à la formation de bandes de cisaillement [111]. Les bandes de cisaillement n'apparaissent pas lorsque la loi de comportement du matériau est élastoplastique.

Hardin *et al.* [115] montrent également l'importance de l'anisotropie en comparant deux modèles viscoplastiques orthotropes prenant en compte 2 ou 7 plans de glissements privilégiés et un modèle homogène. La prise en compte de l'anisotropie mène à des températures localisées plus importantes. Une variation de la limite élastique peut également favoriser certains mécanismes de dissipation plutôt que d'autres comme le montre l'étude lagrangienne avec des éléments cohésifs de Keyhani *et al.* [116]. Les éléments cohésifs permettent de modéliser la fissuration et la décohésion entre les grains et le liant. Une diminution de la limite élastique entraîne une baisse de la sensibilité. En effet, l'élévation de la température est alors principalement liée à la dissipation visco-plastique de la chaleur plutôt qu'à la fissuration et à la friction. La température reste globalement plus élevée dans le matériau, mais elle est moins localisée que dans le cas où l'élévation de température se fait par fissuration des grains puis friction entre les faces fissurées.

Le coefficient de friction entre les grains et la force de cohésion entre le liant et les grains sont également des paramètres à ajuster lorsqu'ils interviennent dans la simulation. Un coefficient de friction important entraîne une température localisée plus élevée [116] et, dans le cas de la compaction des poudres, une propagation de l'onde de choc dans le milieu plus rapide [109]. Quant à la force de cohésion entre les grains et le liant, son augmentation entraîne une baisse de la sensibilité [52].

Ces études montrent que l'observation de la formation des points chauds lors de simulations et les mécanismes mis en jeu dépendent de la modélisation des matériaux. Les simulations mésoscopiques sont encore difficilement représentatives à cause de trop grandes incertitudes sur la modélisation du comportement des matériaux énergétiques sous choc. Dans notre étude, nous travaillerons par comparaison entre trois matériaux de même composition, mais de microstructure et de sensibilité différentes. Notre objectif est de retrouver, avec des simulations numériques, les mêmes tendances de sensibilité au choc entre les trois matériaux que celles obtenues expérimentalement, et d'identifier les paramètres microstructuraux favorisant la formation de points chauds. Tant que les constituants sont modélisés de la même manière pour les trois matériaux, la comparaison est possible. Les incertitudes sur les paramètres de modélisation ne seront donc pas un obstacle dans notre étude.

2.2.2 Modélisation de la microstructure

Microstructure réelle, microstructure virtuelle

Idéalement, l'étude de l'interaction d'une onde de choc avec la microstructure est réalisée sur des microstructures réelles obtenues par microtomographie ou microscopie. L'acquisition se fait couramment par microtomographie à rayons X [107, 130–133] ou nanotomographie à rayons X [124]. Dans le premier cas, la résolution d'acquisition est de l'ordre de $3\ \mu\text{m}/\text{voxel}$ ce qui permet de travailler sur des domaines de l'ordre du millimètre cube. Dans le deuxième cas, la résolution d'acquisition est de l'ordre de $20\ \text{nm}/\text{voxel}$. La plupart des études sont réalisées sur des coupes tomographiques 2D car un maillage 3D reste très coûteux et pose le problème de la reconstruction. On trouve toutefois dans la littérature quelques études 3D sur des volumes microtomographiés d'un peu moins de $1\ \text{mm}^3$ [131, 133] et sur des volumes nanotomographiés d'environ $500\ \mu\text{m}^3$ [124]. La microstructure réelle peut également être obtenue par microscopie électronique en transmission (MET) [134] ou par microscopie électronique à balayage (MEB) [135]. Les calculs

sont alors menés en 2D sur des domaines d'une dizaine de micromètres de côté. Les microstructures réelles sont complexes : différentes formes de grains, différentes tailles de grains, présence de porosité intra et extra-granulaires, inclusions de solvants, micro-fissurations, décohésion entre les grains et le liant. . . L'interprétation des simulations numériques et l'identification des mécanismes responsables de la formation de points chauds n'est donc pas aisée. Pour rendre le problème abordable, beaucoup d'études sont réalisées sur des géométries simplifiées.

La voie de modélisation la plus simple est de considérer les grains d'explosifs comme des disques [108, 109, 122, 136–138] ou des sphères [139]. Les disques et sphères peuvent tous avoir le même diamètre [122, 137–139], ou bien avoir des distributions de diamètres monomodales ou bimodales pour modéliser plus fidèlement le matériau réel [108, 109, 136]. La modélisation d'explosifs par des disques est principalement utilisée pour des simulations numériques de compaction de poudres [109, 122, 136–138]. Pour travailler sur des géométries plus réalistes, les grains d'explosifs sont souvent modélisés par des polyèdres. Une fois encore, on trouve des géométries simplifiées où tous les polyèdres ont la même forme et la même taille mais des orientations différentes [140] et des géométries plus complexes avec une variation de forme, de taille et d'orientation des polyèdres [52, 107, 114, 141]. Certains matériaux énergétiques obtenus par pressage sont très chargés, avec une fraction volumique de grains dépassant 95 % (Fig. 2.3). Le reste du volume est composé de liant et de porosités. La microstructure du matériau est alors modélisée comme un polycristal, sans liant ni vide entre les grains [54, 115, 116, 142].

Méthodes de génération de microstructures

La génération de polycristaux se fait couramment avec des modèles de partitionnement de l'espace de type germination-croissance [4, 143, 144]. Ces modèles permettent de découper l'espace en plusieurs cellules. Chaque cellule représente, dans notre cas, un grain. Ces modèles de germination-croissance se décomposent en deux étapes. La première étape est la phase de germination qui consiste à placer des points de manière aléatoire dans l'espace par un processus de points de Poisson. Chaque point, appelé germe, est labellisé. La deuxième phase est une phase de croissance à partir des germes. Cette phase consiste à définir la zone d'influence de chaque germe qui représente également la forme finale d'un grain. En considérant un domaine Ω de \mathbb{Z}^n , où \mathbb{Z}^n est l'ensemble des entiers relatifs à n dimensions avec $n = 2$ pour une image en 2D et $n = 3$ pour une image en 3D, les zones d'influence d'une famille de germes $(g_i)_{i \in [1, n]}$ sont définies par :

$$G_i = \{x \in \Omega, \forall j \neq i, d_i(x) < d_j(x)\}, \quad (2.25)$$

avec $d_i(x)$ la distance entre le point de coordonnées x et le germe g_i . Selon le type de distance utilisé, on obtient différents partitionnements de l'espace. Pour un partitionnement de Voronoï, la distance utilisée est la distance euclidienne. Les grains sont des polyèdres de formes convexes (Fig. 2.1a). Ce partitionnement est le plus courant pour représenter des polycristaux [54, 116]. Pour un partitionnement de Laguerre, chaque germe est pondéré par un poids qui affecte le calcul de la distance euclidienne. Les grains obtenus par partitionnement de Laguerre sont toujours des polyèdres convexes (Fig. 2.1b). Le dernier type de partitionnement couramment utilisé est celui de Johnson-Mehl. La croissance des grains à partir des germes se fait à une même vitesse mais la croissance commence à des temps différents. Les grains obtenus ne sont plus des polyèdres et ne sont plus nécessairement convexes (Fig. 2.1c). Gasnier *et al.* [142] modifient le terme de croissance pour avoir une vitesse de croissance anisotrope et ainsi reproduire au mieux la microstructure d'un matériau très chargé en TATB.

La méthode RDC (*Relaxed Dual Complex*) est une autre alternative pour générer des polycristaux. La microstructure générée est similaire à celle obtenue avec un partitionnement de Voronoï. L'avantage de cette méthode est, entre autres, la génération immédiate d'un maillage tétraédrique et la facilité d'implémentation [145]. Cette méthode de génération est utilisée par Hardin *et*

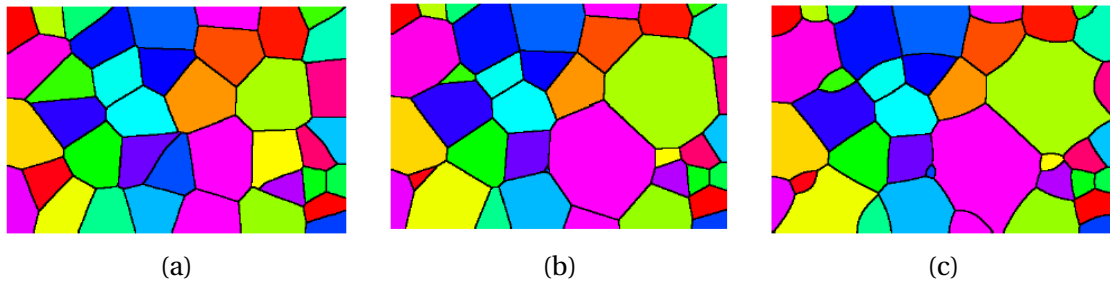


FIGURE 2.1 – Microstructure générée par partitionnement de (a) Voronoï, (b) Laguerre et (c) Johnson-Mehl. Les images proviennent de [4].

al. [115] pour modéliser un polycristal de HMX.

La génération de microstructures granulaires aléatoires se fait couramment avec des codes de compaction. La difficulté principale de ce type de génération est d'atteindre une fraction volumique de grains importante dans des temps de calculs raisonnables. La plupart des codes de compaction s'appuient sur l'algorithme de Lubachevsky-Stillinger [146] qui peut être décomposé en 3 étapes :

- placement aléatoire de points, aussi appelés germes, dans l'espace ;
- affectation à chaque germe d'une vitesse de croissance et d'une vitesse de déplacement ;
- croissance des grains et collision jusqu'à atteindre la bonne fraction volumique.

Ces trois étapes peuvent légèrement varier mais le principe reste globalement le même. La troisième étape, la plus coûteuse, a été optimisée progressivement pour réduire les temps de calcul. Le calcul des collisions se faisait initialement par dynamique moléculaire (*MD Molecular Dynamic*), puis a été remplacé par la EDMD (*Event Driven Molecular Dynamic*). La MD permet de déterminer la trajectoire des particules mais il est nécessaire de connaître, à chaque pas de temps, la taille et la position de chaque grain. L'idée de la EDMD est de déterminer dans combien de temps aura lieu le prochain évènement (la prochaine collision), puis de mettre à jour tous les objets affectés par l'évènement [147]. Les codes de compaction ont d'abord été utilisés pour des empilements de sphères et de disques [147, 148], avant d'être généralisés pour toutes les formes convexes grâce à l'utilisation de la carte de distance euclidienne entre les grains, pour déterminer les collisions [149, 150]. Une nouvelle optimisation proposée par Amadio *et al.* [151] remplace la troisième étape de collision par des déplacements aléatoires. Les grains restent fixes, ils croissent sans bouger jusqu'à ce qu'il y ait intersections. Le grain est alors légèrement déplacé de manière aléatoire jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'intersections. Le processus reprend jusqu'à atteindre la bonne fraction volumique. Ces algorithmes de compaction permettent d'obtenir des microstructures avec différentes formes de grains, une granulométrie étendue et une fraction volumique pouvant dépasser 80 %. Ces microstructures représentent correctement les microstructures réelles ; c'est pourquoi elles sont largement utilisées dans les simulations numériques à l'échelle mésoscopique (voir par exemple [63, 113, 114, 141, 152]). Les limitations de cette méthode résident dans le fait que les grains sont tous convexes ce qui n'est pas nécessairement le cas dans la réalité. De plus, le nombre de formes de grains reste limité.

Pour avoir une plus grande variation dans la forme des grains, il est possible de travailler avec des bibliothèques de grains déjà constituées. Les grains sont placés dans un volume par méthode RSA (*Random Sequential Adsorption*). Le principe est le suivant : un grain de la bibliothèque est sélectionné puis placé à différentes positions choisies aléatoirement jusqu'à ce qu'il soit absorbé. Le grain est absorbé, ou implémenté, dans la géométrie lorsqu'il n'intersecte aucun des grains placé préalablement. Pour atteindre des fractions volumiques élevées, les plus grands grains sont placés en premier. Cette méthode de génération est utilisée par Kim *et al.* [52, 53] avec une librairie constituée de grains obtenus par partitionnement de Voronoï. Pour diminuer le temps de calcul,

un algorithme de permutation aléatoire (*random shuffling algorithm*) est également utilisé. Si un grain ne peut pas être placé dans le volume, les grains déjà implantés sont déplacés de manière aléatoire jusqu'à ce qu'un espace suffisamment grand soit disponible pour accueillir le grain. Cette opération fait gagner du temps car lorsque la fraction volumique devient importante, il est de plus en plus compliqué de placer un grain dans le modèle. Le nombre de positions aléatoires sélectionnés avant que le grain soit implémenté explose, et le temps de calcul se rallonge. L'utilisation d'un algorithme de permutation permet d'atteindre des fractions volumiques de 80 %.

Dans notre étude, nous utilisons une bibliothèque composée de grains réels extraits de microtomographies et la méthode RSA pour générer des microstructures.

La plupart des calculs sont menés sur des géométries 2D car un maillage 3D reste encore coûteux en ressources. Il faut néanmoins être conscient que certains phénomènes peuvent être sous-estimés dans les calculs 2D. Les températures mises en jeu lors de l'implosion d'un pore sont, par exemple, plus faibles dans les calculs 2D que dans les calculs 3D [153, 154].

L'exploitation des simulations numériques est plus complexe en 3D. Le champ des pressions et des températures est loin d'être homogène. Il faut donc faire appel à la statistique pour extraire des valeurs pertinentes [136, 155].

2.3 Mécanismes identifiés conduisant à la formation d'un point chaud

Le choc inerte déforme la microstructure de l'explosif hétérogène. Des déformations plastiques apparaissent comme des bandes de cisaillement ou des fissures qui peuvent entraîner la formation de points chauds. D'autres mécanismes comme l'implosion de pores, la réflexion d'ondes ou encore la décohésion entre le liant et les grains d'explosifs génèrent également de la chaleur. Ces différents mécanismes conduisant à la formation de points chauds sont plus ou moins prépondérants en fonction du type de sollicitation et de la microstructure du matériau. Cette sous-partie présente les différents mécanismes identifiés qui conduisent à la formation de points chauds, ainsi que l'influence de la microstructure sur ces mécanismes.

2.3.1 Implosion de pores intra-granulaires

Au passage d'une onde de choc, un pore peut s'effondrer en générant une surpression et une hausse de température extrêmement importantes. C'est le phénomène d'implosion de pores. Ce phénomène a tout d'abord été étudié de manière analytique [156, 157] avant d'être analysé avec des simulations numériques. L'implosion de pores est identifiée comme un des mécanismes prépondérant dans la formation de points chauds.

Étant donné la taille des défauts intra-granulaires, il est nécessaire de mailler finement le milieu d'étude. Un maillage trop grossier entraîne une sous-estimation de la température [6, 125, 129, 158]. Ces simulations numériques sont donc coûteuses, c'est pourquoi la plupart des études sont réalisées en 2D plan ou axisymétrique. Les rares travaux réalisés en 3D [153, 154] indiquent des mécanismes identiques entre le 2D et le 3D mais des niveaux de pression et de température plus importants dans le cas 3D.

Les propriétés des matériaux ainsi que les moyens de dissipation de la chaleur implémentés dans les codes de calculs influencent également les niveaux de température. Le pore se trouve dans certaines études au sein d'un matériau élasto-plastique parfait de cuivre [159] ou de HMX [123, 154]. Les travaux numériques de Kapahi *et al.* [123, 154] reproduisent des expérimentations d'implosion d'un pore isolé, de pores adjacents ou de pores les uns derrière les autres [160]. Si les phénomènes sont reproduits avec un comportement élastoplastique, d'autres études signalent l'importance de la viscosité [111, 129]. On trouve ainsi des travaux sur le HMX [111, 125] et le TATB [49, 161] avec un comportement viscoplastique. La modélisation du comportement du HMX

dans les travaux d'Austin *et al.* [111] est la plus complexe avec une prise en compte du comportement orthotrope du HMX et des plans de dislocation privilégiés. Cette étude montre l'apparition de bandes de cisaillement suite à l'effondrement de pores. La présence de ces bandes de cisaillement et leur motif dépend fortement de la viscosité du matériau. Les bandes de cisaillement n'apparaissent pas lorsque le matériau est isotrope. Springer *et al.* [126] observent également ces bandes de cisaillement en modélisant le HMX avec une loi de comportement viscoplastique de Johnson-Cook. Les bandes de cisaillement sont localisées différemment car les plans de dislocation du HMX ne sont pas considérés. Cette étude indique que les motifs et la localisation des bandes dépendent du paramètre de la loi de comportement contrôlant la sensibilité à la vitesse de déformation.

Pour des pressions élevées, l'implosion d'un pore sphérique peut se décomposer en quatre étapes :

- une élévation globale de la température dans le matériau à cause du passage de l'onde de choc. Le choc se propage jusqu'au pore;
- le pore commence à se déformer, la dissipation visqueuse de l'énergie entraîne une augmentation locale de la température. Puis, le régime de plasticité du matériau est atteint, le pore résiste à la déformation. La température augmente à cause de la dissipation plastique;
- la déformation du pore crée un jet de matière hydrodynamique;
- l'impact du jet de matière sur la surface opposée de la cavité entraîne une implosion du pore et la formation de deux lobes (Fig. 2.2). L'impact génère une onde de compression dans la matière. L'onde de compression rattrape et interagit avec le front de choc principal.

L'élévation de température la plus importante est liée à l'impact du jet de matière sur la surface interne de la cavité. Une récente étude a néanmoins mis en évidence [6] qu'un second effondrement de pore (Fig. 2.2) peut générer une température encore plus élevée. Cet effondrement secondaire est complexe à observer car il nécessite un maillage très fin et une résolution temporelle élevée (de l'ordre de la dizaine de nanosecondes). L'implosion d'un pore entraîne également la formation de bandes de cisaillement [111, 126]. L'élévation de température dans les bandes de cisaillement n'est pas négligeable mais est moins importante que la température atteinte suite à l'impact du jet de matière ou à l'effondrement secondaire. Pour des chocs faibles, il n'y a pas formation de jet de matière. L'implosion du pore entraîne une hausse de la température liée à la dissipation visqueuse de l'énergie et à la formation de bandes de cisaillement.

Pour les pores de formes allongées et avec une orientation particulière (entre 0° et 45° par rapport à la normale au choc), il n'y a pas de formation d'un jet de matière. L'effondrement du pore se fait par « pincement » (*pinching mechanism*) [158].

La taille des pores est un aspect important. Plus un pore est gros, plus la température générée lors de son effondrement est importante [111, 125, 157]. La forme des pores ainsi que leur orientation influent également sur l'élévation de la température lors de l'implosion. Des études sur l'implosion de pores triangulaires [125, 159] indiquent que la température atteinte est plus importante que dans des pores sphériques. La température est maximale lorsque le sommet du triangle est orienté vers le choc, car cette configuration favorise la formation d'un jet de matière. D'autres études s'intéressent plus particulièrement à des pores elliptiques plus ou moins allongés [126, 158, 161]. Plus le pore est allongé, plus la température est élevée. La température dépend également de l'orientation avec des valeurs maximales pour des orientations entre 0° et 45° par rapport à la normale au choc, car l'implosion du pore se fait par pincement [158]. Enfin, la position des pores est également un facteur à prendre en considération. Les pores situés proche de la surface des grains semblent être plus critiques [126] que les pores situés au centre. De plus, dans le cas où deux pores sont situés l'un derrière l'autre, l'implosion du pore amont protège le pore aval qui, par conséquent, implose avec une température plus faible que s'il était isolé. Dans le cas où deux pores sont décalés d'une certaine distance, l'onde de compression générée par l'effondrement du pore amont interagit avec l'onde de choc et le pore aval qui implose avec une température

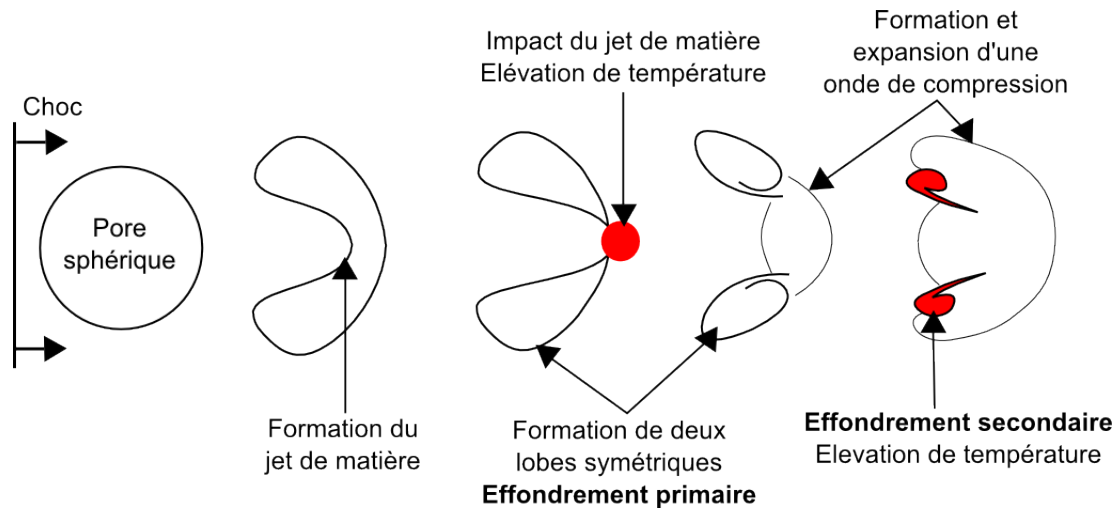


FIGURE 2.2 – Schéma du principe d'implosion de pore inspiré de [5, 6]

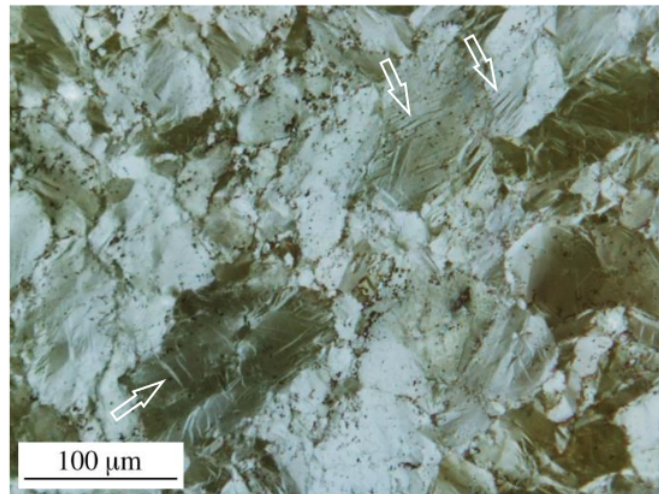


FIGURE 2.3 – Image d'un explosif à base de TATB obtenue par microscopie optique en réflexion et lumière polarisée. Des bandes de cisaillement, indiquées par des flèches, apparaissent suite à la mise en forme par pressage. Image provenant de [7].

plus importante que s'il était isolé. Ces études indiquent que, selon la position des pores dans le milieu, leur interaction peut amplifier ou atténuer la température locale [123, 126, 154]. Ces résultats obtenus par simulations numériques sont conformes aux observations expérimentales [160].

2.3.2 Bandes de cisaillement, fissuration et friction...

La formation des bandes de cisaillement est également un mécanisme important pour l'amorçage d'un matériau énergétique. Lorsque la déformation plastique est importante, des hétérogénéités de déformations apparaissent conduisant à une réorganisation de la microstructure du matériau. Ce sont les bandes de cisaillement (Fig. 2.3). La chaleur dissipée lors de la formation de la bande de cisaillement est intense et localisée. La température locale peut dépasser le seuil d'initiation de la réaction chimique. Les bandes de cisaillement étant étendues, la coalescence des points chauds est d'autant plus facile.

Une série d'études réalisées avec un solveur lagrangien et des éléments cohésifs [162] ont mis en évidence l'importance de la fissuration et de la friction dans la formation des points chauds [51–54, 107, 108, 116, 130, 163]. La fissuration d'un grain d'explosif entraîne une augmentation de

la surface spécifique mais permet surtout le frottement entre les faces fracturées. La température générée par la friction entre les faces d'un grain est suffisamment élevée pour amorcer la réaction chimique. Il n'existe actuellement aucune simulation numérique prenant en compte à la fois le phénomène d'implosion de pore et la fissuration suivie de la friction. On ne sait donc pas si l'un de ces deux mécanismes est prépondérant et le cas échéant, pour quel type de sollicitation.

D'autres mécanismes ont été identifiés mais semblent être de second ordre : la réflexion des ondes de choc et la décohésion entre le liant et les grains. Suite à des séries de réflexions sur des hétérogénéités du matériau (par exemple les grains d'explosifs dans le liant ou encore les défauts dans les grains d'explosifs), l'interaction des ondes de choc entraîne une élévation locale de la température [87]. Mais la température atteinte ne semble pas être suffisamment importante pour générer un point chaud critique.

Le phénomène de décohésion entre les grains et la matrice a principalement été étudié avec un solveur lagrangien et des éléments cohésifs [52, 107]. La décohésion augmentant les surfaces disponibles pour la friction [107], elle favorise la formation de points chauds.

Pour résumer, les mécanismes les plus susceptibles de générer des points chauds sont : l'implosion de pores, la formation de bandes de cisaillement, la fissuration suivie de la friction entre les faces fracturées d'un grain, la décohésion entre le liant et les grains d'explosifs. La formation des points chauds n'est probablement pas liée à un seul de ces mécanismes, mais plutôt à une combinaison de tous les mécanismes présentés ci-dessus. L'hypothèse la plus répandue est que le mécanisme prépondérant pour la formation des points chauds dépend du type de sollicitation et est influencé par la microstructure.

2.3.3 Influence de la microstructure et de la sollicitation

Des études expérimentales avaient déjà mis en évidence l'influence de certains paramètres microstructuraux sur la formation des points chauds à travers l'étude de la sensibilité au choc (voir section 1.3.3). Les simulations numériques permettent actuellement la reproduction de certaines tendances expérimentales.

L'influence de la taille des grains sur la sensibilité au choc a été confirmée grâce à plusieurs simulations numériques [54, 63, 136]. Pour des chocs faibles, la microstructure contenant des gros grains d'explosif est plus sensible que celle contenant de plus petits grains [63]. L'effet inverse pour des chocs forts est également retrouvé [54]. Ces résultats numériques sont cohérents avec les résultats expérimentaux [59]. Expérimentalement, les matériaux avec des granulométries étendues sont plus sensibles que les matériaux avec des granulométries étroites pour des chocs faibles. Une granulométrie étendue facilite la coalescence des points chauds car il y a moins d'espace entre deux grains adjacents. En effet, avec une distribution étendue, les plus petits grains vont s'intercaler entre les plus gros grains. Si certaines études numériques retrouvent ce même comportement pour des distributions bimodales et des chocs faibles [63], d'autres montrent la tendance inverse. En effet, les études lagrangiennes avec éléments cohésifs pour des vitesses de déformation de 10^3 s^{-1} indiquent une plus grande tenue mécanique pour les distributions bimodales. Les distributions bimodales peuvent mieux absorber les déformations avec un réarrangement des grains et ainsi limiter les fissurations sur de longues distances. Pour des distributions monomodales, l'énergie dissipée par fracturation puis friction est donc plus importante et génère plus de points chauds [51, 107, 108]. Ces différences de résultats d'une simulation à l'autre peuvent s'expliquer par le fait que les mécanismes pris en compte ainsi que les régimes de sollicitations sont différents.

Conformément aux études expérimentales, les simulations numériques indiquent également que les matériaux avec des grains anguleux tendent à être plus sensibles que les matériaux avec des grains de formes arrondies. L'explication avancée par les travaux de Barua *et al.* [107, 108] est que la décohésion entre les grains et le liant est facilitée lorsque les surfaces d'un grain sont planes.

L'influence de la fraction volumique de grains a également été étudiée grâce à des simulations numériques à l'échelle mésoscopique. La fraction volumique de grains varie d'une géométrie à l'autre, le reste de l'espace est occupé par du liant. Pour des chocs faibles, une des simulations numériques prenant en compte le phénomène d'implosion de pore indique que les matériaux les moins chargés sont les plus sensibles, car ils détonent plus rapidement [141]. La porosité, et l'implosion des pores, est prise en compte artificiellement en plaçant des points chauds de manière aléatoire dans les grains d'explosif. Les points chauds sont activés au passage de l'onde de choc et génèrent une chaleur prédéfinie. Cette différence de sensibilité est moins visible pour des chocs de pression plus élevée. La même tendance est obtenue pour la compaction de poudre de HMX avec différentes fractions volumique de grains. La chaleur générée par des déformations plastiques et par friction entre les grains, et donc le nombre de points chauds, sont plus importants pour de faibles fractions volumiques [136]. Ces observations sont cohérentes avec les études expérimentales réalisées sur des matériaux comprimés [3].

Mais une nouvelle fois, les résultats obtenus par simulations lagrangiennes avec des éléments cohésifs démontrent le phénomène inverse [107, 108]. Il se forme plus de fissures dans les matériaux (HMX/cire sans porosités extra et intra-granulaires) lorsque la fraction volumique de grain est élevée. La chaleur dissipée par friction entre les faces des grains fracturées est donc plus importante que pour les matériaux avec une fraction volumique de grains plus faible. Dans ces simulations numériques, le phénomène d'implosion des pores intra-granulaires n'est pas pris en compte. Le fait que ces résultats de simulations soient en contradiction avec les résultats expérimentaux pourrait indiquer que la friction entre les grains est moins importante que le phénomène d'implosion de pores pour générer des points chauds et conduire à la détonation de l'explosif.

Il est compliqué de comparer les résultats de simulations numériques, même lorsqu'elles étudient l'influence du même paramètre microstructural, car bien souvent les lois de comportement, les équations d'états et les hypothèses de calculs (c_v ou Γ constant) varient. Actuellement, aucune simulation numérique ne prend en compte tous les mécanismes de formation des points chauds. Il est en effet difficile d'étudier à la fois le phénomène de fissuration et de friction, plus adapté aux solveurs lagrangiens, et le phénomène d'implosion de pores plus adapté aux solveurs eulériens.

2.4 Conclusion

Les simulations numériques permettent de mieux comprendre les résultats des études expérimentales car elles donnent des indications sur les mécanismes responsables de la formation des points chauds; l'implosion de pores, les déformations plastiques, la formation de bandes de cisaillement, la fissuration et la friction entre les grains d'explosifs. Mais ces résultats dépendent fortement de la modélisation des matériaux et des hypothèses de résolution. Si l'on sait que les mécanismes intervenant dans la formation de points chauds dépendent de la sollicitation et de la microstructure, on ne sait pas encore si un des mécanismes est prépondérant pour certaines sollicitations ou microstructures. Néanmoins, l'implosion de pores et la formation de bandes de cisaillement semblent être les mécanismes les plus efficaces pour former des points chauds critiques.

L'évaluation de l'influence de certains paramètres microstructuraux sur la formation des points chauds reste encore complexe. Actuellement, les simulations numériques ne permettent pas, à notre connaissance, de modéliser les phénomènes de fissuration, friction et décohésion (solveurs lagrangiens) ainsi que le phénomène d'implosion de pores (solveurs eulériens). Or, pour quantifier précisément l'influence de paramètres microstructuraux, l'ensemble des mécanismes doivent être pris en compte. Si la quantification de l'influence de la taille des grains, de la forme des grains, de la porosité extra-granulaire ou intra-granulaire reste difficile, il est clair que la porosité intra-granulaire est un paramètre majeur dans la formation des points chauds comparé aux autres.

Les simulations numériques à l'échelle mésoscopique sont encore en cours de développement

et sont souvent réalisées sur des microstructures idéales. Lors de cette thèse, nous allons réaliser des simulations avec un solveur eulérien, non réactives, de l'interaction d'une onde de choc avec différentes microstructures. Nous travaillerons sur des microstructures réelles extraites de microtomographies ainsi que sur des microstructures virtuelles, mais représentatives du matériau réel. Les microstructures virtuelles sont formées de grains réels. Elles permettent de décorréler certains paramètres microstructuraux et d'avoir le contrôle sur les grains implantés dans le modèle.

Chapitre 3

Outils de traitement d'images

Lors de la thèse, nous avons analysé et exploité des images microtomographiques. Ce chapitre a pour but d'introduire les outils de traitement d'images utilisés. Dans un premier temps, des concepts fondamentaux sur les images sont introduits; puis, les opérateurs de morphologie mathématique et les mesures en découlant sont présentés. Les différentes méthodes de segmentation de milieux granulaires ainsi que les filtres utilisés pour débruiter des images sont ensuite introduits. Pour finir, une description du code de segmentation SAMG, utilisé pour traiter nos microtomographies d'étude, est réalisée.

3.1 Introduction sur le traitement d'images

Une image est une représentation discrète d'une scène de l'espace euclidien \mathbb{R}^3 . La discrétisation dans l'espace, aussi appelée échantillonnage, se fait généralement sur une grille régulière. Les éléments de cette grille sont appelés pixels pour une image en 2 dimensions (2D) et voxels pour une image en 3 dimensions (3D). A chaque élément de la grille est affectée une valeur. D'une manière générale, l'intensité de chaque élément de la grille peut être donnée par l'application :

$$f : \Omega \subset \mathbb{Z}^n \rightarrow Y \subset \mathbb{R}^m$$
$$x(x_1, x_2, \dots, x_n) \rightarrow f(x)$$

\mathbb{Z}^n est l'ensemble des entiers relatifs à n dimensions avec $n = 2$ pour une image en 2D et $n = 3$ pour une image en 3D. L'ensemble auquel appartient l'intensité de l'élément x dépend du type d'image étudié. En effet, si la discrétisation se fait dans l'espace avec l'échantillonnage, elle se fait également sur l'intensité. La discrétisation de l'intensité est aussi appelée quantification. Les images peuvent être binaires avec $Y = \{0, 1\}$, ou encore en niveaux de gris avec $Y = \{0, 1, \dots, p_{max}\}$. La valeur de p_{max} dépend de la résolution de la quantification. En effet, le nombre de valeurs que peut prendre une image est déterminé par le nombre de bit. Une image 8 bits peut prendre 2^8 valeurs soit 256 valeurs ($Y = 0, 1, \dots, 255$), une image 16 bits peut prendre $2^{16} = 65536$ valeurs ($Y = 0, 1, \dots, 65536$). En plus des images binaires et en niveaux de gris, on trouve également des images en couleur. La couleur est donnée par trois scalaires donc $Y \subset \mathbb{R}^3$. Il existe également des images multispectrales où $Y \subset \mathbb{R}^n$ avec $n > 4$.

Les microtomographies sur lesquelles nous allons travailler sont des images 3D 8 bits en niveaux de gris.

3.2 Morphologie mathématique en traitement d'images

La morphologie mathématique propose des outils non linéaires permettant d'extraire et d'étudier les objets d'une image. Les différentes définitions et opérateurs sont présentés ici pour des images binaires. Ils sont, toutefois, également disponibles sur d'autres types d'images [164]. Les

opérateurs s'appliquent à des sous-ensembles X d'une image. Dans le cas d'un matériau granulaire, X peut représenter, par exemple, l'ensemble des grains (en blanc sur la figure 3.5(a)). X^c , le complémentaire du sous-ensemble X , est le reste de l'image (en noir sur la Fig. 3.5(a)).

3.2.1 Éléments structurants

Les opérations de morphologie mathématique nécessitent un élément structurant. Un élément structurant, dans le cas binaire, définit un ensemble $B \subset \Omega$. On définit le translaté B_z de B par $z \in \Omega$ par :

$$B_z = \{x + z, x \in B, z \in \Omega\} \quad (3.1)$$

On définit également le symétrique de B :

$$\check{B} = \{-b, b \in B\} \quad (3.2)$$

L'élément structurant élémentaire le plus courant est une boule. Dans un espace Ω discret, cette boule est discrétisée sous la forme d'un carré (ou d'un cube en 3D) ou d'une croix (en 2D ou 3D). Ils sont notés respectivement B_8^1 , B_4^1 , B_{26}^1 et B_6^1 . Les indices indiquent la connectivité, c'est à dire le nombre d'éléments auquel est connecté l'élément d'origine et l'exposant le rayon de la boule (Fig. 3.1). Ils sont définis mathématiquement, lorsque l'origine est à $(0, 0)$ pour les éléments 2D, et à $(0, 0, 0)$ pour les éléments 3D par :

$$\begin{aligned} B_8^r &= \{(i, j); |i| \leq r, |j| \leq r\} \\ B_4^r &= \{(i, j); |i| + |j| \leq r\} \\ B_{26}^r &= \{(i, j, k); |i| \leq r, |j| \leq r, |k| \leq r\} \\ B_6^r &= \{(i, j, k); |i| + |j| + |k| \leq r\} \end{aligned}$$

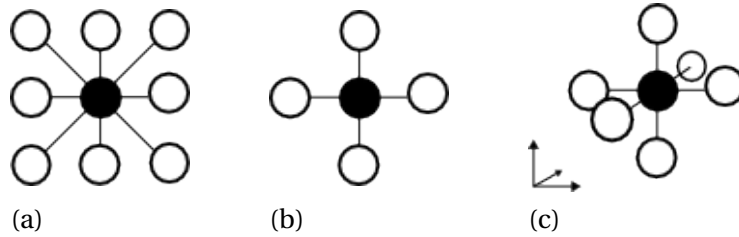


FIGURE 3.1 – Éléments structurants élémentaires : (a) carré B_8^1 , (b) croix B_4^1 , (c) croix 3D B_6^1 . L'origine est indiquée en noir.

Dans l'espace des réels, la boule euclidienne est donnée par :

$$B^r = \left\{ x \in \mathbb{R}^n; \sqrt{x_1^2 + \dots + x_n^2} < r \right\}$$

Le résultat d'une opération morphologique dépend de l'élément structurant utilisé (Fig. 3.4). Le choix de l'élément structurant se fait en fonction du type de données que l'on souhaite extraire de l'image. Nous utiliserons majoritairement des éléments structurants cubiques de plus ou moins grande taille pour notre étude. Un élément structurant cubique, centré sur l'origine $(0, 0, 0)$ et de largeur $2r + 1$ est donné par :

$$B_{26}^r = \{(i, j, k), |i| \leq r, |j| \leq r, |k| \leq r\} \quad (3.3)$$

3.2.2 Opérateurs morphologiques

Les principaux opérateurs de morphologie mathématique sont l'érosion, la dilatation, l'ouverture et la fermeture.

Dilatation

Une dilatation d'un sous-ensemble X d'une image binaire est obtenue par l'union des translatés de X par l'élément structurant B . Elle est notée $\delta_B X$ ou $X \oplus B$.

$$\delta_B X = X \oplus B = \bigcup_{b \in \check{B}} X_b = \{z; \check{B}_z \cap X \neq \emptyset\} \quad (3.4)$$

La figure 3.2 permet de visualiser le principe d'une dilatation par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$. Les couleurs n'ont pas de signification car l'image est binaire, elles permettent uniquement une meilleure visualisation. Le translaté X_{b_1} avec $b_1 = (0, 1)$ et le translaté X_{b_2} avec $b_2 = (1, 0)$ sont respectivement représentés sur les figures 3.2(b) et 3.2(c). L'union des ensembles X , X_{b_1} et X_{b_2} est le résultat de la dilatation (Fig. 3.2(d)). Cet opérateur morphologique augmente la taille des objets présents sur l'image et réduit, voire supprime, les porosités.

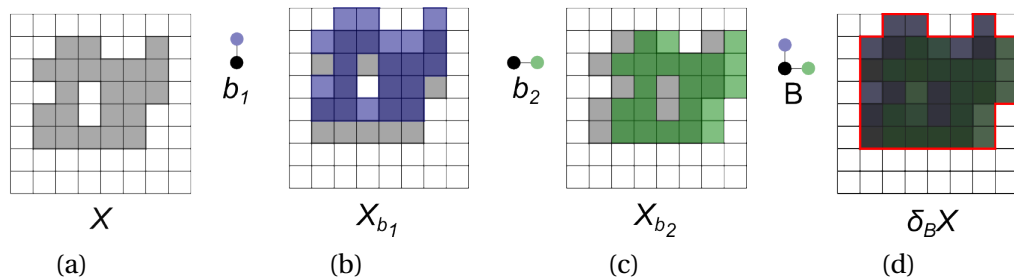


FIGURE 3.2 – Schéma du principe de la dilatation d'un ensemble X par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$: (a) Image d'origine, (b) translaté par b_1 , (c) translaté par b_2 , (d) l'union des translatés donnant le résultat de la dilatation $\delta_B X$ en rouge

Érosion

Une érosion morphologique d'un sous-ensemble X d'une image binaire est donnée par l'intersection de tous les translatés de X par le symétrique de \check{B} l'élément structurant B . Une érosion peut également être vue comme l'ensemble des positions où l'élément structurant B est entièrement inclus dans X . Il est noté $\varepsilon_B X$ ou $X \ominus B$. La figure 3.3 permet de visualiser le principe d'une érosion par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$.

$$\varepsilon_B X = X \ominus B = \bigcap_{b \in B} X_b = \{z; B_z \subset X\} \quad (3.5)$$

L'érosion supprime les particules plus petites que l'élément structurant et réduit la taille des objets.

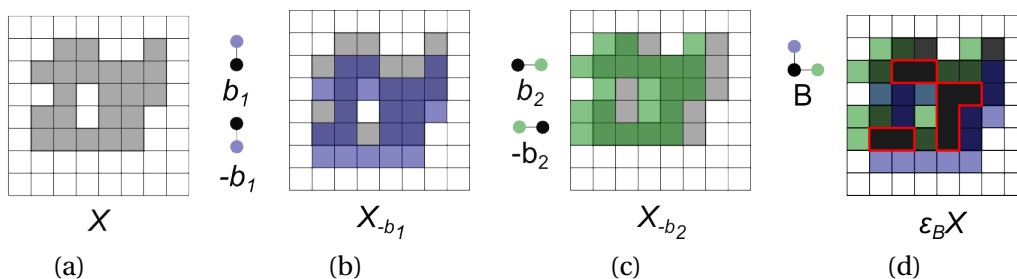


FIGURE 3.3 – Schéma du principe de l'érosion d'un ensemble X par un élément structurant $B = \{b_1, b_2\}$: (a) Image d'origine, (b) translaté par $-b_1$, (c) translaté par $-b_2$, (d) l'intersection des translatés (b) et (c) donnant le résultat de l'érosion $\varepsilon_B X$ en rouge

L'influence de l'élément structurant sur les opérations de dilatation et d'érosion est visible sur la figure 3.4.

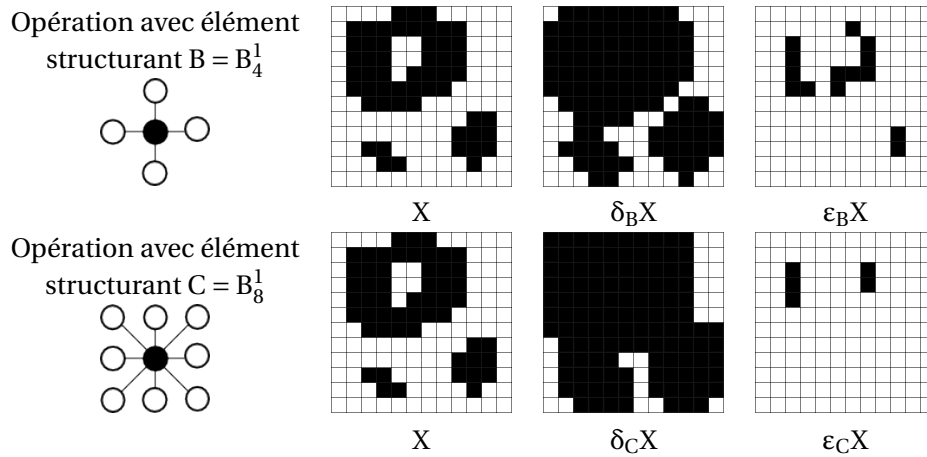


FIGURE 3.4 – Visualisation de l'influence du choix de l'élément structurant sur le résultat d'une dilatation et d'une érosion

Ouverture et fermeture

Une ouverture d'un sous-ensemble X par un élément structurant B , notée $\gamma_B X$, est une érosion suivie d'une dilatation. Cela revient à considérer l'union des éléments structurants inclus dans X .

$$\gamma_B X = \delta_B \epsilon_B X = \bigcup \{B_z; B_z \subset X\} \quad (3.6)$$

Cet opérateur permet de supprimer les isthmes et les éléments plus petits que l'élément structurant.

Une fermeture d'un sous-ensemble X par un élément structurant B , notée $\psi_B X$, est une dilatation suivie d'une érosion.

$$\psi_B X = \epsilon_B \delta_B X = \bigcup \{B_z; B_z \subset X^c\}^c \quad (3.7)$$

Cet opérateur permet de réduire la porosité dans les objets et de fermer les canaux entre deux objets proches.

3.2.3 Outils de mesure morphologique

Nous utilisons, dans notre étude, deux mesures pour caractériser des microstructures : la covariance spatiale et la granulométrie par ouverture.

La covariance spatiale C_X mesure la probabilité que deux points x et $x+h$ se trouvent dans le même sous-ensemble X .

$$C_X(h) = P \{x \in X, x+h \in X\} \quad (3.8)$$

Avec les outils de morphologie mathématique, la covariance spatiale est le résultat d'une érosion du sous-ensemble d'étude X par un élément structurant contenant x et $x+h$.

$$C_X(h) = \frac{\text{Mes}(\epsilon_h X)}{\text{Mes}(X \cup X^c)} \quad (3.9)$$

$\text{Mes}(X)$ est la mesure de Lebesgues. Le dénominateur est égal au nombre de pixels/voxels de l'image. $C_X(h)$, lorsque $h=0$, correspond à la fraction surfacique/volumique p de la phase X . Cette mesure permet également d'obtenir des informations sur la taille des objets du sous-ensemble. La première baisse importante de la covariance correspond, en effet, à l'extinction des plus petits objets car la probabilité que x et $x+h$ se trouvent dans le même grain diminue. Sur l'exemple de la figure 3.5(b), le diamètre des plus petits éléments de l'image (Fig. 3.5(a)) est d'environ 20 pixels.

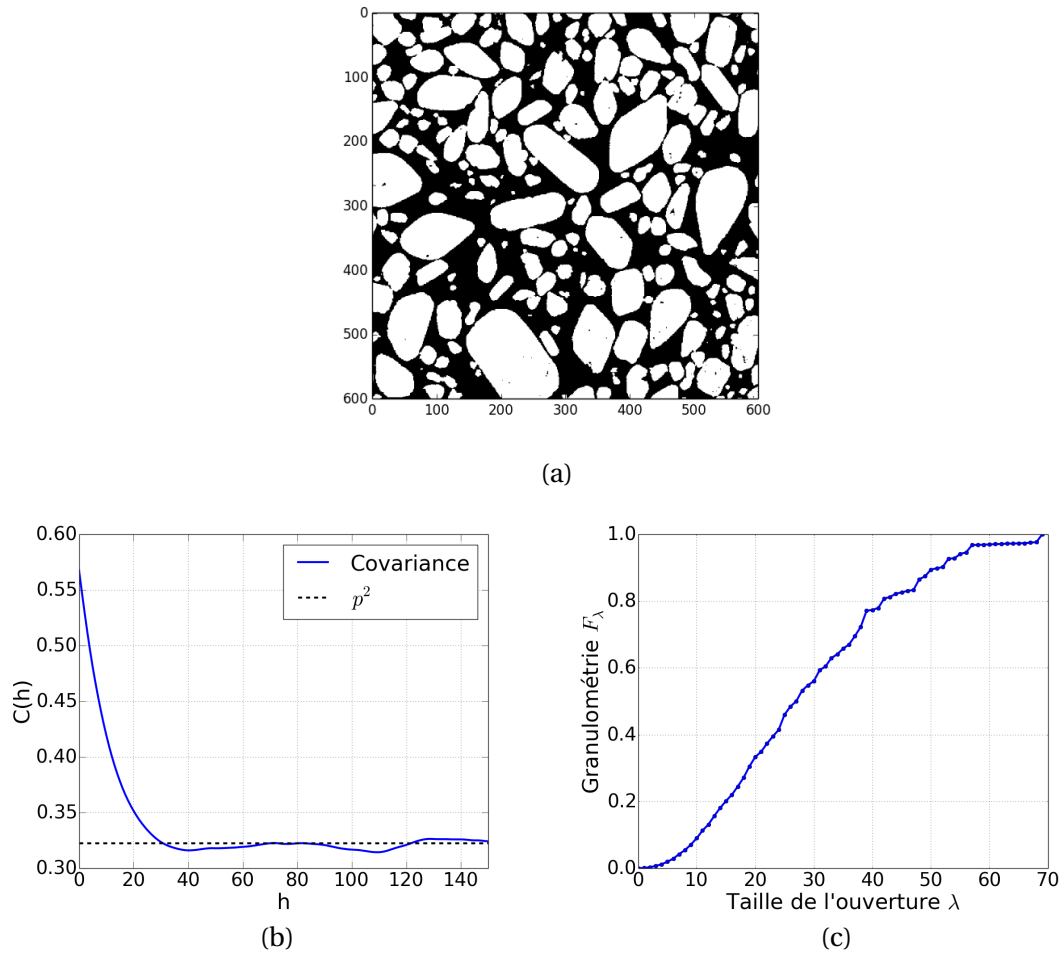


FIGURE 3.5 – (a) Image d'une microstructure granulaire seuillée, (b) sa covariance spatiale avec un élément structurant linéaire horizontal et (c) sa courbe granulométrique avec un élément structurant de type carré

Pour des valeurs importantes de h , il n'y a plus de corrélations (au sens de la covariance spatiale). La covariance tend alors vers une asymptote en p^2 [165]. La fraction surfacique de grains sur la figure 3.5a est de $p = 0,57$, l'asymptote atteinte sur la figure 3.5b est bien égale à $p^2 = 0,32$. La covariance spatiale étant une mesure directionnelle, elle permet également de contrôler l'anisotropie des microstructures. Une covariance spatiale identique dans plusieurs directions témoignera de la répartition isotrope des grains dans le matériau.

Le calcul de la courbe granulométrique est basé sur l'opération de morphologie mathématique d'ouverture. La taille de l'élément structurant, noté ici λ , est progressivement augmentée. À chaque itération, les éléments de taille inférieure à λ sont éliminés, puis la surface (ou volume) restante est calculée. On obtient ainsi une courbe granulométrique F_λ donnée par l'équation (3.10). Un exemple de courbe granulométrique par ouverture est visible sur la figure 3.5(c).

$$F_\lambda X = 1 - \frac{\text{Mes}(\gamma_\lambda X)}{\text{Mes}(X)} \quad (3.10)$$

3.3 Segmentation d'images

3.3.1 Généralités sur la segmentation

L'objectif de la segmentation est d'identifier et de distinguer les différents objets présents dans une image. Plusieurs approches sont disponibles pour segmenter des images. On trouve ainsi des

segmentations par seuillage, par détection des contours ou encore par fusion ou division de régions. Il existe également des méthodes de segmentation hybrides, qui ne rentrent dans aucune des trois catégories ci-dessus. La segmentation par ligne de partage des eaux, souvent utilisée pour segmenter des milieux granulaires ou poreux, en fait partie.

La manière la plus immédiate pour segmenter une image est d'y appliquer un seuillage. Le seuillage permet de définir plusieurs classes en fonction de l'intensité des pixels/voxels. Le seuil peut s'appliquer à l'ensemble de l'image ou bien localement, pour s'adapter aux variations d'intensité. Un grand nombre de méthodes de seuillage a été développé. Des revues de ces méthodes sont disponibles dans la littérature [166, 167].

Une autre stratégie de segmentation est la détection des contours, car ils définissent les frontières entre les objets de l'image.

La plupart des codes de segmentation ont une approche par régions (*region based segmentation*). Cette méthode consiste à partitionner l'image en régions, chaque région ayant des propriétés similaires (couleur, intensité, texture...). On distingue dans cette catégorie deux types de méthodologie : la division-fusion (*split and merge*) et la croissance de régions (*region growth*).

Dans le cas de la méthode par division-fusion, on dispose d'un partitionnement initial. Les régions sont ensuite divisées ou fusionnées selon certains critères, jusqu'à obtenir le partitionnement final [168].

Dans le cas de la méthode par croissance de régions, les régions grandissent à partir de marqueurs. Une région s'étend aux pixels/voxels adjacents s'ils sont suffisamment similaires, s'ils respectent le critère contrôlant la croissance des régions (similarité de l'intensité, de la texture, de la couleur...) [169]. La définition des marqueurs est donc une étape importante car le résultat final dépend du nombre et de la position des marqueurs.

La segmentation par ligne de partage des eaux est un outil de morphologie mathématique basé sur la croissance de régions et la détection des frontières [170, 171]. Cette méthode consiste à inonder des régions à partir de marqueurs. L'image gradient est associée à une carte de relief avec des vallées et des montagnes. La hauteur d'un point est liée à l'intensité du pixel. Les marqueurs sont labellisés pour permettre de différencier les bassins. Lors de l'inondation des régions à partir des marqueurs, dès lors qu'il y a mélange des eaux d'une vallée et de l'autre, une frontière est mise en place : c'est la ligne de partage des eaux. Cette méthode permet de dissocier les grains accolés. Encore une fois, la définition des marqueurs est un aspect important car la segmentation finale en dépend. En reprenant l'exemple d'un milieu granulaire, si aucun marqueur ne se trouve dans le grain, celui-ci n'apparaîtra pas dans la segmentation finale : on dit qu'il y a de la sous-segmentation. Si au contraire deux marqueurs se trouvent dans le même grain, celui-ci aura, dans la segmentation finale, deux labels : il y a de la sur-segmentation. Différentes méthodes de définition des marqueurs sont présentées dans le paragraphe 3.3.2.

3.3.2 Segmentation d'images expérimentales de milieux granulaires

La segmentation de milieux granulaires peut s'apparenter à celle de milieux poreux. Différentes approches ont été proposées pour segmenter ce type de matériaux. L'exploitation et la segmentation des images expérimentales de milieux poreux ou granulaires est souvent décomposée en deux ou trois étapes : un filtrage, un seuillage plus ou moins complexe et enfin une segmentation par ligne de partage des eaux s'il y a besoin d'individualiser chaque grain ou pore.

Filtrage des images

Ce paragraphe n'a pas pour but de décrire en détail les différents filtres existants, mais plutôt de faire un résumé concis des filtres utilisés pour débruiter des microtomographies. Une descrip-

tion plus complète est disponible dans la thèse [172] et l'article [173]. On s'attarde, néanmoins, sur le filtre bilatéral [174] utilisé pour notre étude.

Le filtrage peut avoir différents objectifs : réduire le bruit, améliorer les contrastes ou encore détecter des frontières. On s'intéresse ici aux filtres permettant de débruiter des images, et plus particulièrement de débruiter des microtomographies de milieux granulaires. Dans ce cadre précis, l'objectif du filtrage est de réduire le bruit sans perdre d'informations sur la géométrie des grains, donc sur le contour des objets.

Les microtomographies sont bruitées lorsque trop peu de photons atteignent le capteur ou lorsque l'échantillon bouge pendant l'acquisition. La numérisation ou, plus rarement, les algorithmes de reconstruction peuvent également contribuer à bruite les images [175]. Lorsque les images sont bruitées, il n'est pas possible de les exploiter correctement avant qu'elles ne soient filtrées. Cette première étape de traitement d'images conditionne la qualité des résultats de l'exploitation des images.

De nombreux filtres, plus ou moins complexes et plus ou moins adaptés pour débruiter des microtomographies existent. On distingue les filtres linéaires des filtres non linéaires. Les filtres sont présentés ici sur des images 2D, ils peuvent néanmoins être adaptés pour s'appliquer sur des images en 3D.

Le filtre linéaire consiste à convoluer l'image avec la réponse impulsionnelle du filtre qui est donc le noyau de convolution. Ce noyau, de taille inférieure à celle de l'image, s'y déplace afin d'atteindre et de modifier l'intensité de chaque pixel. La nouvelle valeur de l'intensité du pixel de coordonnées $x = (x_0, x_1)$ dépend donc de son voisinage. Elle est notée $I_f(x)$ et est donnée par :

$$I_f(x_0, x_1) = \sum_{i=-m}^m \sum_{j=-n}^n I(x_0 - i, x_1 - j)K(i, j), \quad (3.11)$$

K étant le noyau de convolution de dimension $(2m + 1, 2n + 1)$. Pour la plupart des filtres de convolution, le noyau est symétrique et son origine se trouve au centre. $I(x)$ est l'intensité du pixel d'origine. Pour conserver la même moyenne des intensités dans l'image avant et après le filtrage, la somme des coefficients du noyau doit être égale à 1. Les bords de l'image ont un traitement particulier. En effet, lorsque le centre du noyau se trouve sur un pixel au bord de l'image, une partie du noyau se trouve en dehors de l'image. Ce problème est résolu, ici, en dupliquant l'image en miroir au delà des bords.

L'effet du filtre dépend des coefficients du noyau. Dans le cas du filtre moyen, tous les coefficients sont égaux à $1/M$, avec M le nombre d'éléments du noyau. Cela revient à affecter au pixel à filtrer la valeur moyenne des pixels environnants. Pour un filtre gaussien, les coefficients du noyau sont donnés par la fonction gaussienne discrète. Le maximum de la fonction gaussienne se trouve au pixel central. Ces deux filtres permettent de réduire le bruit, mais entraînent également une perte d'informations car ils floutent les frontières entre les objets de l'image (Fig. 3.6(b)).

Parmi les filtres non linéaires, les filtres suivants peuvent être utilisés pour débruiter des microtomographies :

- médian,
- de minimisation de la variation totale [176],
- de diffusion anisotrope [177],
- de débruitage par patches [178, 179],
- bilatéral [174].

Le filtre médian consiste à remplacer la valeur du pixel au centre du noyau par la valeur médiane des pixels environnants. Ce filtre atténue les variations d'intensité (Fig. 3.6(c)).

Le filtre variationnel de Chambolle [176] est un filtre qui a pour objectif de minimiser la variation d'intensité totale de l'image. Le principe de ce filtre repose sur le fait que les pixels bruités prennent des valeurs extrêmes, ce qui augmente la variation totale de l'image. La perte d'information sur les frontières des objets est limitée par rapport au filtre moyen, gaussien et médian.

Le filtre de diffusion anisotrope [177] est un filtre qui s'adapte localement au contenu de l'image en évaluant le gradient d'intensité dans le voisinage du pixel à filtrer. Lorsque le gradient est important, le filtrage est plus faible car on se trouve en présence du contour d'un objet. Lorsque le gradient est faible, le filtrage est plus important car on se trouve dans une région homogène. Ce filtre permet donc de préserver les frontières des objets.

Le filtre de débruitage par patch (*non local means*) [178, 179] est un filtre basé sur le principe de la similarité de patches. Le pixel que l'on cherche à débruiter se trouve au centre d'un patch de taille s . L'idée est de chercher des patches d'intensité similaires dans toute l'image, ou dans une zone à une distance maximale r . La nouvelle valeur du pixel dépend de l'intensité des pixels au centre des patches similaires. Ce filtre est adapté pour débruiter des microtomographies car il permet de conserver l'information sur les frontières des objets (Fig. 3.6d). Il est néanmoins très coûteux, notamment lorsqu'il est appliqué à des images 3D.

Le filtre bilatéral [174] affecte au pixel à traiter la valeur moyenne pondérée des pixels environnants. Les pixels environnants sont pondérés par des coefficients fonction de la similarité et de la proximité par rapport au pixel à traiter :

$$I_f(x) = \frac{1}{Z(x)} \sum_{y \in \Omega_x} I(y) s(I(y), I(x)) c(y, x). \quad (3.12)$$

Ω_x est l'ensemble des pixels dans la fenêtre de filtrage. $Z(x)$ est le facteur de normalisation pour éviter que l'intensité globale de l'image soit plus élevée après le filtrage :

$$Z(x) = \sum_{y \in \Omega_x} s(I(y), I(x)) c(y, x). \quad (3.13)$$

Les fonctions s et c sont les fonctions jugeant de la similarité et de la proximité entre deux pixels. Ce sont des fonctions gaussiennes de la distance euclidienne entre les arguments.

$$s(x, y) = e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\|I(x) - I(y)\|_2}{\sigma_r} \right)^2} \quad (3.14)$$

$$c(x, y) = e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{\|x - y\|_2}{\sigma_d} \right)^2} \quad (3.15)$$

Les paramètres du filtre sont donc : sa taille (taille de l'ensemble Ω), la déviation standard de l'intensité (σ_r) et la déviation standard de la distance (σ_d). Une méthode de sélection automatique des paramètres de filtrage, développée par T. Chabardès [172], est décrite dans la section 3.3.3. Ce filtre permet de préserver les contours des objets (Fig. 3.6e). Moins coûteux que le filtre de débruitage par morceaux, c'est celui qui a été retenu pour filtrer nos microtomographies.

Seuillage

De nombreuses méthodes de seuillage ont été développées [166, 167] pour permettre de distinguer différentes phases (aussi appelés classes) dans une image. Nous présentons ici les seuils les plus utilisés pour traiter des microtomographies de milieux granulaires ou poreux.

Le premier type de seuil exploite la forme de l'histogramme. Un histogramme est une représentation graphique de la distribution des intensités des pixels (Fig. 3.7). L'axe des abscisses représente les valeurs prises par les pixels (entre 0 et 255 pour une image 8 bits), l'axe des ordonnées

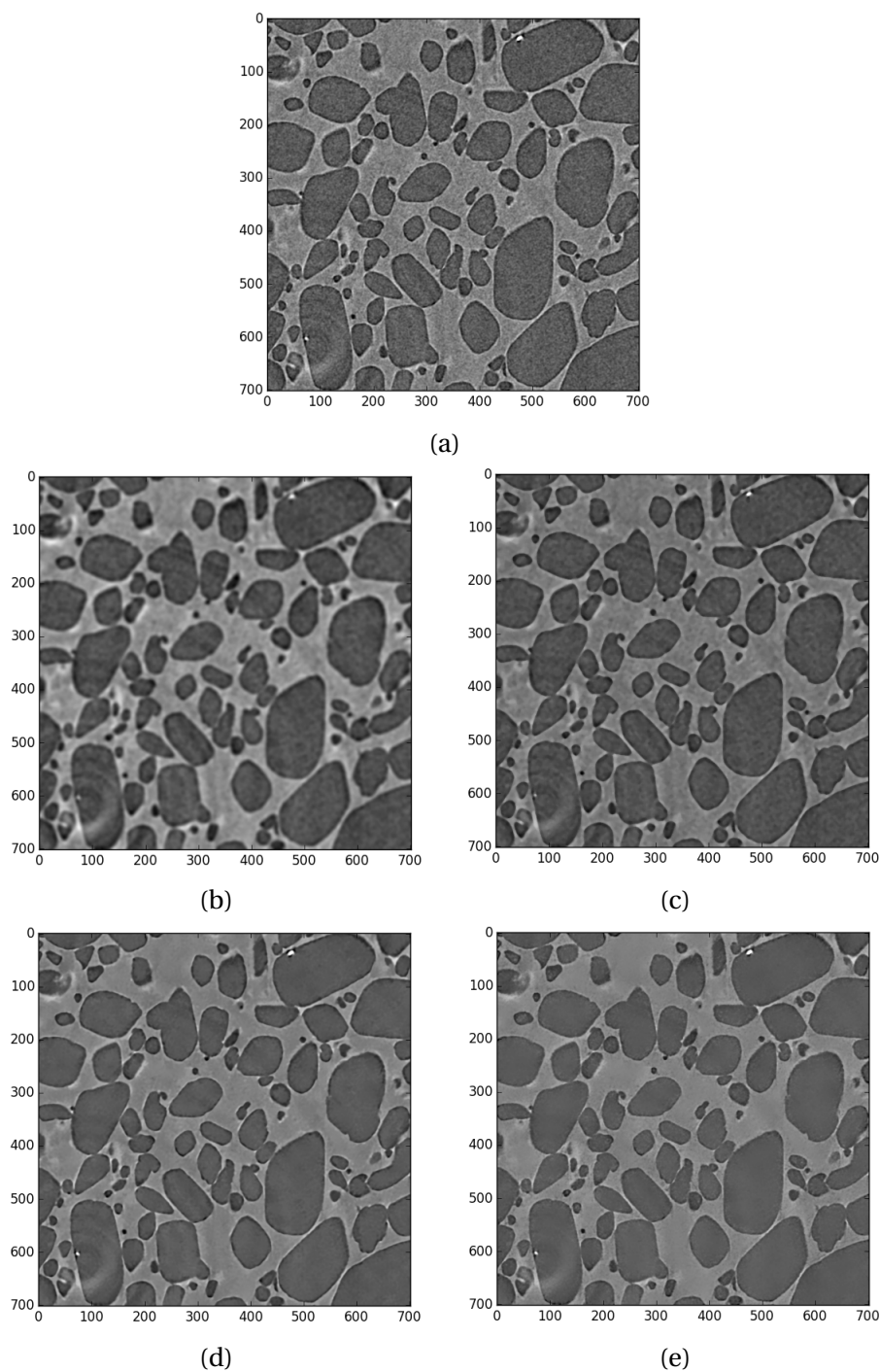


FIGURE 3.6 – Visualisation de l'effet de différents filtres sur (a) une image d'un milieu granulaire. Les filtres appliqués sont : (b) un filtre gaussien avec $\sigma = 3$, (c) un filtre médian de taille 7, (d) un filtre de débruitage par patches avec $s = 5$, $r = 10$ et le coefficient de similarité $h = 15$, (e) un filtre bilatéral avec $\sigma_r = 0.1$ et $\sigma_d = 10$

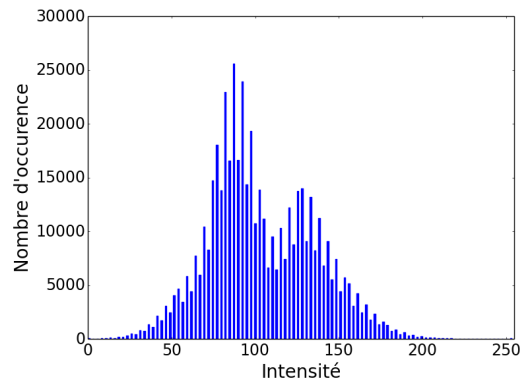


FIGURE 3.7 – Histogramme de l'image 3.6a

indique le nombre de fois qu'apparaît cette valeur dans l'image (Fig 3.9). Le lissage gaussien [180] permet de distinguer plusieurs phases dans une image en identifiant les maxima et les minima locaux de l'histogramme. Un maximum délimité par deux minima définit une phase. Ce seuil permet de distinguer plus de deux phases dans une image.

Le deuxième type de seuil comprend les seuils basés sur des méthodes de regroupement (*clustering method*). On trouve dans cette catégorie le seuil le plus répandu : le seuil d'Otsu [181]. Il permet de définir deux classes (ou phases) en minimisant la variance intra-classe. Dans le cadre d'une microstructure granulaire, par exemple, ce seuillage est particulièrement adapté pour faire la distinction entre le liant et les grains (Fig. 3.5(a)). Contrairement au seuil d'Otsu qui ne permet de distinguer que deux classes, le seuil K-means [182] permet d'identifier K classes. Cette méthode de seuillage est également adaptée pour binariser un milieu granulaire [167]. Le nombre de classes K est fixé par l'opérateur. Le centre de chaque classe est ensuite déterminé. Il correspond, par exemple, à la valeur moyenne des intensités des pixels dans la classe. Chaque pixel est ensuite réaffecté à la classe dont le centre (ou ici l'intensité) est le plus proche. Ces deux opérations sont itérées jusqu'à ce que les classes soient stables. Le seuillage par erreur minimale [183] consiste à considérer que l'histogramme est composé de deux gaussiennes, et à trouver la valeur seuil minimisant l'erreur de classification.

Le troisième type de seuil exploite l'entropie des signaux. On trouve dans cette catégorie le seuil Kapur [184]. La valeur du seuil Kapur correspond à la valeur permettant de maximiser la somme des entropies de chaque phase.

Enfin, la dernière catégorie de seuil est celle des seuils adaptatifs. Le seuil adaptatif très largement utilisé pour binariser des images de milieux poreux [185–188] est celui développé par Oh et Lindquist [189]. La binarisation de l'image s'effectue en deux étapes. La première étape consiste à déterminer deux seuils T0 et T1. Ils peuvent être choisis manuellement ou automatiquement avec un seuillage global. Les pixels ayant une intensité inférieure à T0 appartiennent à une phase tandis que les pixels ayant une intensité supérieure à T1 appartiennent à l'autre phase. La deuxième étape consiste à classifier les pixels restants, d'intensité comprise entre T0 et T1. Pour ce faire, une probabilité d'appartenance à une des deux phases est calculée pour chacun des pixels non classifiés. Cette probabilité est dépendante de la covariance spatiale.

Segmentation par ligne de partage des eaux

Certaines études nécessitent de distinguer les différents objets au sein d'une classe. Dans le cas d'un milieu granulaire, cela revient à identifier chaque grain par un label unique. Les matériaux à segmenter pouvant être très différents, il existe de nombreuses procédures de segmentation s'arti-

culant autour de l'algorithme de ligne de partage des eaux [190–195]. Ces procédures sont souvent spécifiques au matériau et ne sont pas transposables, sans adaptations, à d'autres matériaux.

Le résultat d'une segmentation par ligne de partage des eaux est dépendant de la position et du nombre de marqueurs (sous-section 3.3.1). Plusieurs méthodes de définition de marqueurs ont été proposées. La méthode la plus utilisée pour définir les marqueurs est d'utiliser les maxima locaux d'une carte de distance [172, 191, 195]. Dans le cas d'une microstructure granulaire, les maxima locaux de la carte de distance des grains par rapport au liant correspondent au centre de chaque grain. Cette carte de distance est ensuite inversée pour que, par analogie avec une carte de relief, les grains soient associés à des vallées plutôt qu'à des montagnes. L'algorithme de ligne de partage des eaux est ensuite appliqué sur cette carte de distance retravaillée, ou bien sur le gradient de l'image. Les marqueurs peuvent également être obtenus à la suite d'opérations de filtrage [193].

Pour s'affranchir de l'étape de la définition des marqueurs, une méthode appelée segmentation par ligne de partage des eaux stochastique (*stochastic watershed*) a été développée [196]. Le principe est de choisir des marqueurs de manière aléatoire, puis de segmenter l'image par ligne de partage des eaux. En fonction de la position des marqueurs, des frontières apparaissent ou disparaissent par rapport à la vérité terrain (la segmentation naturelle que l'on souhaite obtenir). Ce processus est répété plusieurs fois afin d'obtenir, pour chaque frontière, une probabilité d'apparition. Les frontières ayant une probabilité d'apparition importante sont, statistiquement, les frontières de la vérité terrain. La ligne de partage des eaux stochastique a notamment été utilisée sur un milieu granulaire par Faessel *et al* [192].

Pour finir, l'intelligence artificielle à également fait son apparition dans le domaine du traitement d'images avec des algorithmes d'apprentissage automatique (*machine learning*). L'utilisation des algorithmes d'apprentissage automatique en traitement d'images et en particulier dans la reconnaissance d'objets ont permis de grandes avancées techniques ces dernières années [197]. L'apprentissage automatique s'effectue classiquement en deux étapes : la première étape est l'entraînement du modèle sur une grande quantité de données, la deuxième étape est la mise en pratique du modèle sur de nouvelles données. Parmi les différents algorithmes d'apprentissage automatique utilisés en traitement d'images sur des microtomographies, on trouve par exemple l'algorithme des forêts aléatoire (*random forest*) utilisé pour la trinarisation (identification de trois phases) d'un matériau [194]. Des réseaux de neurones ont également été utilisés pour détecter des fissures dans des grains [198]. L'algorithme de ligne de partage des eaux a aussi été combiné à différentes architectures de réseaux de neurones pour segmenter des cellules de tissus biologiques [199]. L'utilisation des réseaux de neurones pour la segmentation de milieux granulaires est un thème de recherche actif. Nous verrons dans le chapitre 5 que les segmentations dans notre étude peuvent servir à constituer une base de données pour l'entraînement des algorithmes d'apprentissage automatique.

Cette étude bibliographique nous a permis de présenter les étapes les plus courantes pour segmenter un milieu granulaire : le filtrage suivi de la segmentation. La segmentation s'effectue avec un seuillage si l'on souhaite distinguer un nombre limité de phases ou par ligne de partage des eaux si l'on souhaite distinguer un nombre important d'objets. Cette étude révèle également la nécessité de choisir et d'adapter les paramètres pour chacune des étapes au matériau d'étude.

3.3.3 Segmentation avec SAMG

Le code de calcul SAMG est utilisé pour segmenter nos matériaux. Il s'agit d'un outil de segmentation automatique des matériaux granulaires développé au CMM par T. Chabardès [172]. SAMG s'appuie sur la bibliothèque open-source SMIL créée par Matthieu Faessel [192]. SAMG et SMIL sont utilisables avec le langage de programmation Python. La figure 3.8 est un schéma simplifié représentant les étapes de la chaîne de traitement de SAMG. On décrit brièvement chacune de ces étapes.

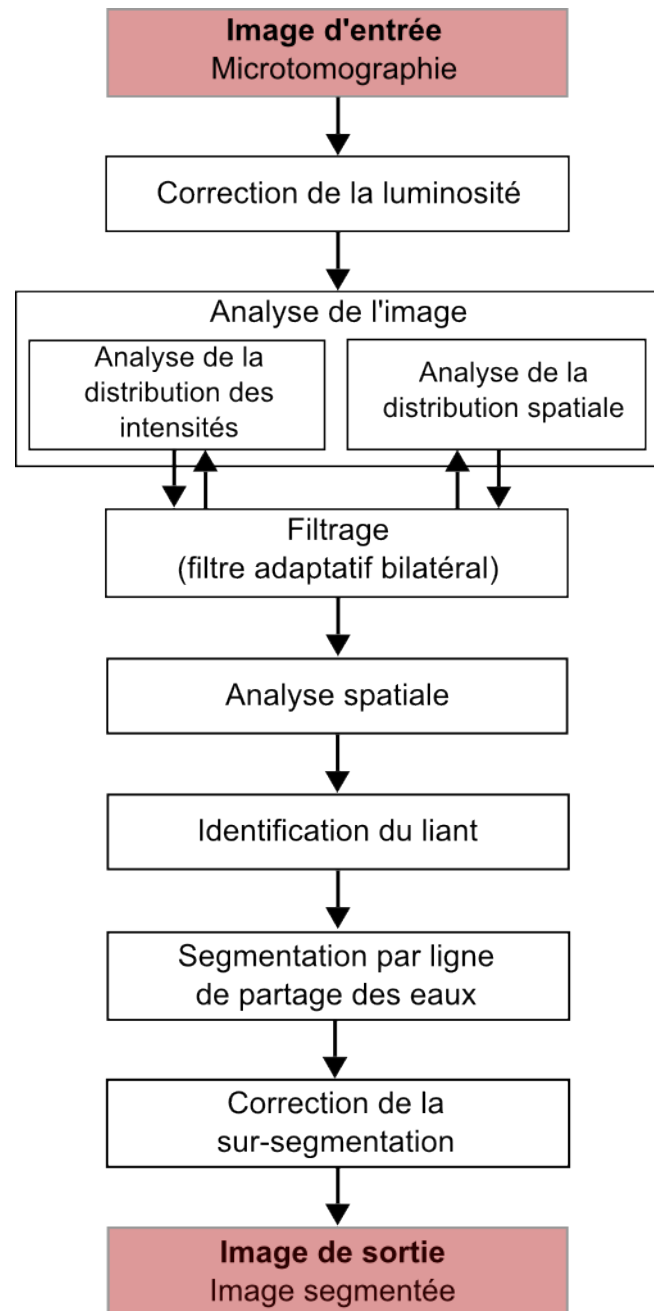


FIGURE 3.8 – Schéma simplifié des étapes de la chaîne de traitement de SAMG

Il arrive que l'éclairage ne soit pas uniforme au cours de l'acquisition. Ces **défauts d'éclairage** sont donc préalablement corrigés par un *top hat* [164]. Le *top hat* est un opérateur résiduel qui consiste à extraire les objets qui ont été éliminés par une ouverture. Sur une image en niveau de gris, il permet de compenser les changements de luminosité. Cette étape de correction n'est pas nécessaire sur nos microtomographies d'étude.

L'étape suivante est le **filtrage** de l'image. L'objectif est de supprimer le bruit sans perdre d'informations sur la géométrie des grains et sur les frontières. Les filtres présentés dans la section 3.3.2 sont disponibles dans SAMG. Dans le cas du filtre bilatéral [174], les paramètres σ_r et σ_d sont choisis automatiquement à partir des résultats de l'analyse d'image.

L'analyse de l'image est composée : d'une **analyse de la distribution des intensités** et d'une

analyse des distributions spatiales.

Pour analyser les intensités de l'image, l'histogramme est considéré comme un mélange de gaussiennes (Fig. 3.9). L'histogramme est divisé en plusieurs morceaux. Une seule gaussienne est prédominante dans chaque morceau. Le partitionnement de l'histogramme peut se faire, au choix, par seuillage d'Otsu [181], de Kapur [184], par erreur minimale [183] ou par lissage gaussien [180]. L'approche sélectionnée par défaut dans SAMG est une approche *Greedy* [200] qui consiste à décomposer successivement l'histogramme avec un ajout d'une nouvelle gaussienne à chaque itération. Si la nouvelle courbe gaussienne introduite n'est plus dominante sur un intervalle centré autour de sa valeur maximale, le processus est stoppé [172]. La modélisation de l'histogramme par plusieurs gaussiennes doit rester la plus proche possible de la distribution d'origine (Fig. 3.9). Chaque gaussienne définit une classe représentant une phase du matériau.

Pour analyser la répartition spatiale des objets dans l'espace, la covariance spatiale (Eq. (3.8)) de chaque classe est mesurée.

Dans SAMG, lors d'un filtrage bilatéral, le noyau spectral σ_r est déterminé à partir des classes définies par des gaussiennes lors de l'étape de l'analyse de la distribution des intensités. L'idée est d'adapter la taille du noyau en fonction de la distribution des intensités afin de conserver les informations sur les frontières. Les pixels appartenant à une autre classe ne doivent, pour ce faire, pas avoir de poids lors du filtrage d'un pixel d'une autre classe. La taille du noyau spectral doit donc être inférieure à la distance entre le pic de deux gaussiennes adjacentes décrivant deux classes différentes. Cette considération permet de définir des limites inférieures σ_r^- et supérieures σ_r^+ du noyau spectral (Fig. 3.9) :

$$\sigma_{r,i}^- = \sigma_i \quad (3.16)$$

$$\sigma_{r,i}^+ = \min(\mu_i - t_i^{\text{left}}, \mu_i - t_i^{\text{right}}) \quad (3.17)$$

μ_i et σ_i étant respectivement l'espérance et l'écart type de la gaussienne définissant la classe i , t_i^{left} et t_i^{right} les limites inférieures et supérieures de la classe i définies par la courbe gaussienne. La valeur finale du noyau spectral, pour chaque classe est donnée par :

$$\sigma_{r,i} = \frac{\sigma_{r,i}^- + \sigma_{r,i}^+}{2} \quad (3.18)$$

Le noyau spatial a moins d'influence, il est pris égal à la taille moyenne des objets de la classe définie à partir de la covariance spatiale. Le noyau spectral et le noyau spatial dépendent donc de la classe à laquelle appartient le pixel à filtrer.

Les phases d'analyse de l'image, soit la définition des classes à partir de l'histogramme et le calcul de la covariance spatiale, sont alternées avec la phase de filtrage jusqu'à obtenir un nombre de classes stable. Nous utilisons ce processus itératif avec choix automatique des paramètres du filtre bilatéral pour débruiter nos microtomographies.

Dans certains cas, il reste encore trop de classes détectées automatiquement. Une **analyse spatiale** est réalisée pour valider ou, au contraire, supprimer certaines classes. Ces classes supplémentaires sont souvent des conséquences d'artefacts d'acquisitions. On pourra trouver, par exemple, un effet de texture dans les grains c'est à dire trouver plusieurs classes pour un seul grain.

La suppression de ces classes indésirables peut s'effectuer de deux manière différentes. La première méthode se base sur l'algorithme de ligne de partage des eaux appliqué à l'image en niveau de gris du gradient morphologique du matériau. Le gradient morphologique est donné par la soustraction du résultat d'une dilatation et d'une érosion par le même élément structurant. L'image résultante est une image en niveau de gris. Les contours ont des valeurs d'intensité élevées tandis que les zones homogènes ont des intensités faibles. Un seuil est appliqué sur l'image du gradient permettant de conserver uniquement les zones homogènes. Ce masque est utilisé comme marqueur pour l'algorithme de ligne de partage des eaux sur l'image gradient. Cette méthode permet

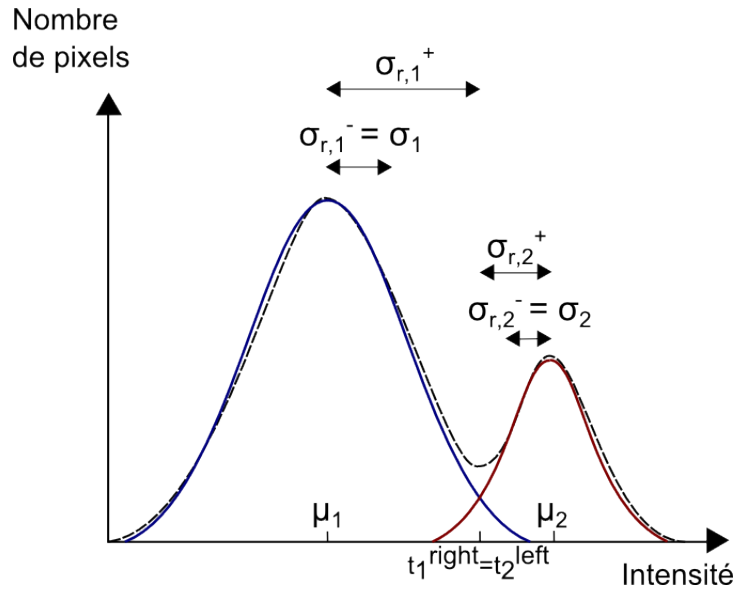


FIGURE 3.9 – Détermination de $\sigma_{r,i}^-$ et $\sigma_{r,i}^+$ pour le filtre bilatéral à partir des gaussiennes modélisant l'histogramme. L'histogramme apparaît en pointillé, les gaussiennes modélisant les classes en bleu et rouge.

de fusionner certaines classes. La deuxième méthode consiste à étudier la corrélation croisée entre les classes. La corrélation croisée évalue la similarité entre deux classes en mesurant la distance relative entre elles. Si les deux classes sont suffisamment similaires, elles sont fusionnées. Dans notre cas, l'étape de l'analyse spatiale n'est pas nécessaire car le nombre de classe était correctement détecté après le filtrage.

L'étape suivante est **l'identification du liant**. Cette identification est basée sur la percolation des différentes phases. On dit qu'une phase percole lorsqu'il existe un chemin dans la phase permettant de rejoindre chaque extrémité du matériau. Le liant sera donc plus susceptible de percoler que les autres phases. Il arrive quelques fois, en 3D et lorsque la concentration de particules est élevée, que plusieurs phases percolent. Pour pallier ce problème, un grand nombre de coupes de différentes tailles est choisi aléatoirement pour déterminer quelle classe percole le plus souvent et est donc la plus susceptible d'être le liant.

Il est maintenant possible de segmenter l'image avec l'algorithme de **ligne de partage des eaux** pour individualiser chaque grain. L'inverse de la carte de distance euclidienne entre le liant et les grains est déterminée (Fig. 3.11b)). Les grains sont alors assimilés à des vallées. Les marqueurs sont définis comme les minima locaux. L'inondation des vallées à partir des marqueurs avec l'algorithme *watershed* produit une première segmentation où de nombreux grains sont sur-segmentés (Fig. 3.11c).

La dernière étape est la **correction de la sur-segmentation** (Fig. 3.11d). Dans SAMG, un critère géométrique est utilisé [22]. Ce critère $r_{p,q}$ quantifie l'étranglement entre deux labels p et q adjacents à l'aide de la distance euclidienne. Les grandeurs v_p et v_q définissent les maxima de la carte de distance par rapport au liant dans les grains labellisés p et q (Eq. (3.19)). Ils correspondent à la valeur de la distance euclidienne par rapport au liant au barycentre des grains p et q .

$$v_p = \max(\text{EDT}(x) \mid x \in p) \quad (3.19)$$

La grandeur $v_{p,q}$ définit le maximum de la distance euclidienne par rapport au liant sur la frontière commune (notée $x \sim y$) qu'ont les grains labellisés p et q (Eq. (3.20)). Elle correspond donc à la valeur de la distance euclidienne par rapport au liant au barycentre de la frontière commune entre les grains p et q .

$$v_{p,q} = \max(\text{EDT}(x) \mid x \in p, y \in q, x \sim y) \quad (3.20)$$

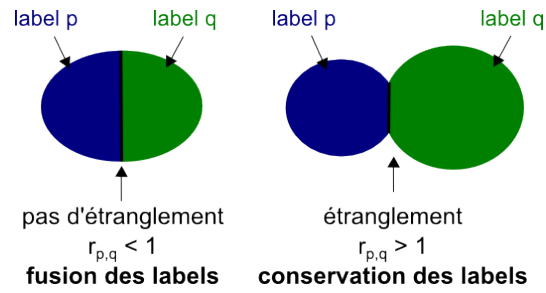


FIGURE 3.10 – Illustration de la correction de la sur-segmentation avec le critère d'étranglement

Le critère d'étranglement est donnée par :

$$r_{p,q} = \frac{\min(v_p, v_q)}{v_{p,q}}. \quad (3.21)$$

Pour deux grains accolés et correctement segmentés, la valeur $v_{p,q}$ est inférieure à celle de $\min(v_p, v_q)$ car il y a un étranglement entre les deux labels. Le critère $r_{p,q}$ est alors supérieur à 1 (Fig. 3.10). Si un grain est mal segmenté, en revanche, il n'y a pas d'étranglement entre les labels adjacents ($r_{p,q}$ environ égal ou supérieur à 1) qui sont alors fusionnés.

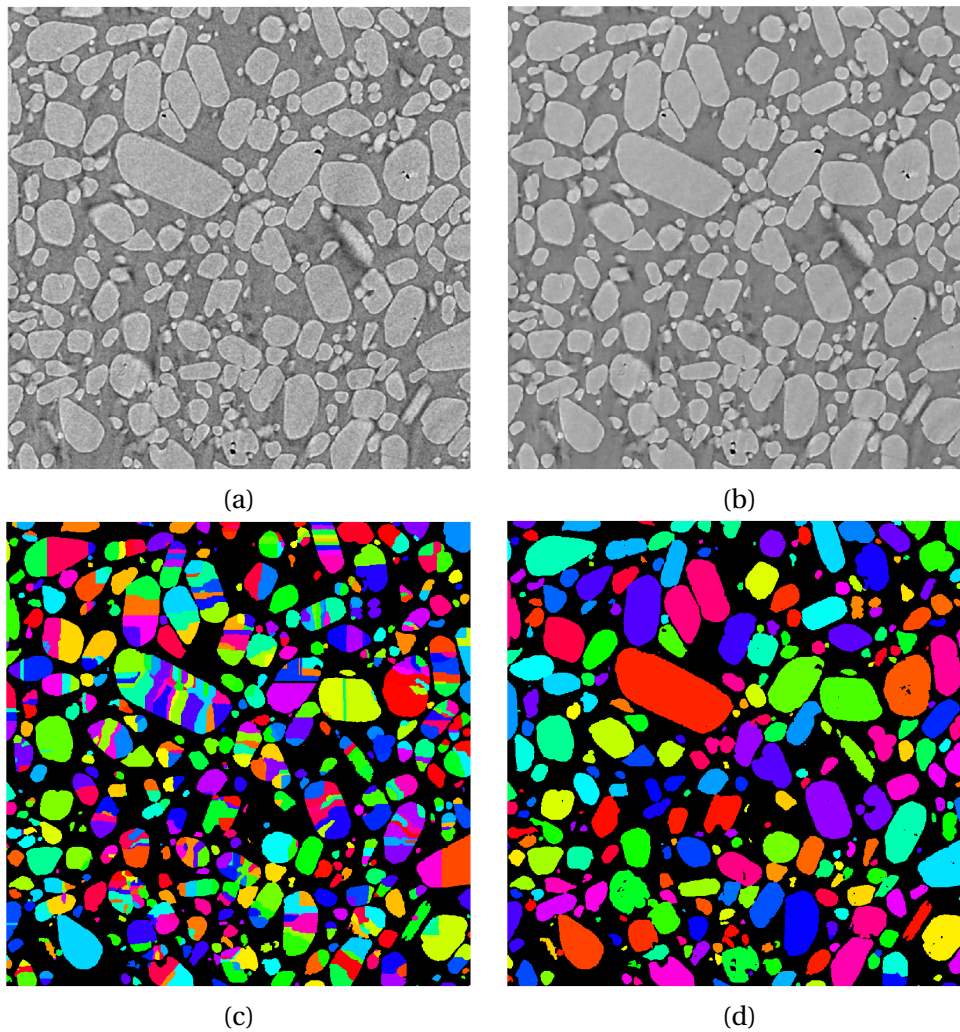


FIGURE 3.11 – Coupes extraites d'un volume microtomographié à différentes étapes du traitement de SAMG : (a) image originale, (b) image filtrée, (c) image sur-segmentée après la ligne de partage des eaux et (d) segmentation finale.

3.4 Conclusions de l'étude bibliographique

Cette première partie a introduit les bases et les notations de la physique des chocs et de la détonique (Chap. 1), des simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique (Chap. 2) et du traitement d'images (Chap. 3). Le chapitre 1 a montré l'importance des points chauds dans l'amorçage par choc des explosifs. En effet, ces derniers sont des paramètres d'entrées de nombreux modèles homogènes. Une meilleure compréhension de la formation des points chauds est donc nécessaire pour améliorer la précision et la prédictibilité de ces modèles de TCD. Les simulations dynamiques (Chap. 2), à l'échelle mésoscopique, permettent d'étudier la formation des points chauds car elles simulent directement l'interaction d'une onde de choc avec une microstructure donnée. L'implosion de pores et la formation de bandes de cisaillement semblent être les mécanismes les plus efficaces pour former des points chauds critiques. Néanmoins, les résultats des simulations numériques sont fortement dépendants de la modélisation des matériaux. Nous allons travailler lors de cette thèse sur trois matériaux de même composition, mais de microstructures différentes. En travaillant par comparaison, et en modélisant les trois matériaux de la même manière, nous serons capables d'identifier quels paramètres microstructuraux influencent la formation des points chauds. La caractérisation des trois microstructures est effectuée à partir de microtomographies. Le code de segmentation SAMG, présenté ci-dessus, est utilisé pour segmenter les microtomographies des trois matériaux énergétiques. La segmentation et la caractérisation de nos matériaux d'étude sont présentées dans les chapitres 4, 5 et 6 suivant.

Deuxième partie

Caractérisation fine de la microstructure des matériaux énergétiques d'étude

Chapitre 4

Présentation des matériaux énergétiques d'étude

Les échantillons étudiés au cours de la thèse ont été fabriqués à l'ISL. Ils sont composés de 70 % en masse d'hexogène et de 30 % de cire. Ce chapitre présente, dans un premier temps, les propriétés physico-chimiques et mécaniques de ces deux constituants. Dans un second temps, les particularités relatives aux trois matériaux sont présentées : leur processus de fabrication, leur modélisation macroscopique ainsi que leur sensibilité au choc soutenu. L'objectif de ce chapitre est de présenter les différentes microstructures des matériaux d'étude, ainsi que les propriétés physico-chimiques et mécaniques de ses constituants.

4.1 Propriétés de l'hexogène (RDX)

Le RDX, sous forme granulaire, est utilisé comme composant explosif principal dans les munitions, souvent en association avec un liant inerte (plastique) ou énergétique (comme le TNT qui est un explosif fusible). Le RDX comprimé à une densité de 1,767 a une vitesse de détonation de 8639 m/s et une pression de détonation de 33,8 GPa [12]. En comparaison, la vitesse et la pression de détonation du TNT sont de 6942 m/s et de 18,9 GPa pour une densité égale à 1,637 (Tab. 1.1). Le RDX est donc un explosif puissant.

4.1.1 Propriétés physico-chimiques du RDX

Cristallographie

L'hexogène, aussi appelé RDX ou encore 1,3,5-trinitro-1,3,5-triazacyclohexane, de formule brute $C_3H_6N_6O_6$, est un explosif secondaire appartenant à la famille des nitramines cycliques (Fig 4.1).

Le RDX a cinq phases polymorphiques, deux à température ambiante (phases α et β) et trois à des pression ou température élevée (phases γ , δ et ϵ) [201]. Á température ambiante, seule la phase α est stable. La phase γ est observée pour des pressions supérieures à 3,8 GPa (Fig. 4.2). Nous ne considérons dans notre étude que ces deux phases. Á température ambiante, le RDX se présente sous la forme de cristaux blancs. Le RDX en phase α et γ a un arrangement cristallin orthorhombique. Les paramètres de maille se trouvent dans le tableau 4.1.

TABEAU 4.1 – Paramètres de maille du RDX [20]

Paramètres de maille	α RDX [20] (en nm)	γ RDX [11] (en nm)
a	1,3182	1,2565
b	1,1574	1,0923
c	1,0709	0,9477

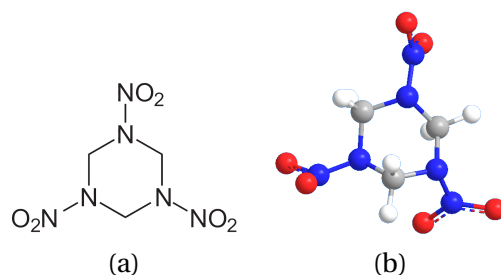


FIGURE 4.1 – Représentation d'une molécule de RDX : (a) formule topologique, (b) visualisation en 3D

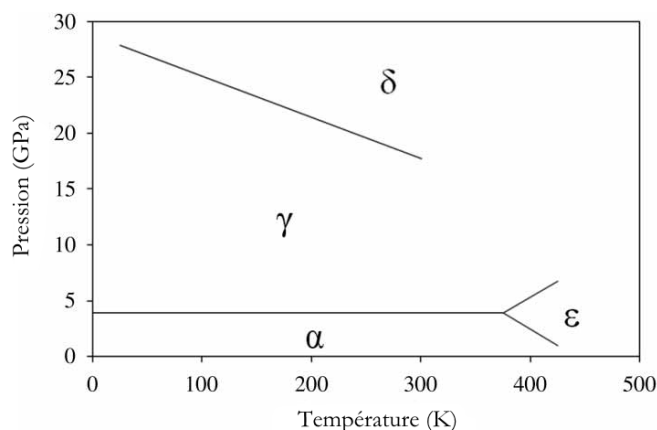


FIGURE 4.2 – Diagramme de phase du RDX. Diagramme provenant de l'article [8]

Dilatation thermique

L'étude de la dilatation thermique revient à mesurer l'expansion d'un corps en fonction de la température à pression constante. Le RDX n'ayant pas une organisation cristalline cubique, la dilatation thermique est anisotrope, elle n'est pas la même dans toutes les directions. Pour un matériau orthorhombique, le tenseur de dilatation thermique est composé des 3 coefficients diagonaux. Les coefficients α_{11} , α_{22} et α_{33} décrivent la dilatation le long des directions cristallographiques a, b et c. Un résumé des coefficients de dilatation thermique disponibles dans la littérature pour le α RDX est présenté dans le tableau 4.2. La plage de validité des coefficients est également indiquée. Les coefficients de dilatation thermique obtenus expérimentalement sont similaires entre les trois études alors que ceux obtenus numériquement sont plus faibles pour α_{22} et α_{33} . On calcule jusqu'à 71 % d'écart relatif pour α_{33} entre les valeurs obtenues par Sun *et al.* [202] et Sewell *et al.* [203]).

TABLEAU 4.2 – Résumé des coefficients de dilatation thermique du RDX disponibles dans la littérature

Références	Expérimental			Numérique	
	[204]	[205]	[202]	[203]	[206]
Température (K)	295	293	303-443	295	250-330
α_{11} ($1 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$)	2,61	2,4	3,07	3,02	3,34
α_{22} ($1 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$)	8,68	8,6	8,28	4,42	6,32
α_{33} ($1 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$)	7,86	8,1	9,19	5,36	6,36

Autres caractéristiques

Les autres caractéristiques physico-chimiques du RDX sont regroupées dans le tableau 4.3.

TABLEAU 4.3 – Propriétés de l'hexogène

Propriétés	Notation	Valeurs	Unités	Référence
Masse volumique	ρ	1,806	g/cm ³	[207]
Température de décomposition	T_d	213	°C	[1]
Température de fusion	T_f	204	°C	[207]
Enthalpie de formation	ΔH_f	318	kJ/kg	[1]
Vitesse de détonation	D	8639 ($\rho = 1,767$)	m/s	[207]
Capacité calorifique à volume constant	c_v	1000,39	kJ/kg/K	[41]
Coefficient de Gruneisen	Γ	1,05	-	[41]
Module de compressibilité isotherme	K_T	10,0	GPa	[8]
Module de compressibilité isentropique	K_S	10,6	GPa	[41]
Gap test (LANL standard Scale Gap Test)		6,17 ($\rho = 1,750$)	mm	[207]
Sensibilité au frottement (BAM test)		120	N	[1]
Sensibilité à l'impact (Mouton de choc 12)		22	cm	[207]

TABLEAU 4.4 – Résumé des modules élastiques en GPa du RDX obtenus par différents moyens expérimentaux dans la littérature

Références	Résonance à ultrason		Spectroscopie de Brillouin		ISTS	Simulations numériques		
	[205]	[208]	[209]	[210]	[211]	[212]	[213]	[206]
C_{11} (GPa)	24,98	25,6	36,67	25,8	25,15	29,74	13,79	29,5
C_{22} (GPa)	19,58	21,3	25,67	20,1	20,08	22,60	9,14	28,1
C_{33} (GPa)	17,89	19,0	21,64	18,9	18,21	22,22	10,80	29,6
C_{44} (GPa)	5,15	5,38	11,99	5,3	5,26	5,53	4,78	3,8
C_{55} (GPa)	4,06	4,27	2,72	4,2	4,06	4,49	1,54	6,5
C_{66} (GPa)	6,90	7,27	7,68	7,2	7,10	7,40	3,28	10,3
C_{12} (GPa)	8,19	8,67	1,38	8,3	8,23	9,22	5,41	14,0
C_{13} (GPa)	5,80	5,72	1,67	6,4	5,94	5,96	4,04	8,6
C_{23} (GPa)	5,90	6,40	9,17	6,4	5,94	4,65	4,52	10,9

4.1.2 Propriétés mécaniques du RDX

L'hexogène a pendant longtemps été étudié uniquement du point de vue de la détonique. L'étude du comportement mécanique est plus récente. Les tenseurs élastiques du RDX et de la cire sont nécessaires pour réaliser les simulations quasistatiques thermoélastiques que nous avons réalisées. Le RDX ayant une structure orthorhombique et une symétrie orthotrope (trois plans de symétrie orthogonaux entre eux), il faut déterminer 9 modules élastiques (C_{11} , C_{22} , C_{33} , C_{44} , C_{55} , C_{66} , C_{12} , C_{13} , C_{23}). Ces coefficients ont été déterminés de manière expérimentale et numérique.

Les 9 coefficients du tenseur élastique du RDX ont été déterminés expérimentalement de trois manières différentes : par résonance à ultrasons, spectroscopie de Brillouin et par ISTS (Impulsive Stimulated Thermal Scattering) (Tab. 4.4). Haussühl [205] et Schwarz *et al.* [208] ont calculé les coefficients du tenseur élastique par résonance à ultrasons. Les résultats sont similaires avec un écart relatif entre les valeurs de 8,6% au maximum (C_{22}) et de 1,4 % au minimum (C_{13}). Les résultats publiés par Haycraft *et al.* [209] et Bolme *et al.* [210] sont obtenus par spectroscopie de Brillouin et présentent davantage d'écart relatifs. En effet, les modules élastiques C_{11} , C_{22} , C_{33} sont plus élevés dans la première étude tandis que les coefficients C_{12} et C_{13} sont bien plus faibles. Les incertitudes ne permettent pas d'expliquer de tels écarts. Néanmoins, les valeurs des modules élastiques calculés dans la deuxième étude sont similaires à celles obtenus par résonance à ultrasons. Enfin, les résultats obtenus par ISTS sont cohérents avec ceux des autres méthodes expérimentales [211].

Des caractérisations par nano-indentation ont également été réalisées [214–216]. Hudson *et al.* [215] comparent les propriétés mécaniques de différents types de RDX avec plus ou moins de défauts intra-granulaires. Les résultats de cette étude démontrent une corrélation entre la qualité de l'hexogène et les propriétés mécaniques : les modules élastiques sont plus élevés pour les lots de RDX comprenant le moins de défauts. En effet, un module d'Young d'environ 16 GPa pour les types de RDX contenant peu de défauts intra-granulaires et d'environ 13,5 GPa pour les types de RDX contenant le plus de défauts intra-granulaires sont calculés, ce qui représente une variation de plus de 15 % des propriétés élastiques. Ramos *et al.* [214] et, plus tard, Weingarten *et al.* [216] mesurent par nano-indentation des modules réduits sur des faces spécifiques du cristal (210), (001) et obtiennent des résultats similaires. Nous ne prendrons pas en compte la variabilité des propriétés mécaniques des différents types de RDX dans notre étude.

Les études numériques s'appuient sur la dynamique moléculaire. Sewell *et al.* [203] et Fan *et al.* [212] calculent les modules d'Young et de cisaillement ainsi que les coefficients de Poisson. Les coefficients du tenseur élastique, pour ces deux études, sont cohérents avec ceux obtenus expérimentalement. Miaomiao Li *et al.* [213] utilisent la dynamique moléculaire pour étudier les propriétés de formulations RDX/PAG (PolyAzoture de Glycidyle) avec différentes concentrations de PAG. Mais les résultats obtenus avec 0 % de PAG sont éloignés de ceux obtenus expérimentalement. Enfin, le tenseur élastique est également calculé par dynamique moléculaire par Pal *et al.* [206]. Les résultats sont différents des autres études numériques car les coefficients sont calculés pour une température de 0 K, au lieu de 298 K.

Les simulations de déformation quasistatiques thermoélastiques présentées aux chapitres 6 et 7 ont été réalisées en utilisant les données obtenues par spectroscopie de Brillouin fournies par Bolme *et al.* [210].

4.1.3 Modélisation du comportement du RDX sous choc

Nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il fallait disposer d'une équation d'état ainsi que d'une loi de comportement pour modéliser un matériau solide sous choc. L'équation d'état peut se construire à partir des données de compression obtenues par :

- choc;
- compression isotherme;
- compression isentropique.

Un résumé des données de compression disponibles dans la littérature pour le RDX a été réalisé dans la thèse de V. Chuzeville [41]. Les quatre jeux de données de compression isotherme [8–11] sont cohérents entre eux. Le changement de phase du α RDX en γ RDX est à chaque fois visible autour de 3,8 GPa (Fig. 4.3). Deux jeux de données obtenus par choc, cohérents entre eux, sont disponibles [12, 13]. Les données sous choc sont valables pour des pressions supérieures à 7 GPa. Les coefficients de la polaire de choc (Tab. 4.5) utilisés pour de bas niveau de pression proviennent des données de compressibilité isotherme de Olinger *et al.* [9]. En prolongeant cette polaire de choc, on obtient des écarts de près de 20 % avec les points expérimentaux (Fig. 4.3). Chuzeville [41] a construit une polaire de choc dite « universelle » à partir de l'ensemble des données de la littérature. Nous utiliserons ces coefficients de polaire de choc au cours de notre étude pour déterminer les propriétés sous choc de nos matériaux hétérogènes (section 4.3.2).

Nous utilisons pour les simulations dynamiques une équation d'état de Birch-Murnaghan (voir section 2.2). Cette équation d'état permet d'accéder à la température. La phase α du RDX n'est présente qu'à pression et température ambiante, nous modélisons donc plutôt la phase du γ RDX qui est la phase présente sous choc. Les coefficients de l'équation d'état proviennent des données expérimentales de compression isotherme fournies par Oswald *et al.* [8] et sont résumés

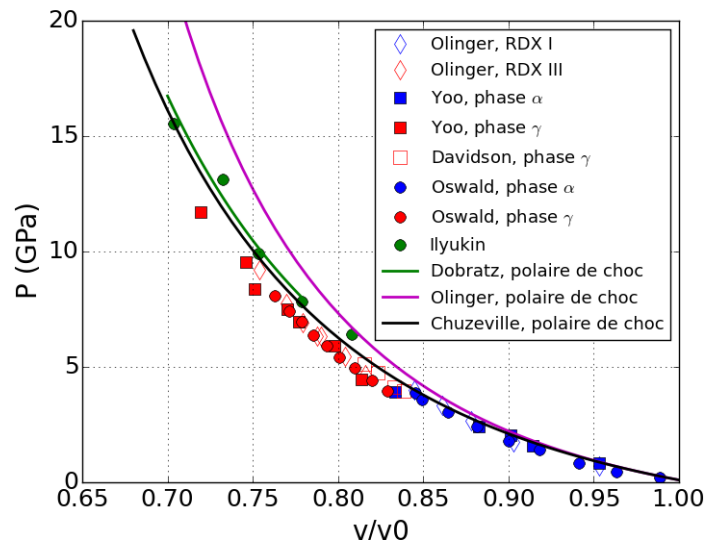


FIGURE 4.3 – Courbes de compression du RDX. Les données de Olinger [9], Yoo [10], Davidson [11] et Oswald [8] sont obtenues par compression isotherme. Les données provenant de Dobratz [12] et de Ilyukhin [13] sont obtenues par choc.

TABEAU 4.5 – Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ du RDX

Source	Masse volumique (g/cm^3)	c_0 (m/s)	s
Dobratz [12]	1,800	2870	1,610
Olinger <i>et al.</i> [9]	1,799	2780	1,900
Chuzeville [41]	1,806	2792	1,622

dans le tableau (Tab. 4.6).

Le comportement mécanique d'un explosif sous choc est plus complexe à caractériser du fait de la taille des cristaux et de leur capacité à détoner. Les cristaux de RDX étant orthorhombiques, la caractérisation de la réponse mécanique d'un cristal doit être effectuée dans différents plans. La réponse à la déformation d'un cristal de RDX, à différentes orientations, a été observée expérimentalement dans un régime quasi-statique par nano-indentation [214, 216, 217]. Des impacts de plaques sur un seul cristal de RDX ont également été réalisés pour accéder au comportement mécanique à de grandes vitesses de déformation [218]. La pression exercée sur le cristal de RDX reste néanmoins inférieure à 3,8 GPa pour éviter le changement de phase du α RDX en γ RDX. Ces études permettent d'identifier les plans de glissement du α RDX.

Des modèles élasto-plastiques anisotropes non linéaires décrivant le comportement du matériau ont été développés à partir des résultats expérimentaux disponibles sur le RDX. Clayton et Becker [219] développent un modèle élasto-plastique anisotrope pour un cristal de α RDX. Ce modèle comprend les six plans de glissement détectés expérimentalement [214]. Il n'est valable que pour des déformations quasistatiques. Des simulations de nano-indentation sont réalisées et comparées avec les données expérimentales [214] pour valider le modèle. De bon résultats sont obtenus selon certains plans, tandis que des écarts non négligeables sont observés dans d'autres plans. Les chercheurs De *et al.* [220] proposent un modèle anisotrope thermomécanique pour modéliser la réponse d'un cristal de α RDX au passage d'un choc. Les dislocations dans le cristal se font seulement selon trois plans de glissement. Un nouveau modèle avec 13 plans de glissement a donc été développé par Luscher *et al.* [221]. Finalement, le modèle le plus complet est présenté par Addessio *et al.* [222]. Ce modèle thermomécanique anisotrope prend également en compte 13 plans de glissement et modélise en plus le changement de phase du α RDX en γ RDX.

TABLEAU 4.6 – Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser le RDX dans les simulations dynamiques

Équation d'état : Birch-Murnaghan		
Grandeur	Valeur	Unité
ρ_0	1,806	kg/m ³
Γ	1,05	-
c_ν	1000,39	kJ/kg/K
K_0	8,73	GPa
K'_0	11,26	-
Loi de comportement : Élasto-plastique parfaite		
Grandeur	Valeur	Unité
G	6,08	GPa
σ_y	0,44	GPa

Dans notre étude, nous sommes limités par les outils de calcul dont nous disposons. En effet, le code de calcul que nous utilisons pour modéliser les chocs (code interne CEA appelé OURA-NOS) est initialement destiné aux calculs hydro eulérien de matériaux en grandes déformations. Il n'est actuellement pas en mesure de prendre en compte le comportement anisotrope des grains de RDX. Nous choisissons pour notre étude une loi de comportement élasto-plastique parfaite, à défaut d'une loi visco-élasto-plastique anisotrope. La limite élastique σ_y est une moyenne de celle obtenue selon les trois plans cristallographiques (210), (100) et (111) de l'expérience d'impact de plaque sur des monocristaux de RDX réalisée par Hooks *et al.* [218]. Le module de cisaillement G_T est calculé par Fan *et al.* à partir des coefficients du tenseur élastique, obtenus expérimentalement par spectroscopie de Brillouin [210]. Les valeurs se trouvent dans le tableau 4.6.

4.2 Propriétés de la cire

Nous avons travaillé sur des matériaux contenant deux cires différentes. Les matériaux dont la sensibilité au choc a été mesurée à l'ISL (voir sous-section 4.3.3) et les matériaux microtomographiés (chapitre 5) sont composés d'une cire LICOWAX. Cette cire n'étant plus produite, elle a été remplacée par une cire analogue de type DICERA pour les essais de récupération (chapitre 9).

4.2.1 Propriétés physico-chimiques de la cire

Nous disposons de moins d'informations sur ces deux cires. Différentes propriétés ont tout de même été mesurées dans les laboratoires de caractérisation de l'ISL et du CEA Gramat :

- la masse volumique;
- le coefficient de dilatation thermique volumique;
- la température de fusion;
- la variation de la capacité calorifique à pression constante de la cire liquide en fonction de la température.

La masse volumique a été mesurée à l'ISL et est identique pour les deux cires ($\rho = 0,986 \text{ g/cm}^3$). La température de fusion ainsi que la variation de la capacité calorifique à pression constante, ont été mesurées au CEA Gramat avec un calorimètre Calvet C80. La température de fusion de 344,5 K, ou 70,85 °C, est identique pour les deux cires (Fig. 4.4). Une régression linéaire permet d'obtenir la variation de la capacité calorifique en fonction de la température de la cire liquide (Tab. 4.7).

Le module de compressibilité isentropique est lié à la célérité du son et à la masse volumique (Eq. (4.1)). La célérité du son dans la cire LICOWAX et de la cire DICERA sont obtenus suite à

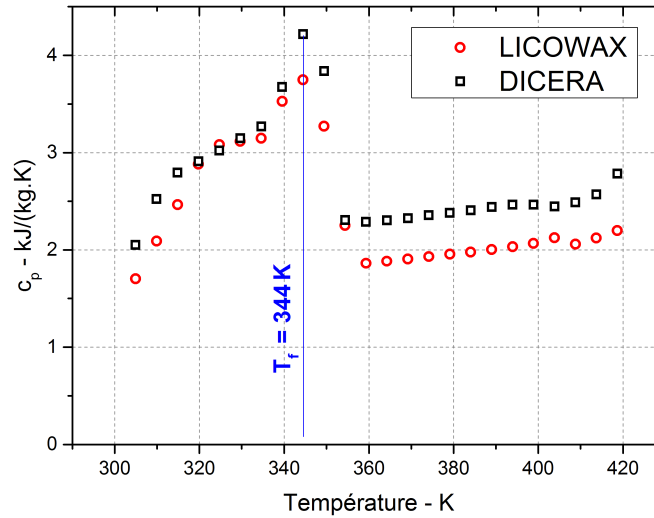


FIGURE 4.4 – Mesure de la capacité calorifique en fonction de la température des cires LICOWAX et DICERA

des essais d'impact. Les coefficients sont identiques pour les deux cires. A partir de ces résultats, on détermine le module de compressibilité isentropique (Eq. (4.1)). Le module de compressibilité isotherme est habituellement calculé à partir des données de compression isotherme. N'ayant pas accès à ces données, nous avons choisi de prendre un module de compressibilité isotherme égal au module de compressibilité isentropique ($K_S = K_T$).

$$K_S = \rho_0 c_0^2 \quad (4.1)$$

Sous cette hypothèse, la capacité calorifique et le coefficient de Gruneisen sont calculés. La capacité calorifique à volume constant est évaluée avec la relation de Mayer (Eq. (4.3)). Le coefficient de Gruneisen est calculé avec l'équation (4.2). Une capacité calorifique à pression constante de $c_p = 2000 \text{ J/kg.K}$ et un coefficient de dilatation thermique volumique $\alpha = 30,710^{-5} \text{ K}^{-1}$ sont utilisés pour les calculs. Le c_p est choisi à partir des données expérimentales (Fig. 4.4) de la cire DICERA à 300 K. Le coefficient de dilatation thermique α utilisé est celui d'une paraffine disponible dans la littérature [223]. Ce choix a été confirmé par des mesures au dilatomètre réalisées à l'ISL sur la cire DICERA dans le cadre de la thèse (Fig. 4.5). Le coefficient de dilatation thermique volumique a été mesuré entre -60 et 30 °C sur les deux cires et donne des résultats quasiment identiques. Le coefficient de dilatation volumique, à 30 °C est environ égal à $30,710^{-5} \text{ K}^{-1}$. Les résultats sont consignés dans le tableau 4.7.

$$\Gamma = \frac{\alpha K_T v}{c_v} \quad (4.2)$$

$$c_p - c_v = T v \alpha^2 K_T \quad (4.3)$$

4.2.2 Propriétés mécaniques de la cire

Nous utilisons les propriétés mécaniques trouvées dans la littérature pour la paraffine. Le module d'Young de la paraffine est pris à $55,7 \text{ MPa}$ et sa limite élastique à 6 MPa [224]. Un coefficient de Poisson de $0,37$ est choisi [225]. La paraffine est considérée comme un matériau élastique isotrope, sa viscosité n'est pas prise en compte. Le module d'élasticité isostatique $K = 29,5 \text{ MPa}$ et le module de cisaillement $G = 20,3 \text{ MPa}$ sont alors calculés à partir du coefficient de Poisson et du module d'Young (Eq. 4.4 et Eq. 4.5 respectivement). Le module d'élasticité isostatique (*bulk modulus* en anglais) correspond au module de compressibilité isotherme de la thermodynamique.

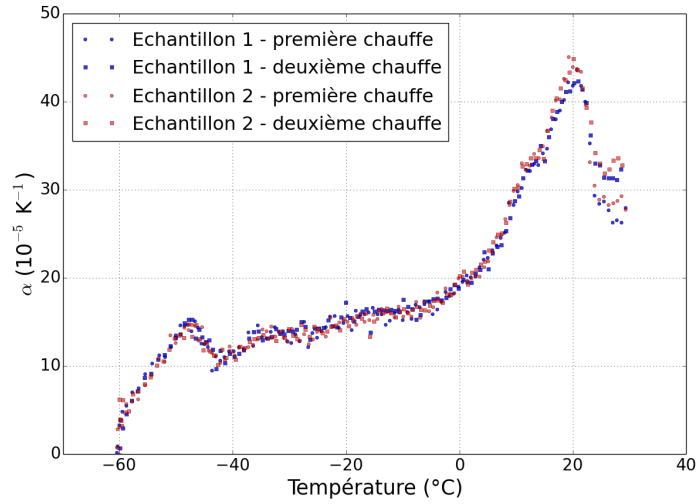


FIGURE 4.5 – Coefficient de dilatation thermique volumique de la cire DICERA mesuré au dilatomètre

TABEAU 4.7 – Propriétés de la cire

Propriétés	Notation	Valeurs	Unités	Référence
Masse volumique	ρ	0,986	g/cm^3	Mesure ISL
Température de fusion	T_f	70,85	$^{\circ}\text{C}$	Mesure CEA
Capacité calorifique à pression constante	c_p	$c_{pD} = 4,6 \cdot 10^{-3}T + 0,64$ $c_{pL} = 5,2 \cdot 10^{-3}T - 0,013$	$\text{kJ}/\text{kg}/\text{K}$	Mesure CEA
Coefficient de dilatation thermique	α	$30,7 \cdot 10^{-5}$	K^{-1}	[223]
Capacité calorifique à volume constant	c_v	1756,11	$\text{kJ}/\text{kg}/\text{K}$	Calcul
Coefficient de Gruneisen	Γ	1,51	-	Calcul
Module de compressibilité isotherme	K_T	8,51	GPa	Hypothèse $K_T = K_S$
Module de compressibilité isentropique	K_S	0,295	GPa	Paraffine [224, 225]
		8,51	GPa	Calcul

On remarque ici que celui obtenu à partir des données de la littérature est bien différent de celui utilisé au paragraphe précédent pour calculer Γ et c_p . Nous manquons de données matériau pour décrire correctement un modèle de comportement de la cire. Cependant, le biais est le même pour les trois matériaux ce qui n'empêche pas la comparaison entre les trois matériaux d'étude.

$$K_T = \frac{E}{3(1-\nu)} \quad (4.4)$$

$$G_T = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (4.5)$$

La cire étant considérée comme un matériau élastique isotrope, le tenseur élastique est composé de deux modules élastiques indépendants :

- $C_{11} = C_{22} = C_{33} = \frac{E(1-\nu)}{(1+\nu)(1-2\nu)} = 0,0985 \text{ GPa} = 98,5 \text{ MPa}$
- $C_{44} = C_{55} = C_{66} = \frac{E}{2(1+\nu)} = 0,0203 \text{ GPa} = 20,3 \text{ MPa}$
- $C_{12} = C_{13} = C_{21} = C_{23} = C_{31} = C_{32} = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} = 0,0579 \text{ GPa} = 57,9 \text{ MPa}$

4.2.3 Modélisation du comportement de la cire sous choc

Le comportement sous choc des deux cires s'est révélé similaire lors de sa caractérisation expérimentale à l'ISL. Les coefficients de la polaire de choc se trouvent dans le tableau 4.8.

TABLEAU 4.8 – Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des cires DICERA et LICOWAX déterminés expérimentalement

Masse volumique (g/cm ³)	c_0 (m/s)	s
0,986	2937	1,21

Nous construisons une équation d'état de Murnaghan (voir section 2.2) à partir des données de la polaire de choc (Eq. 4.6 et Eq. 4.7). La cire est, comme les grains de RDX, modélisée avec une loi de comportement élasto-plastique parfaite. Les coefficients se trouvent dans le tableau 4.9.

$$K_0 = \rho_0 c_0^2 \quad (4.6)$$

$$K'_0 = 4s - 1 \quad (4.7)$$

Dans notre étude, nous ne ferons pas de distinction entre la cire DICERA et la cire LICOWAX leurs propriétés étant identiques.

TABLEAU 4.9 – Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser la cire dans les simulations dynamiques

Équation d'état : Murnaghan		
Grandeur	Valeur	Unité
ρ_0	986,0	kg/m ³
Γ	1,51	-
c_v	1756,11	J/kg.K
K_0	8,505	GPa
K'_0	3,84	-
Loi de comportement : Élasto-plastique parfaite		
Grandeur	Valeur	Unité
G	0,0203	GPa
σ_y	0,006	GPa

4.3 Présentation des trois matériaux RDX/cire

4.3.1 Formulation

Les trois matériaux étudiés dans le cadre de la thèse sont des formulations explosives réalisées par l'ISL avec 70 % en masse d'hexogène et 30 % de cire. La cire fait office de liant entre les grains de RDX. Elle est également appelée matrice. Les trois matériaux sont des matériaux de laboratoire, avec beaucoup de liant, fabriqués pour faciliter l'étude de la microstructure. Par enrobage et compression, il est possible d'obtenir des hexocires 96:4.

Les trois matériaux ne diffèrent que par le lot d'hexogène employé. Le premier matériau est composé d'un lot commercial de RS-RDX (Reduced Sensitivity RDX) produit par EURENCO à Sorgues. Les grains ont une forme arrondie et de nombreux défauts intra-granulaires sont présents : pores, inclusions de solvant ou encore microfissures. Le second matériau utilise un lot de RDX recristallisé à l'ISL pour réduire le nombre de défauts intra-granulaires et obtenir le « VI-RDX brut », qu'on notera RVI-RDX (Raw Very Insensitive RDX). Une étape de traitement de surface appliqué sur le RVI-RDX permet d'obtenir le VI-RDX (Very Insensitive RDX) breveté par l'ISL [226] qui est employé pour le troisième matériau. Le traitement de surface permet d'éliminer les angles aigus qui apparaissent suite à la recristallisation (Fig. 4.6). Un changement de l'état de surface est également observé au microscope après le traitement de surface : la surface du VI-RDX est assez rugueuse tandis que les faces du RVI-RDX sont très lisses.

Les trois matériaux n'ont pas été obtenus par le même procédé de fabrication (Tab. 4.10). Le matériau RS-RDX/cire est obtenu par moulage au TMD (taux maximal de densité) de telle sorte

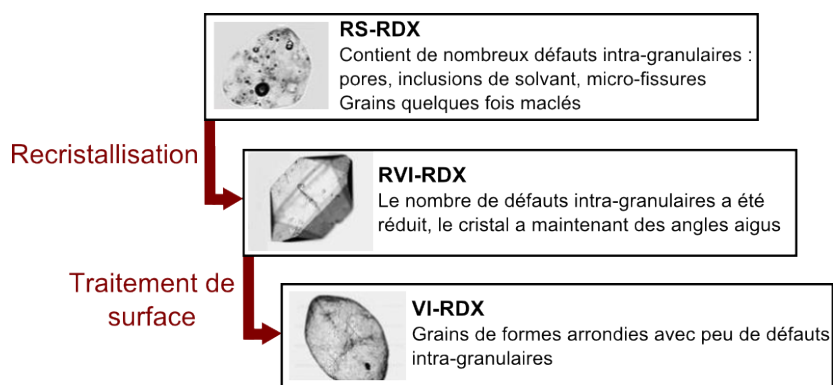


FIGURE 4.6 – Explications du procédé de fabrication et des caractéristiques du RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX. Les images sont obtenues au microscope optique avec adaptation de l'indice de réfraction.

Matériau	Procédé de fabrication
RS-RDX/cire	moulage TMD
RVI-RDX/cire	coulée TMD
VI-RDX/cire	coulée TMD

TABLEAU 4.10 – Liste des échantillons RDX/cire (70/30 en masse) fournis par l'ISL

qu'il n'y a pas de porosité extra-granulaire. Les deux autres matériaux, le RVI-RDX/cire et le VI-RDX/cire, sont coulés au TMD. Pour chacun des trois matériaux, il n'y a donc pas de porosités extra-granulaires. A noter qu'il a été vérifié expérimentalement que les deux procédés de fabrication employés (moulage TMD et coulée TMD) sont équivalents en termes de sensibilité à l'onde de choc. Ils ne semblent donc pas affecter significativement la microstructure des matériaux [227].

4.3.2 Modélisation macroscopique du comportement sous choc du matériau d'étude

Une polaire de choc du mélange, considérée inerte, composé de 70 % en masse de RDX et de 30 % de cire est construite à partir des polaires de choc de ses constituants. Cette méthode de calcul a été formalisée par Saurel [228] et intégrée dans un outil Python développé au CEA Gramat. La construction de la polaire de choc est basée sur trois hypothèses : l'équilibre des pressions entre les constituants, la conservation de la fraction massique avant et après le choc, la validité des relations de Rankine-Hugoniot pour le mélange. Cette méthode de calcul ne permet pas de prendre en compte les spécificités liées à la microstructure de chacun des trois matériaux. Nous utiliserons cette polaire de choc du mélange RDX/cire pour dimensionner les expériences de récupération d'échantillons impactés (chapitre 9). Les coefficients de la polaire de choc du matériau RDX/cire (70/30 en masse) se trouvent dans le tableau 4.11. Une capacité calorifique à volume constant $c_v = 1227,11$ J/kg/K et le coefficient de Gruneisen $\Gamma = 1,21$ du mélange sont également calculés.

TABLEAU 4.11 – Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des matériaux RDX/cire (70/30 en masse)

Masse volumique (g/cm ³)	c_0 (m/s)	s
1,445	2756	1,41

La polaire de choc est utilisée pour déterminer les coefficients d'une équation d'état de Cochran-Chan (voir section 2.2). Les coefficients A_1 , A_2 , E_1 et E_2 sont déterminés par une méthode de calcul développée au CEA Gramat par G. Baudin dans la thèse de V. Chuzeville [41]. Cette méthode de calcul alternative à celle proposée par Cochran [128] permet de mieux retranscrire la courbe de compression. Les résultats sont consignés dans le tableau 4.12. Cette équation d'état est utilisée dans le chapitre 8 pour comparer des résultats macroscopiques à des grandeurs moyennes de simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique.

TABLEAU 4.12 – Coefficients de l'équation d'état de Cochran-Chan du mélange RDX/cire (70/30 en masse)

Coefficient	Valeur	Unité
ρ_0	1,445	g/cm ³
Γ	1,21	-
c_v	1227,11	J/kg/K
E_1	2,878	-
E_2	1,777	-
A_1	9,714	GPa
A_2	10,355	GPa

4.3.3 Sensibilité au choc soutenu des trois matériaux

Des essais d'impact par petits projectiles ont été effectués, en amont de la thèse, par l'ISL sur les différents matériaux. L'objectif est de déterminer, pour chaque matériau, la sensibilité à un choc soutenu en déterminant le seuil de détonation. Pour ce faire, un projectile cylindrique de diamètre 20 mm et de hauteur 10 mm est projeté sur l'échantillon avec un canon à poudre (Fig. 4.7). La durée du choc plan est dépendante du diamètre plutôt que de la longueur du projectile. En effet, les détente latérales affaiblissent le choc. La vitesse du projectile, et donc la pression exercée sur l'échantillon, est progressivement augmentée jusqu'à ce que l'échantillon détone dans 100 % des cas. La vitesse du projectile est modulée en ajustant la quantité de poudre dans le lanceur.

La vitesse du projectile est déterminée par radiographie (Fig. 4.8a). Le diagnostic de la non-détonation ou de la détonation de l'échantillon est réalisé simultanément de deux manières différentes, donnant toujours des résultats très cohérents. L'utilisation simultanée de ces deux moyens permet de palier toute défaillance de l'un ou l'autre. La première méthode utilise trois sondes à ionisation disposées à 120° sur une même section du cylindre, proche de la face de sortie du choc. La seconde méthode consiste à enregistrer le temps de transit de l'onde dans l'échantillon à l'aide de sondes à court-circuit sur les faces d'entrée et de sortie du choc dans l'échantillon.

Le temps de transit est mesuré pour déterminer si l'échantillon a réagi à l'impact. En effet, lorsqu'il y a détonation, même partielle, le temps de transit dans l'échantillon diminue sensiblement (Fig 4.8b).

Les résultats des expériences d'impact par petits projectiles se trouvent sur la figure 4.9. Bien que la composition des trois matériaux soit identique, les seuils de détonation diffèrent. Ces différences démontrent l'influence de la microstructure sur la sensibilité au choc soutenu des matériaux énergétiques. Les matériaux composés de RS-RDX et de RVI-RDX ont des seuils de détonation d'environ 6 GPa, tandis que le matériau à base de VI-RDX a un seuil de détonation plus élevé, autour de 7,2 GPa.

La porosité intra-granulaire entre les échantillons RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire est identique, en revanche, la morphologie des charges change. La différence de sensibilité entre ces deux échantillons montre l'influence de la morphologie des grains sur la sensibilité au choc soutenu (Fig 4.9).

La similarité des seuils entre les matériaux à base de RS-RDX et de RVI-RDX pourrait s'expliquer par le fait que plusieurs paramètres influençant la sensibilité au choc se compensent :

- la réduction des défauts intra-granulaires entre le RS-RDX et le RVI-RDX qui désensibilise le matériau à base de RVI-RDX;
- la forme des grains de RVI-RDX, plus anguleux que ceux de RS-RDX, augmente la sensibilité du RVI-RDX;
- la distribution de taille des grains (Sec. 5.2.2) de RVI-RDX, plus étendue que celle du RS-RDX, augmente également la sensibilité du matériau RVI-RDX/cire.

Pour mieux comprendre ces résultats expérimentaux et quantifier l'influence de différents paramètres microstructuraux sur la sensibilité au choc soutenu des matériaux énergétiques, nous allons étudier en détail et comparer la microstructure de nos trois matériaux d'étude.

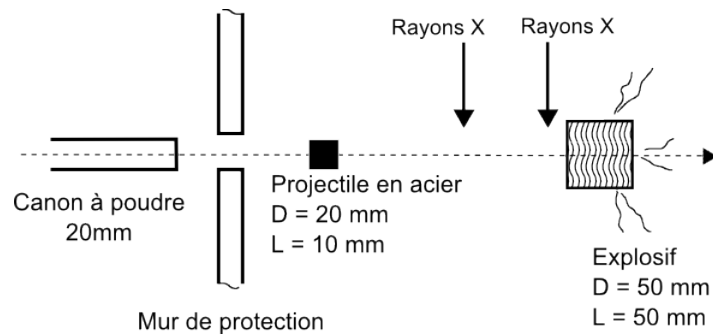


FIGURE 4.7 – Principe de l'expérience d'impact par petits projectiles de l'ISL

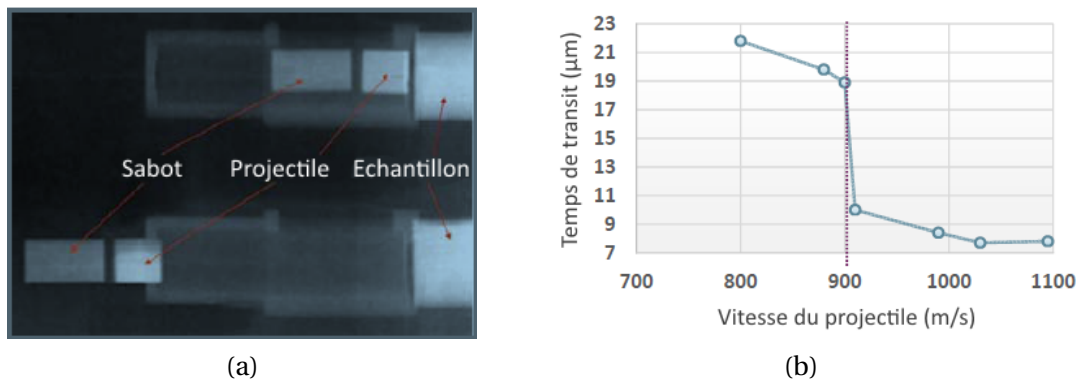


FIGURE 4.8 – (a) Radiographies à deux temps différents pour déterminer la vitesse du projectile lors de l'impact. La radiographie du haut, postérieure à celle du bas, a été prise juste avant l'impact du projectile avec l'échantillon. (b) Relevé du temps de transit dans un échantillon à base de RS-RDX en fonction de la vitesse du projectile.

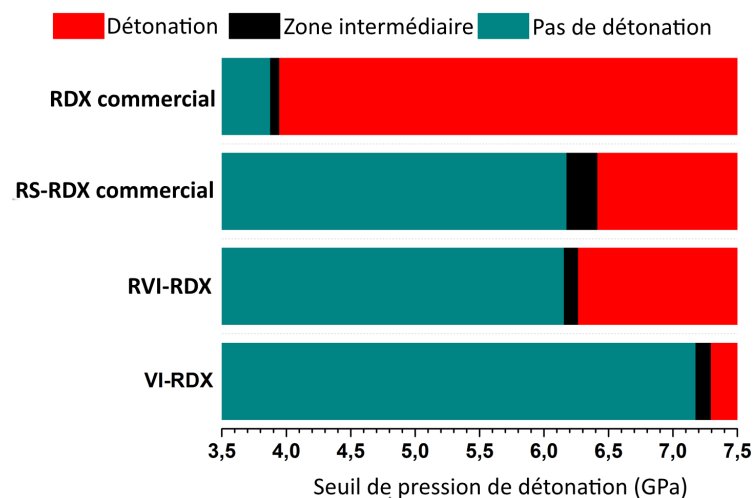


FIGURE 4.9 – Seuils de détonation des matériaux avec différents types de grains de RDX obtenus par test d'impact par petits projectiles.

4.4 Conclusion

Ce chapitre a présenté les caractéristiques des deux constituants de nos matériaux d'étude : l'hexogène et la cire. Les propriétés physico-chimiques et mécaniques du RDX proviennent de la littérature. Les lois de comportement disponibles pour décrire la réponse mécanique sous choc sont plus complexes à obtenir. Il existe toutefois des modèles décrivant finement le comportement sous choc d'un cristal de RDX. Ils prennent en compte l'anisotropie élastique et plastique (dislocation selon des plans de glissement), la dépendance à la température et à la vitesse de déformation ou encore son changement de phase. Ces modèles n'étant pas disponibles dans les codes de calculs utilisés pour ces travaux, un modèle simplifié isotrope élasto-plastique parfait combiné à une équation d'état de type Birch-Murnaghan est utilisé.

Les propriétés de la cire sont moins connues. La méconnaissance de la cire est problématique mais l'erreur sera la même sur les trois compositions, ce biais n'empêche donc pas la comparaison. La cire est modélisée, dans les simulations dynamiques, avec une loi de comportement élasto-plastique parfaite et une équation d'état de Murnaghan.

A partir des données de chacun des constituants, nous avons construit une polaire de choc et une équation d'état de Cochran-Chan du mélange RDX/cire. Cette modélisation macroscopique ne permet pas de prendre en compte les différences de microstructure entre les trois matériaux, mais permet de dimensionner les expériences de récupération (chapitre 9).

Les différences de microstructure entre les trois formulations RDX/cire (70/30 en masse) sont étudiées à partir de l'analyse quantitative d'images 3D de microtomographies. L'exploitation des microtomographies et l'analyse des microstructures est décrite dans les deux chapitres suivants.

Chapitre 5

Traitement d'images sur les images de microtomographie

Le seuil de sensibilité au choc de trois hexocires 70:30 mais de microstructures différentes a été déterminé expérimentalement. Ces essais ont mis en évidence une différence de sensibilité entre les trois matériaux. Notre objectif est de mieux comprendre ces résultats expérimentaux et l'influence de la microstructure sur la sensibilité au choc de matériaux énergétiques. Pour ce faire, nous caractérisons finement la microstructure de chacun des matériaux d'étude en exploitant des microtomographies.

Ce chapitre présente le traitement d'images qui a été effectué sur les microtomographies. Il introduit, dans une première partie, le principe de fonctionnement d'un microtomographe et les microtomographies des trois matériaux. La deuxième partie présente les paramètres de traitement d'images utilisés pour segmenter les microtomographies. Un contrôle des microstructures segmentées est ensuite réalisé. Il se décompose en deux étapes :

- une étude de la taille du volume élémentaire représentatif;
- une comparaison des résultats obtenus par traitement d'images sur les microstructures segmentées avec des résultats expérimentaux.

5.1 Présentation des microtomographies

5.1.1 Généralités sur la microtomographie

La microtomographie à rayons X (*micro-computed tomography* ou μ CT) est une méthode d'analyse non destructive permettant de visualiser la structure interne d'un matériau.

La microtomographie à rayons X est basée sur le principe qu'un faisceau de rayons X est atténué lorsqu'il traverse de la matière [175]. L'atténuation dépend du coefficient linéaire d'absorption du matériau μ qui est fonction de la densité et du numéro atomique Z du matériau traversé. D'après la loi de Beer-Lambert, un faisceau de photons d'intensité I_0 traversant une épaisseur de matière x a une intensité résultante I_x donnée par :

$$I_x = I_0 e^{-\mu x} \quad (5.1)$$

Un scintillateur permet de convertir les photons X en photons visibles qui peuvent ensuite être détectés par différents types de capteurs (CCD, photodiode). Une image numérique 2D des valeurs moyennes des coefficients d'absorption est ainsi obtenue. Il s'agit d'une radiographie. Pour obtenir des coefficients d'absorption locaux, et ainsi visualiser la microstructure 3D du matériau, un grand nombre de radiographies prises à des angles légèrement différents est nécessaire. L'échantillon d'étude est donc placé sur un plateau tournant. Des algorithmes de reconstruction permettent, en combinant les radiographies, d'obtenir des coupes 2D du matériau. En superposant ces coupes, on peut visualiser la structure interne en 3D du matériau. C'est la tomographie à

rayons X (Fig. 5.1). On parle de microtomographie lorsque la résolution des images est de l'ordre du micromètre.

Certains artefacts d'acquisition peuvent complexifier l'analyse des microtomographies. Les plus répandus sont les anneaux de reconstruction et le phénomène de durcissement de faisceau [175, 229]. Les artefacts en anneaux (*ring artefact*) proviennent de capteurs défectueux et/ou d'un mauvais étalonnage du détecteur. Après la reconstruction, des anneaux de différents diamètres mais de même centre apparaissent. Le phénomène de durcissement du faisceau (*beam hardening*) a lieu lorsque le faisceau de rayons X est polychromatique. Les photons de basse énergie sont absorbés plus facilement et sur de plus courtes distances que les photons de haute énergie. Le coefficient d'absorption d'un objet (fissure, pore, grain...) dans un matériau dépend donc de sa position. Sur des images d'échantillons cylindriques, par exemple, le durcissement de faisceau est visible lorsque l'intérieur du matériau est plus sombre que ses bordures. Sur d'autres configurations, le durcissement de faisceau est plus complexe à identifier. Il est alors difficile de savoir si le niveau de gris obtenu représente bien l'objet ou bien s'il est tronqué suite à un durcissement de faisceau. Pour limiter ce phénomène, des filtres peuvent être placés derrière la source pour durcir le faisceau et ne conserver que les photons de haute énergie.

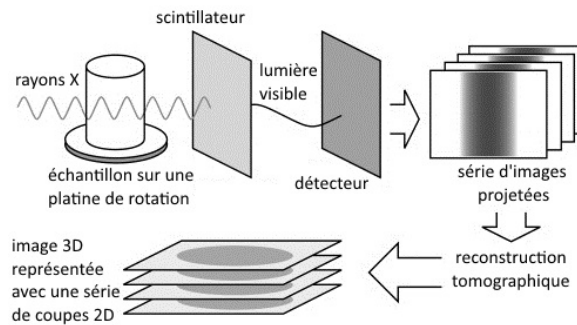


FIGURE 5.1 – Schéma du principe de la microtomographie - image provenant de [14]

Deux microtomographes ont été utilisés au cours de nos travaux. Le premier, opérationnel au CEA Gramat de 2009 à 2019, est un modèle Bruker SkyScan 1172. Ses principales caractéristiques sont :

- un générateur de rayon X grâce à un tube microfoyer scellé de tension maximale 100 kV et puissance maximale de 10 W;
- un imageur composé d'un scintillateur et d'un capteur CCD d'une résolution de 10 Mpx;
- une résolution spatiale maximale de 1 μm lorsque les conditions sont optimales. La résolution généralement atteinte est inférieure à 5 μm .

Les microstructures étudiées dans les chapitres suivants ont été microtomographiées avec le SkyScan 1172.

Le CEA Gramat a acquis, en 2019, un nouveau microtomographe RX Solutions EasyTom 150/160 permettant d'atteindre de meilleures résolutions. Il est constitué de deux générateurs de rayons X. Le premier est un générateur micro foyer à tube scellé de tension maximale 150 kV et de puissance maximale 75 W permettant d'atteindre une résolution maximale de 5 μm . Le second est un générateur nano foyer à tube ouvert de tension maximale 160 kV et de puissance maximale 16 W permettant d'atteindre, selon les conditions, une résolution maximale d'environ 0,5 μm . Deux imageurs sont également disponibles : un imageur plan avec capteur photodiode et un imageur avec capteur CCD. Ce nouveau microtomographe a été utilisé pour visualiser la microstructure des matériaux endommagés (voir chapitre 9).

5.1.2 Microtomographies des matériaux d'étude

Un échantillon de chacun des trois matériaux RDX/cire d'un diamètre de 10 mm et d'une hauteur de 15 mm est analysé au microtomographe SkyScan. Les résolutions des différentes acquisitions sont consignées dans le tableau 5.1. Nous disposons, pour chaque matériau, d'environ 3000 coupes pour reconstituer le volume (Fig. 5.2). Les zones sombres sur les microtomographies correspondent aux grains de RDX, la zone plus claire à la cire. Les pores intra-granulaires apparaissent sous forme de taches blanches à l'intérieur des grains.

TABLEAU 5.1 – Résolutions des microtomographies

Échantillon	Résolution
RS-RDX/cire	3,67 μm
RVI-RDX/cire	3,67 μm
VI-RDX/cire	3,54 μm

Les différences de morphologie entre les grains de RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX sont bien visibles sur les microtomographies (Fig. 5.3). Conformément à nos attentes, les grains de VI-RDX et de RS-RDX ont des formes arrondies alors que les grains de RVI-RDX sont plus anguleux. Dans le matériau RS-RDX/cire, les grains ont tendance à former des agglomérats. Ce phénomène est moins présent pour les deux autres matériaux où les grains semblent répartis de manière plus homogène dans la cire. Certains agglomérats de RS-RDX sont en réalité des macles, c'est à dire plusieurs cristaux d'une même espèce qui s'interpénètrent selon des lois de cristallographie [230]. Les joints de macles peuvent être des zones de fragilité. La quantité de défauts intra-granulaires est visiblement plus importante dans les grains de RS-RDX que dans les grains de VI-RDX et de RVI-RDX où il y a eu une recristallisation spécifique pour les éliminer.

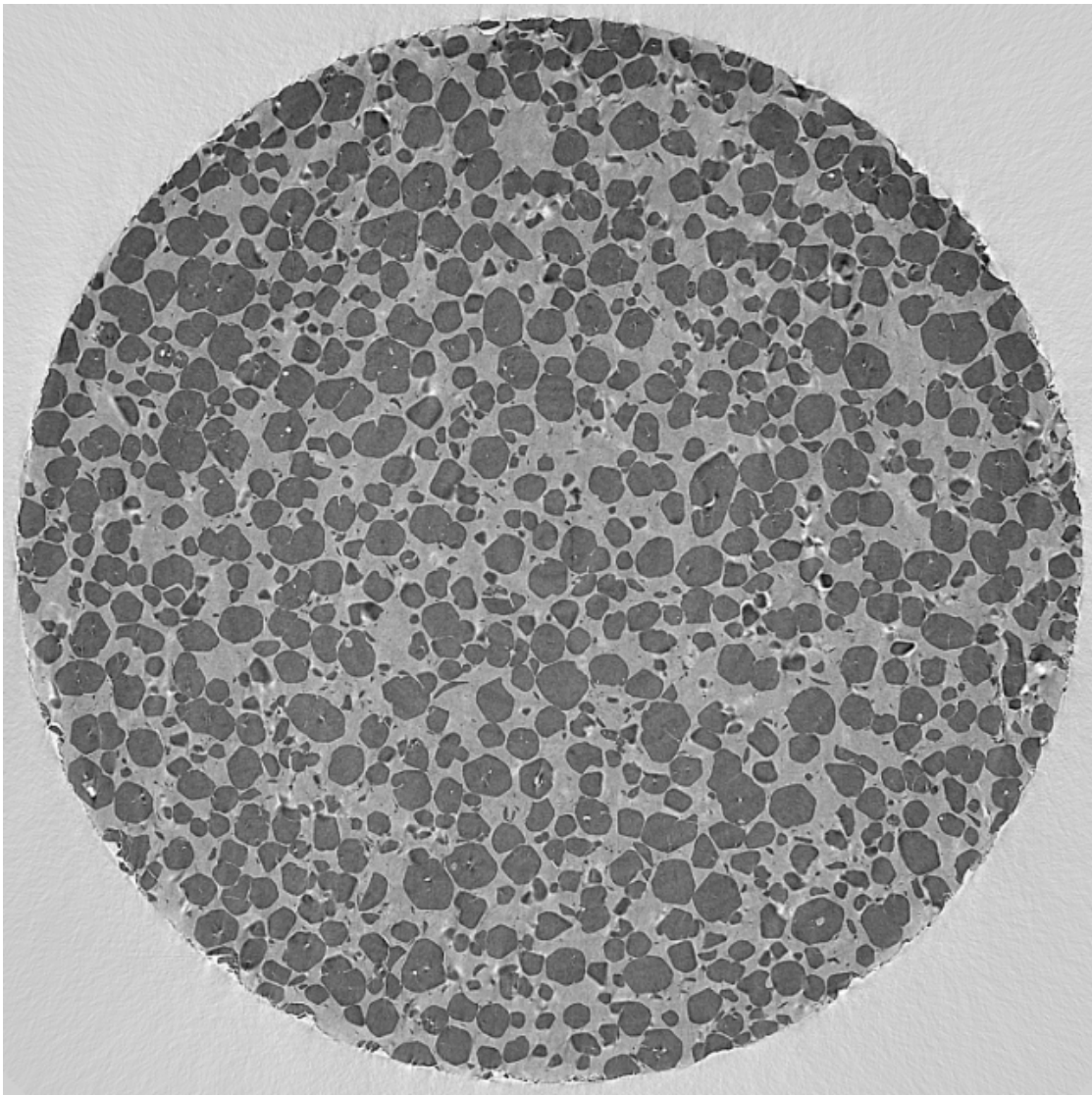


FIGURE 5.2 – Coupe (2850x2850 pixels) d'une microtomographie du matériau RS-RDX/cire

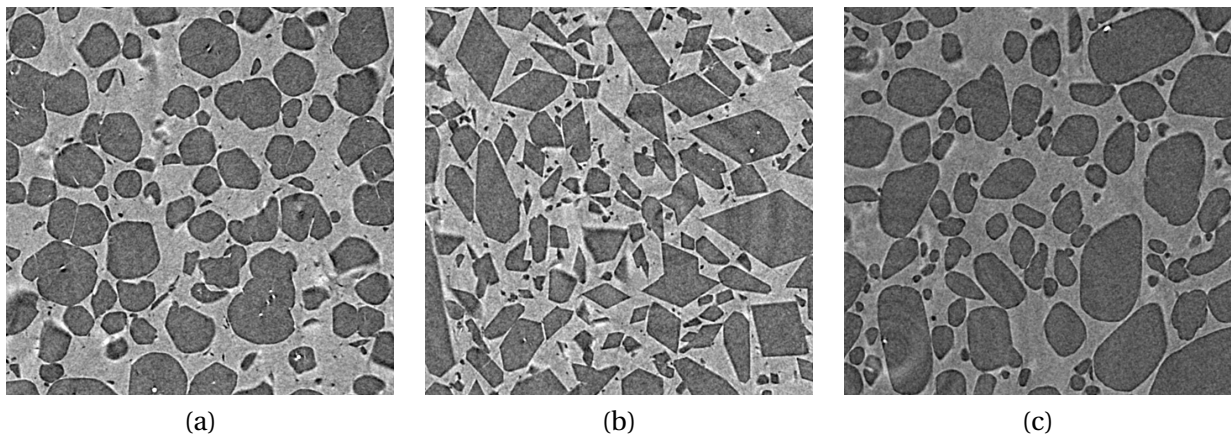


FIGURE 5.3 – Coupes (600x600 pixels) extraites de microtomographies des différents matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire, (c) VI-RDX/cire

5.2 Traitement d'images sur les microtomographies avec l'outil SAMG

5.2.1 Paramètres de filtrage et de segmentation

Des volumes extraits des microtomographies des trois matériaux sont filtrés et segmentés avec le logiciel SAMG (description dans la sous-section 3.3.3). Le logiciel SAMG permet de contrôler chaque étape du processus en offrant la possibilité de choisir un grand nombre de paramètres.

Les paramètres utilisés pour segmenter nos matériaux d'étude sont précisés ci-dessous. Les étapes du processus de segmentation sont rappelées par la même occasion.

- L'étape de correction de la luminosité n'est pas appliquée étant donné que nos microtomographies sont uniformément éclairées.
- L'analyse de la distribution des intensités est réalisée avec la méthode *greedy*; elle permet d'identifier directement les deux phases : grains et matrice (Fig. 5.4b). L'analyse de la distribution spatiale des grains se fait en mesurant la covariance spatiale.
- Le filtre choisi pour débruiter les microtomographies est le filtre bilatéral récursif (Fig. 5.4c). Les paramètres du filtre sont déterminés automatiquement à partir des résultats de l'analyse de la distribution des intensités et de la covariance spatiale.
- Les trois matériaux d'étude étant peu chargés en grains (70 % en masse ou 56 % en volume), l'identification du liant parmi les deux phases est aisée.
- L'étape suivante est la segmentation par ligne de partage des eaux (Fig. 5.4d). Les marqueurs pour les grains sont les maxima locaux labellisés de la carte de distance des grains par rapport au liant. Les marqueurs dans le liant sont les maxima locaux de la carte de distance du liant par rapport aux grains. Les marqueurs pour le liant portent tous le même label. Au préalable, la porosité intra-granulaire est identifiée et supprimée pour éviter d'obtenir plusieurs maxima par grain. L'identification de la porosité est effectuée avec la fonction `fill_holes` de Python qui s'appuie sur une opération de morphologie mathématique géodésique. Une opération de dilatation ou d'érosion géodésique est contrainte à rester dans une certaine zone de l'image (la zone agit comme un masque). Des opérations de dilatation géodésiques successives, contraintes par la phase du liant, sont effectuées à partir des bords de l'image. Lorsque la stabilité est atteinte (plus de changements dans l'image même après une nouvelle dilatation), les seules zones qui n'ont pas été atteintes par les opérations de dilatation géodésiques sont les cavités occluses (voir Annexe A). La porosité est réintroduite après l'étape de correction de la sur-segmentation. Pour définir les marqueurs, nous choisissons d'utiliser une carte de distance obtenue par érosions successives avec un élément structurant cubique. Cette carte de distance est utilisée, car elle génère moins de marqueurs que celle obtenue avec la distance euclidienne. En effet, nous obtenons une multitude de maxima, donc de marqueurs, avec la distance euclidienne ce qui entraîne un plus grand nombre de grains sur-segmentés à la fin du processus. En utilisant la « distance morphologique », les maxima dans un grain sont souvent des plateaux. Les marqueurs sont alors des zones plus larges, et leur nombre est moins important ce qui facilite l'étape de correction de la sur-segmentation.
- La dernière étape dans SAMG est la correction de la sur-segmentation (Fig. 5.4e). Cette correction s'effectue avec un critère géométrique quantifiant l'étranglement entre deux labels adjacents. Le critère de correction est fixé à 1,4 pour le RS-RDX, 1,6 pour le RVI-RDX et 1,3 pour le VI-RDX. La différence entre les trois coefficients n'est pas significative, nous aurions pu prendre le même coefficient pour les trois matériaux et avoir des résultats similaires. Ces coefficients résultent de premiers essais de segmentation et n'ont pas été modifiés. La segmentation de ces gros volumes étant coûteuse en temps et en ressources, nous n'avons pas relancé les calculs une nouvelle fois en fixant le même critère pour les trois matériaux.

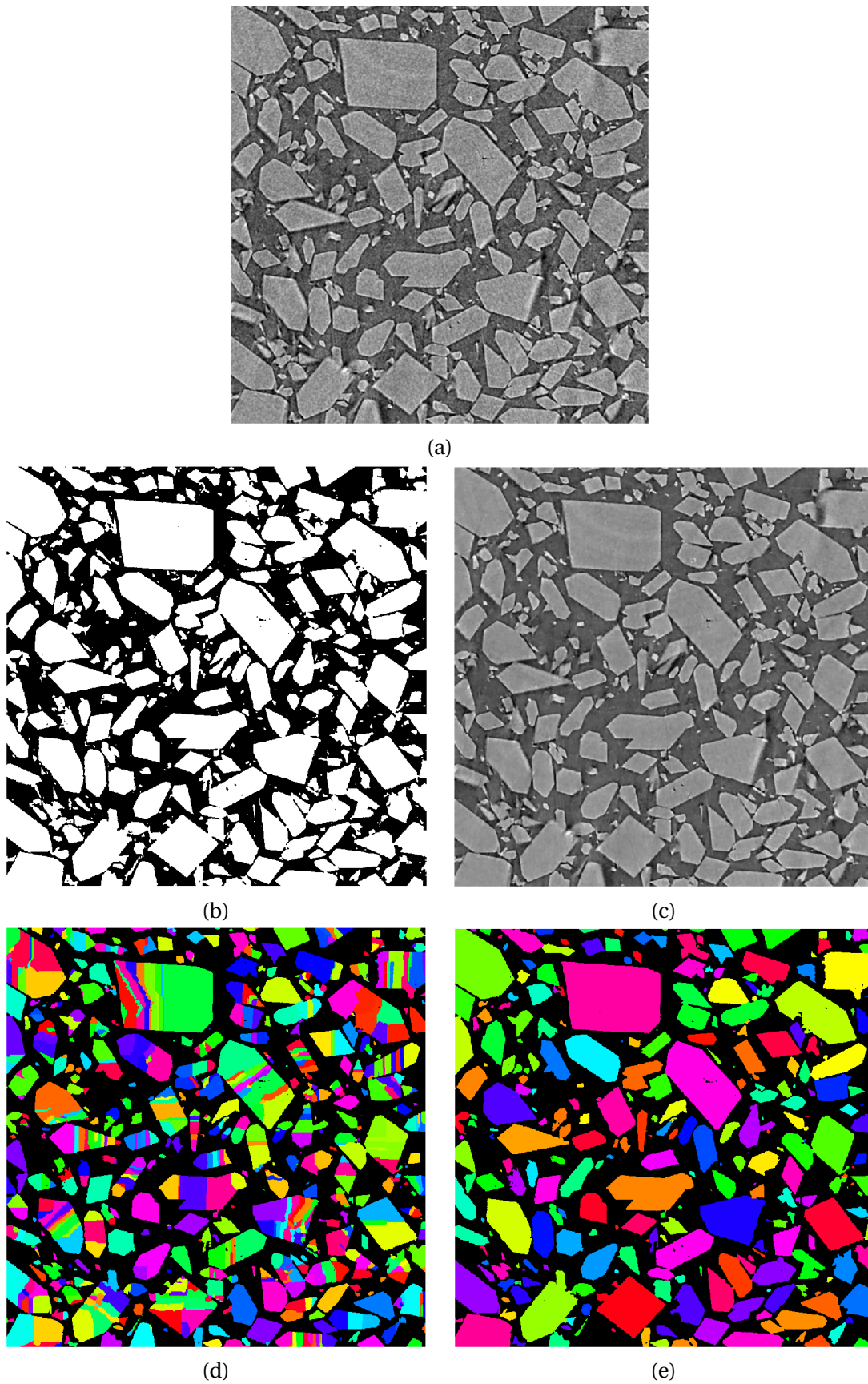


FIGURE 5.4 – Coupes extraites d'un volume segmenté RVI-RDX/cire à différentes étapes du processus de segmentation de SAMG : (a) microtomographie originale, (b) image seuillée, (c) image filtrée, (d) première segmentation avec beaucoup de grains sur-segmentés et (e) segmentation finale après correction de la sur-segmentation.

A la fin de ce processus de traitement d'images, certains grains restent malgré tout sur-segmentés. Ces derniers problèmes de segmentation proviennent généralement des grains maclés de RS-RDX, ou bien des grains très allongés de RVI-RDX et de VI-RDX. Les grains maclés sont souvent constitués de trois cristaux qui s'interpénètrent formant trois lobes. On rappelle que la correction de la sur-segmentation se fait en évaluant l'étranglement entre deux labels adjacents. Un étranglement important signifie que les deux labels représentent deux grains accolés mais distincts. Dans un grain maclé, il y a bien un étranglement entre les labels associés à chacun des lobes. Par conséquent, le critère de correction de la sur-segmentation n'est pas efficace sur ce type particulier de grains. Pour des grains particulièrement allongés, le critère géométrique est moins adapté et ne permet pas la fusion des labels adjacents.

Un code Python a été développé pour corriger manuellement ces derniers problèmes de segmentation. Il permet de choisir manuellement les labels qui doivent être fusionnés. Le temps de correction manuelle est compris entre 30 minutes et quelques heures selon le type de microstructure et la taille du volume à traiter.

Quatre volumes indépendants de 1000^3 voxels, ce qui correspond à $3,54^3 \text{ mm}^3$ (RS-RDX, RVI-RDX) et $3,67^3 \text{ mm}^3$ (VI-RDX), sont segmentés pour chacun des trois matériaux. Chaque volume segmenté est nommé (Tab. 5.2) avec le type de grains de RDX (RS, RVI ou VI) et une lettre (b, c, d, ou e). Des exemples de volumes microtomographiés et segmentés se trouvent sur la figure 5.5. Pour chaque matériau, une coupe segmentée est extraite et présentée sur la figure 5.6.

Les grains labellisés dans chaque volume segmenté sont extraits pour former une bibliothèque de grains. Seuls les grains « entiers », c'est à dire les grains complètement inclus dans le volume sont extraits. Sur les microtomographies des matériaux RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire, des anneaux de reconstruction (*ring artefact*) très marqués sont observés (Fig. 5.7a). Ces anneaux de reconstruction entraînent une mauvaise segmentation des grains (Fig. 5.7b). Les grains situés dans la zone autour des anneaux ne sont pas inclus dans les bibliothèques de grains (Fig. 5.7c). Cela représente 48 grains pour le volume RVie, 61 grains pour le volume VId et 72 grains pour le volume VIe. Le nom, la fraction volumique de RDX f_{RDX} des volumes segmentés et le nombre de grains extraits sont récapitulés dans le tableau 5.2.

TABLEAU 5.2 – Caractéristiques des volumes de 1000^3 voxels segmentés des matériaux RS-RDX/cire, RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire.

Nom	Fraction volumique de RDX	Nombre de grains extraits
RSb	0,554	3316
RSc	0,552	3412
RSd	0,561	3296
RSe	0,555	3599
RVib	0,550	5205
RVic	0,559	6925
RVID	0,561	5245
RVie	0,578	4774
VIb	0,555	6351
VIc	0,557	6491
VId	0,554	6103
VIe	0,560	6267

Le nombre de grains constituant chaque bibliothèque de grains ainsi que la fraction volumique moyenne sur les différents volumes segmentés est détaillé dans le tableau 5.3. Si la fraction volumique de RDX est similaire pour les trois matériaux, nous trouvons une grande différence dans le nombre de grains extraits. En effet, nous disposons d'environ deux fois moins de grains de

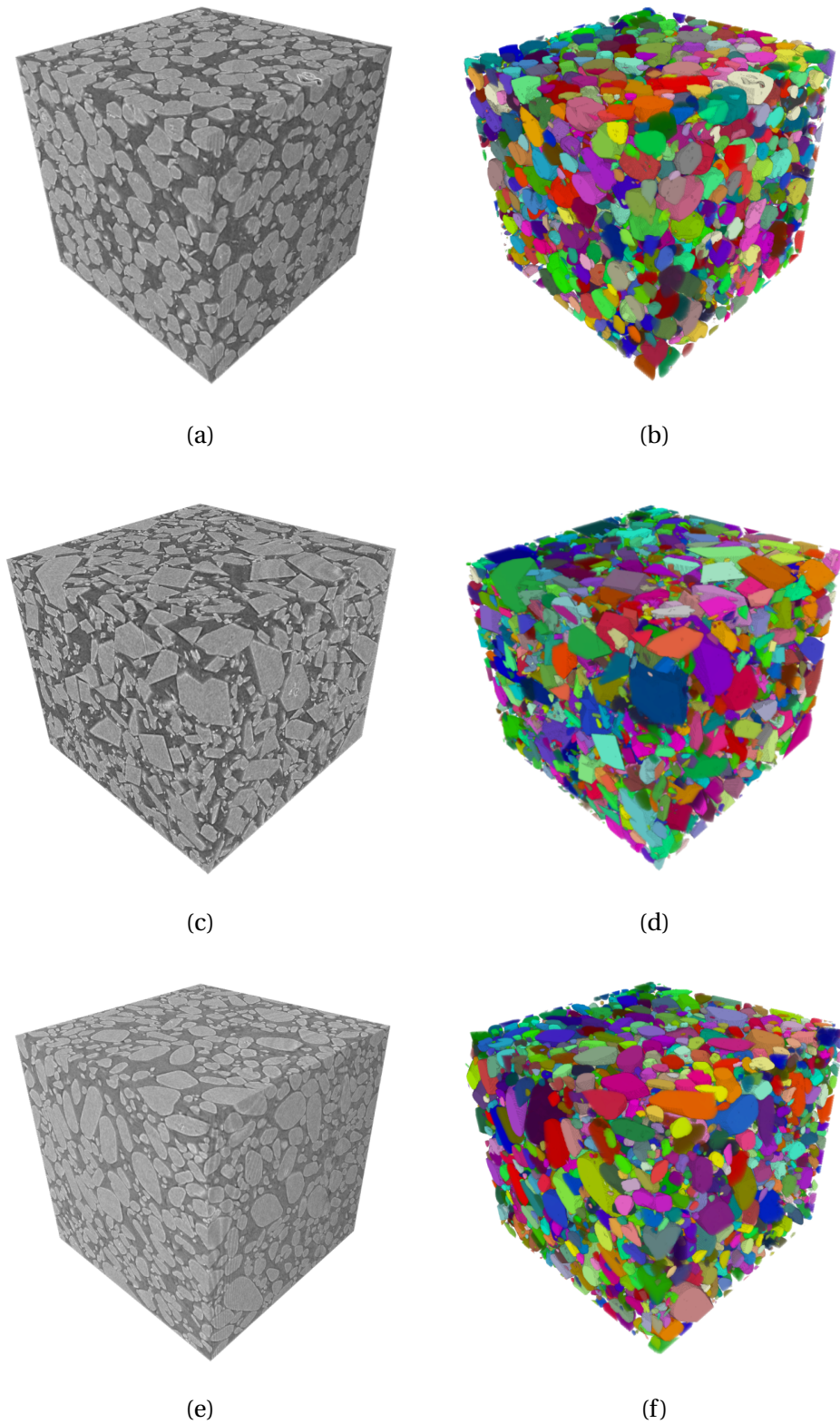


FIGURE 5.5 – Volume de 1000^3 voxels microtomographiés de (a) RS-RDX/cire, (c) RVI-RDX/cire et (e) VI-RDX/cire et leur segmentation associée (respectivement (b),(d),(f))

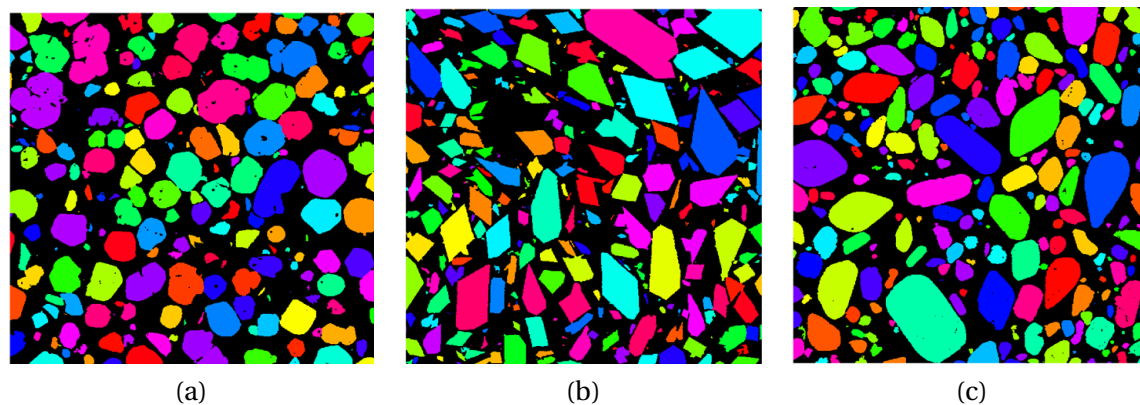


FIGURE 5.6 – Coupes extraites de volumes segmentés de 1000^3 voxels pour les matériaux (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire

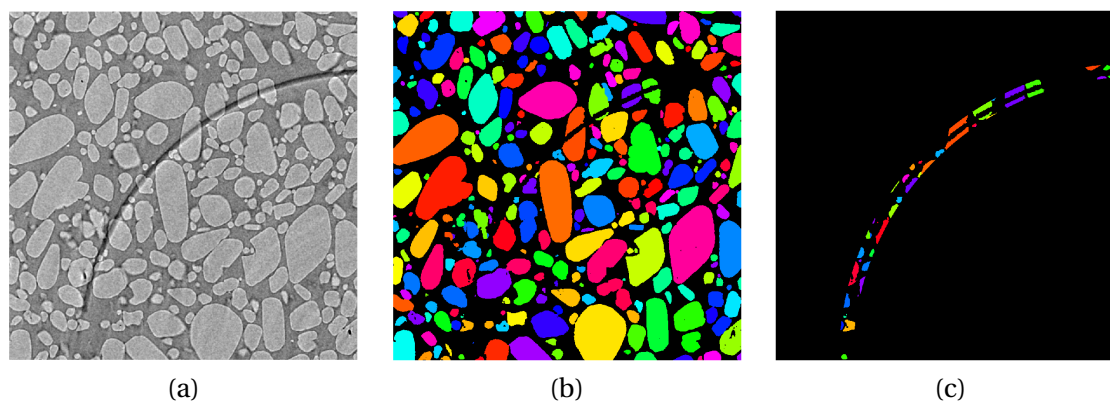


FIGURE 5.7 – Coupes de 1000^3 voxels du volume Vid présentant des anneaux de reconstruction sur (a) la microtomographie, (b) la segmentation correspondante et (c) la zone d'exclusion pour l'extraction des grains.

RS-RDX que de VI-RDX. Cet écart est lié à une différence de granulométrie. Nous verrons dans la partie 5.2.3 que la granulométrie du RS-RDX est plus étroite que celle du RVI-RDX et du VI-RDX. Par conséquent, la bibliothèque de grains de RVI-RDX et de VI-RDX est constituée d'un nombre important de petits grains contrairement à la bibliothèque de grains de RS-RDX qui contient des grains de taille plus homogène, ce qui, selon la littérature, est plutôt bénéfique pour une moindre sensibilité au choc.

TABLEAU 5.3 – Nombre de grains extraits et fraction volumique moyenne sur quatre volumes segmentés pour chacun des trois matériaux

Matériau	RS-RDX/cire	RVI-RDX/cire	VI-RDX/cire
Nombre de grains extraits	13623	22149	25212
Fraction volumique de RDX moyenne	55,6 %	56,2 %	55,7 %

5.2.2 Représentativité du volume segmenté

Les trois matériaux sont composés de 70 % en masse de RDX ce qui correspond à une fraction volumique de 56 %. Nous obtenons une fraction volumique moyenne de 55,6 %, 56,2 % et 55,7 % pour les quatre volumes segmentés de RS-RDX/cire, de RVI-RDX/cire et de VI-RDX/cire (Tab 5.3). La fraction volumique de RDX obtenue est très proche de celle annoncée. Néanmoins, nous vérifions que les volumes segmentés sont suffisamment grands pour être représentatifs de l'ensemble de la microstructure. Un volume est représentatif lorsqu'il est grand par rapport à toutes les tailles caractéristiques de la microstructure (objets ou amas d'objets). Nous pouvons utiliser la théorie de Mathéron [231] pour quantifier la représentativité d'un volume. Celui-ci dépend de la grandeur que l'on souhaite mesurer, et de la précision recherchée. Supposons que nous cherchons à estimer la moyenne d'un champ $Z(x)$. Le champ $Z(x)$ peut être par exemple la fonction indicatrice de l'ensemble ou bien une fonction valant 1 aux interfaces et 0 ailleurs. Dans le premier cas, la moyenne du champ correspond à la fraction volumique d'une phase, dans le second cas, elle est égale à la surface spécifique de l'ensemble. Notons $\langle Z(x) \rangle_V$ la moyenne d'une grandeur de l'espace $Z(x)$ sur un volume V et $\langle Z(x) \rangle$ la moyenne de Z sur \mathbb{R}^3 . La variance de la moyenne $\langle Z(x) \rangle_V$ sur plusieurs volumes de taille V est notée $D_Z^2(V)$. Pour un ensemble stationnaire et ergodique, cette variance tend vers 0 lorsque le volume tend vers l'infini ($D_Z^2(V) \rightarrow 0$ lorsque $V \rightarrow \infty$). La stationnarité (invariance statistique par translation) des matériaux réels est contrôlée en traçant la fraction surfacique de grains de RDX sur des coupes extraites d'un volume microtomographié et segmenté, en fonction de la position de la coupe dans le volume (Fig. 5.8). Il y a peu de variation selon la position de la coupe (variance de $2,05 \times 10^{-4}$). L'absence de dérive de cette fonction 1D est cohérente avec l'hypothèse de stationnarité. L'ergodicité correspond au fait que toutes les réalisations d'un modèle ont des caractéristiques statistiquement identiques lorsque le calcul est effectué sur des volumes suffisamment grands [232].

Mathéron [231] montre que le comportement asymptotique s'exprime sous la forme :

$$D_Z^2(V) = D_Z^2 \frac{A_3}{V} + o(1/V), \quad V \gg A_3, \quad (5.2)$$

Cette équation relie la variance $D_Z^2(V)$ à la variance ponctuelle D_Z^2 (Eq. (5.3)) et à la portée intégrale A_3 (définie plus loin, voir Eq. (5.4)). La portée intégrale est homogène à un volume. Ces expressions sont valables pour n'importe quelle grandeur $Z(x)$ dont on peut calculer une moyenne (champ stationnaire) ce qui permet d'étudier, par exemple, la conductivité thermique, le module élastique, la fraction volumique [233].

$$D_Z^2 = \langle Z(x)^2 \rangle - \langle Z(x) \rangle^2 \quad (5.3)$$

$$A_3 = \frac{1}{D_Z^2} \int_{h \in \mathbb{R}^3} (\langle Z(x)Z(x+h) \rangle - \langle Z(x) \rangle^2) dh. \quad (5.4)$$

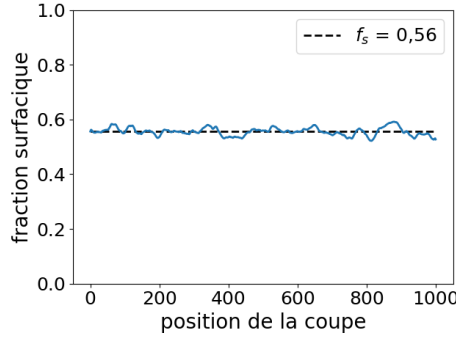


FIGURE 5.8 – Fraction surfacique des grains dans des coupes extraites d'un volume microtomographié segmenté de 1000^3 voxels en fonction de la position de la coupe. La fraction surfacique moyenne de 55,5 % est tracée en pointillé.

Nous nous intéressons à la fraction volumique. Dans ce cas, $Z(x)$ peut uniquement prendre les valeurs 0 et 1 : $Z(x) = 1$ dans un grain et $Z(x) = 0$ dans le liant. La grandeur $\langle Z(x) \rangle_V$ correspond donc à la fraction volumique de grain dans un volume V . L'expression de la portée intégrale s'écrit maintenant sous la forme :

$$A_3 = \frac{1}{D_Z^2} \int_{h \in \mathbb{R}^3} [C(h) - p] dh, \quad D_Z^2 = p(1 - p), \quad (5.5)$$

avec $p = \langle Z(x) \rangle$ la fraction volumique de grains et $C(h) = P\{Z(x) = 1, Z(x + h) = 1\}$ la covariance spatiale. Pour rappel (section 3.2.3), la covariance spatiale mesure la probabilité que deux points x et $x + h$ se trouvent dans le même ensemble (ici dans des grains de RDX).

La portée intégrale peut tendre vers l'infinie dans les matériaux ayant des corrélations à grande échelle. Dans ces cas particuliers, la relation (5.2) décrivant la convergence de l'asymptote ne s'applique plus et est remplacée par une autre relation faisant intervenir un exposant [234] :

$$D_Z^2(V) = D_Z^2 \left(\frac{V_0}{V} \right)^\alpha, \quad V \rightarrow \infty, \quad (5.6)$$

V_0 est un volume de référence et α un coefficient compris entre 0 et 1. Un coefficient inférieur à 1 témoigne d'une décroissance de la variance plus lente que dans le cas non-corrélé, et qui n'est plus proportionnelle au volume.

La variance de la fraction volumique selon le volume $D_Z^2(V)$ est évaluée en divisant les volumes segmentés de 1000^3 voxels en volumes de taille V . La fraction volumique est calculée sur chacun des volumes de taille V , la variance entre tous ces volumes est ensuite déterminée. La variance de la fraction volumique pour des volumes de 1 voxel est calculée à partir de 1000^3 volumes différents. Cela revient en réalité à calculer la variance ponctuelle. En revanche, la variance de la fraction volumique pour des volumes de 500^3 voxels est calculée à partir de 8 volumes différents.

Ce calcul est effectué sur les quatre volumes segmentés de RS-RDX/cire, RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire. Pour chaque matériau, les données sont moyennées et tracées sur une échelle log-log (Fig. 5.9). Une loi de puissance $D_Z^2(V) \sim V^\alpha$ est ajustée sur la partie asymptotique de chaque courbe sur un domaine de plus de trois décades. Les équations ajustées permettent de déterminer les grandeurs V_0 et α pour chacun des trois matériaux. Les résultats sont consignés dans le tableau 5.4. Les lois de puissance obtenues reproduisent bien l'asymptote et respectent l'équation (5.6) avec $D_Z^2 \approx 0,25$, soit $p \approx 0,56$ pour les trois matériaux. L'exposant α et le volume de référence V_0 sont propres à chaque type de matériau, donc à chaque microstructure.

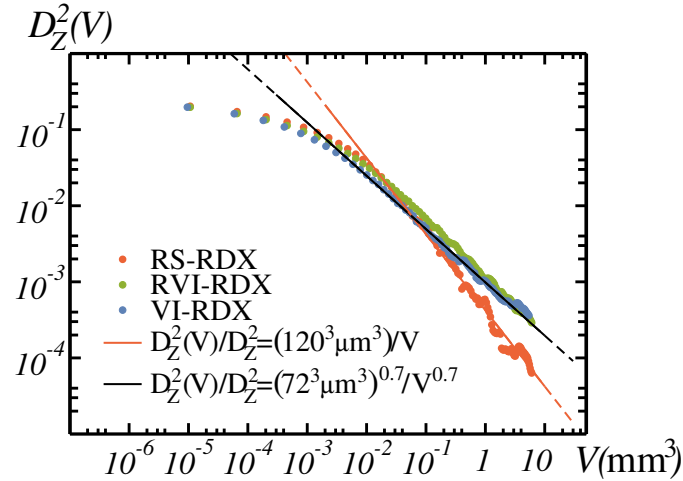


FIGURE 5.9 – Variance de la fraction volumique moyennée sur les quatre volumes segmentés pour chacun des matériaux en fonction de la taille du volume. Les régressions linéaires associées permettent de déterminer les grandeurs α et V_0 pour chacun des trois matériaux.

TABLEAU 5.4 – Résumé des résultats de l'étude de la variance de la fraction volumique en fonction de la taille du volume sur les volumes segmentés de chacun des trois matériaux.

	RS-RDX/cire	RVI-RDX/cire	VI-RDX/cire
α	1,0	0,75	0,7
V_0 (μm^3)	120^3	93^3	72^3
D_Z^2	0,247	0,246	0,247
ϵ_{rel} (%)	0,58	1,41	1,50

Les exposants $\alpha \approx 0.7$ et $\alpha \approx 0.75$ des matériaux à base de RVI-RDX et VI-RDX sont synonymes de corrélations à grande échelle. Ce coefficient inférieur à 1 peut, dans notre cas, provenir de deux facteurs : la forme des grains et la granulométrie. Un exposant $\alpha < 1$ a été obtenu sur des modèles fibreuse, avec un rapport longueur/largeur important [235]. Une autre étude a montré qu'un modèle booléen de sphères avec une granulométrie étendue et une décroissance lente de la queue de distribution retourne également un exposant $\alpha < 1$ [236]. Les grains de RVI-RDX et de VI-RDX ont généralement des formes plus allongées que les grains de RS-RDX. De plus, leur granulométrie est plus étendue avec une décroissance lente de la queue de distribution (section 5.2.3).

L'erreur relative sur la fraction volumique est calculée par :

$$\epsilon_{rela} = \frac{2D_Z^2(V)}{p\sqrt{n}} = 2\sqrt{\frac{(1-p)A_3^\alpha}{pnV^\alpha}} \quad (5.7)$$

avec p la fraction volumique de RDX, n le nombre de volumes d'étude et V la taille du volume.

L'erreur relative sur la fraction volumique est calculée pour un nombre de volumes $n = 4$ de taille $V = 1000^3$ voxels. Nous obtenons une erreur relative de 0,58 % pour le matériau à base de RS-RDX, de 1,41 % pour le RVI-RDX et 1,50 % pour le VI-RDX (Tab. 5.4).

La relation (5.7) permet également de déterminer, pour une erreur relative donnée, la taille minimale du volume représentatif. Dans notre cas, pour avoir une erreur relative inférieure à 1 %, nous devons travailler avec des volumes de $2,40^3$, $4,98^3$ et $5,21^3$ mm^3 (ce qui correspond, en prenant en compte la résolution des microtomographies, à des volumes de 655^3 , 1357^3 et 1471^3 voxels) pour les matériaux RS-RDX/cire, RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire.

Les erreurs relatives actuelles sont considérées acceptables pour notre étude, nous continuons donc à travailler sur les volumes segmentés de 1000^3 voxels.

5.2.3 Comparaison des résultats de segmentation avec des données expérimentales

L'ISL a réalisé une série de mesures expérimentales pour caractériser les différents types de grains de RDX. Nous disposons pour chaque type de grain :

- d'une distribution de diamètre obtenue par SLS (Static Light Scattering) ;
- d'une distribution cumulée de densité apparente obtenue par la méthode de flottation.

Ces résultats expérimentaux sont comparés avec les résultats obtenus par traitement d'images. L'objectif est de montrer que le processus de segmentation est fiable car il permet d'obtenir des résultats similaires à ceux obtenus avec des moyens de caractérisation expérimentaux.

Comparaison des distributions de diamètres

La distribution des diamètres est obtenue expérimentalement par diffusion statique de la lumière (SLS : *Static Light Scattering*) avec un appareil COULTER LS230. Cette méthode de mesure détermine les diamètres de sphères et leur proportions relatives produisant la figure de diffraction la plus proche (au sens des moindres carrés) de celle observée expérimentalement. La mesure est réalisée sur environ 450 mg de matière ce qui correspond à environ 75 000 grains. La masse de 450 mg est dépendante de la taille des particules. Elle est déterminée par le système de mesure pour optimiser le rapport signal sur bruit pour ses différents détecteurs optiques. Les résultats indiquent que la distribution de taille des grains de RS-RDX est plus étroite que celle du RVI-RDX et du VI-RDX (Fig. 5.10). Le processus de recristallisation des grains de RS-RDX en RVI-RDX et VI-RDX réduit le nombre de défauts intra-granulaires mais modifie également la granulométrie en générant des grains de diamètre plus important et plus faible.

Les courbes expérimentales fournies par l'appareil de mesure sont automatiquement lissées (Fig. 5.11) ce qui peut tronquer l'analyse, notamment celle de la queue de distribution. De plus, les résultats étant présentés en volume et non en nombre, les plus grosses particules qui apparaissent dans la queue de distribution sont en réalité très peu nombreuses. Des courbes non lissées ont été recalculées par l'ISL à partir des données brutes. L'exploitation des courbes non lissées ne remet pas en cause les conclusions précédentes : la distribution de taille de grains de RS-RDX reste plus étroite que celle des deux autres matériaux. Nous utilisons les courbes non lissées pour comparer les diamètres obtenus expérimentalement avec ceux obtenus par analyse d'images.

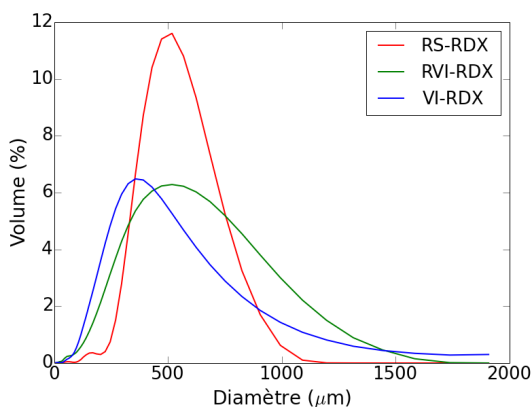


FIGURE 5.10 – Distributions des diamètres des grains de RDX obtenues expérimentalement

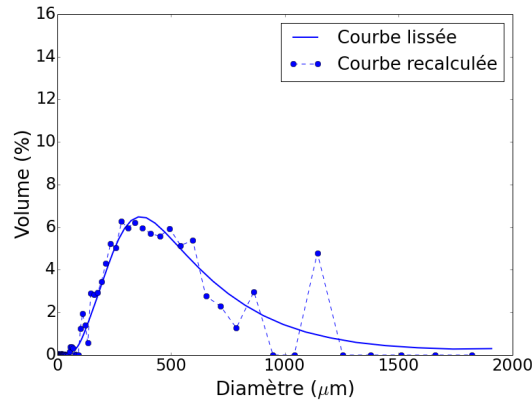


FIGURE 5.11 – Comparaison de la distribution de diamètre des grains de VI-RDX fournie par le dispositif de mesure expérimental (courbe lissée) avec la courbe recalculée à partir des données brutes

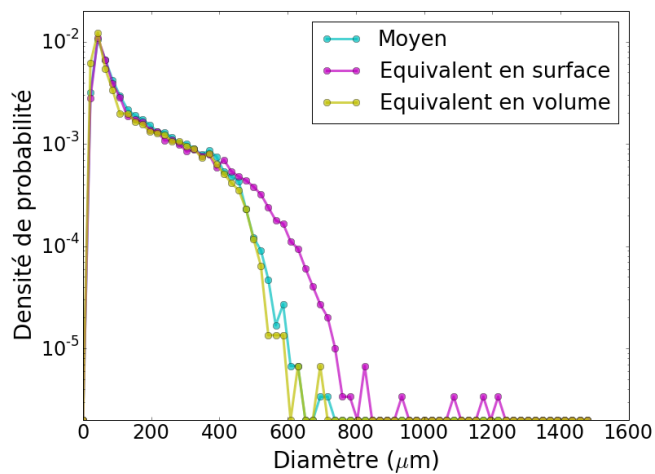
Nous exploitons les microtomographies segmentées en déterminant le diamètre de chaque grain extrait pour former la bibliothèque de grains. Nous disposons de 13623 grains de RS-RDX, 22149 grains de RVI-RDX et 25212 de VI-RDX (Tab. 5.3). En multipliant le volume de chaque grain par la masse volumique théorique du RDX, nous calculons que notre étude est réalisée sur 135 mg de RS-RDX, 122 mg de RVI-RDX et 118 mg de VI-RDX. Le diamètre moyen, le diamètre équivalent en surface et le diamètre équivalent en volume sont calculés pour chacun des grains. Le rayon moyen est égal à la distance moyenne entre le bord d'un grain et son centre de masse. Les diamètres équivalents en surface/volume correspondent aux diamètres d'une sphère de même surface/volume. La figure 5.12 compare, pour chacun des matériaux, les trois types de diamètre. Une échelle logarithmique est utilisée pour permettre de visualiser les différences qui sont peu marquées. Des résultats similaires sont obtenus pour les grains de RVI-RDX et VI-RDX (Fig. 5.12b et 5.12c). Le diamètre équivalent en volume est tout de même légèrement plus faible que les deux autres diamètres. Pour les grains de RS-RDX, les distributions des diamètres moyens et équivalents en volume sont quasiment identiques. En revanche, on obtient des diamètres plus importants en calculant le diamètre équivalent en surface (Fig. 5.12a). Ce phénomène peut s'expliquer par la présence des grains maclés. Ces derniers sont typiquement formés de trois cristaux qui s'interpénètrent. Le grain maclé est alors constitué de trois lobes et a une forme concave. Pour un même volume, un grain maclé a une surface plus grande qu'un grain de forme convexe. Son diamètre équivalent en surface est donc plus élevé que son diamètre équivalent en volume ou que son diamètre moyen.

Nous choisissons d'utiliser les diamètres équivalents en surface pour la comparaison avec les données expérimentales. Ce choix est effectué pour, d'une part, avoir la meilleure prise en compte des variations de formes des grains entre les trois type de RDX. D'autre part, l'utilisation du diamètre équivalent en surface permet une meilleure comparaison avec les résultats expérimentaux obtenus par SLS, s'appuyant sur la surface projetée des particules.

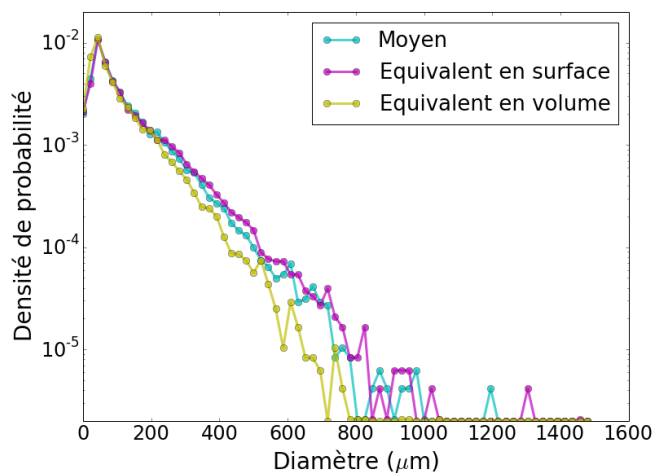
Lors de la création des bibliothèques de grains, seuls les grains complètement inclus dans le volume sont extraits. Les grains incomplets, sur les bords du volume, ne sont pas considérés. Or, la probabilité pour un gros grain de se trouver sur les bords du volume est plus importante que celle associée à un petit grain. Le nombre de grosses particules présentes dans le matériau est donc sous-estimé. Pour corriger ce biais, la correction de Miles-Lantuéjoul [237, 238] est appliquée. Le principe de cette correction est d'affecter à chaque grain A la probabilité $1/P(A \subset D)$ avec $P(A \subset D)$ la probabilité pour A de se trouver dans le volume D :

$$P(A \subset D) = \frac{(L - L_x)(L - L_y)(L - L_z)}{L^3} \quad (5.8)$$

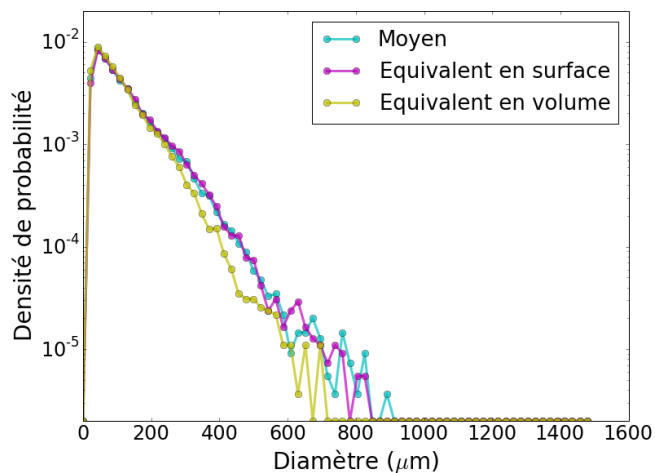
L_x , L_y et L_z sont les dimensions de la boîte minimale englobante orientée du grain noté A. L est la



(a)



(b)



(c)

FIGURE 5.12 – Comparaison de la distribution des diamètres moyens, équivalents en surface, équivalents en volume de la bibliothèque de grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX

longueur du volume cubique d'étude.

Nous comparons sur la figure 5.13 les diamètres équivalents en surface (avec et sans la correction de Miles-Lantuéjoul) avec les données expérimentales. La distribution pour les grains de RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX est déterminée par analyse d'images sur les quatre volumes segmentés de chaque matériau, ce qui représente respectivement 13623, 22149 et 25212 grains.

La distribution de diamètre obtenue par traitement d'images pour les grains de RS-RDX est légèrement décalée à gauche, vers les plus petites tailles, par rapport aux données expérimentales. Nous avons vu précédemment que les grains de RS-RDX sont parfois maclés, donc sur-segmentés après le processus de segmentation des microtomographies. Cela peut expliquer le fait que nous détectons moins de gros grains par traitement d'images par rapport aux données expérimentales.

Les distributions de diamètres mesurées expérimentalement et par traitement d'images pour les grains de RVI-RDX et VI-RDX sont similaires. De légers écarts sont visibles au niveau des queues de distributions, pour de larges diamètres. Toutefois, ces différences ne sont pas significatives car les figures représentent les distributions de diamètre selon le volume. Les écarts sur les queues de distribution sont, en réalité, liées à quelques grains de grand volume. Dans le cas du RVI-RDX, par exemple, seuls trois grains ont un diamètre équivalent en surface supérieur à 1100 μm . La queue de distribution pourrait être mieux représentée en augmentant la taille des volumes segmentés. Mais travailler sur des volumes de taille supérieure à 1000³, qui correspondent à environ 125 mg de grains, serait trop coûteux par rapport au gain de représentativité (voir section 5.2.2).

La comparaison est donc jugée satisfaisante en l'état pour les trois matériaux.

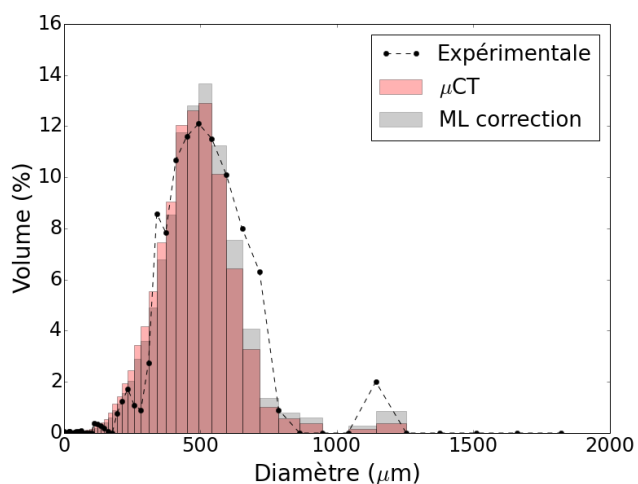
Comparaison des distributions de densité

La distribution cumulative des densités apparentes est déterminée expérimentalement par méthode de flottation [67, 68, 71]. Ces mesures de densité permettent d'évaluer le volume de défauts intra-granulaires. Une densité apparente inférieure à la densité maximale théorique ρ_{max} de 1,801 g/cm³ révèle la présence de pores occlus et/ou d'inclusions de solvant.

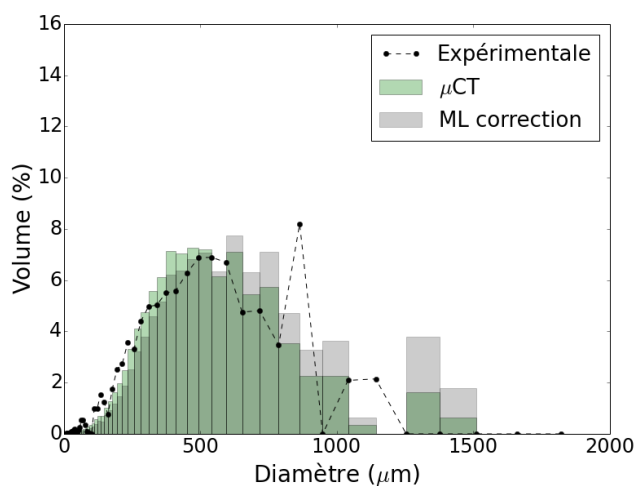
Le dispositif expérimental de flottation repose sur le principe d'Archimède. Les grains sont immergés dans une colonne contenant un liquide dont la densité est précisément connue. Après homogénéisation puis décantation du mélange, les grains les plus denses se retrouvent au fond de la colonne. Ils sont extraits, nettoyés, séchés et pesés. La densité du liquide est ensuite légèrement diminuée, puis les étapes d'homogénéisation, décantation et extraction sont reproduites. Ce processus est répété jusqu'à ce que la majorité des grains soient extraits. Les temps de décantation nécessaires étant longs (quelques heures), les mesures effectuées à l'ISL sont arrêtées lorsque 90 à 95 % des grains sont récupérés. La mesure est reproduite deux fois pour chaque lot sur deux échantillons indépendant d'au moins 7 g. Les résultats pour les trois types de grains de RDX sont présentés sur la figure 5.14.

L'effet de la recristallisation est clairement visible lorsque la distribution de densité des grains de RS-RDX est comparée à celle des grains recristallisés de RVI-RDX et VI-RDX (Fig. 5.14). Les grains de RS-RDX contiennent beaucoup de porosités occluses et/ou d'inclusions de solvant, leur densité est donc inférieure à la masse volumique théorique maximale de 1,801 g/cm³. Les grains recristallisés selon un processus spécifique et dédié, au contraire, ne contiennent quasiment aucun défaut intra-granulaire. La plupart des grains ont donc une densité proche de la densité théorique maximale. Une autre observation porte sur le fait que la distribution cumulative de densité est identique pour les grains de RVI-RDX et de VI-RDX. Ce résultat n'est pas surprenant puisque seule une étape de traitement de surface, n'ayant a priori aucun effet sur la porosité intra-granulaire, différencie ces deux types de RDX.

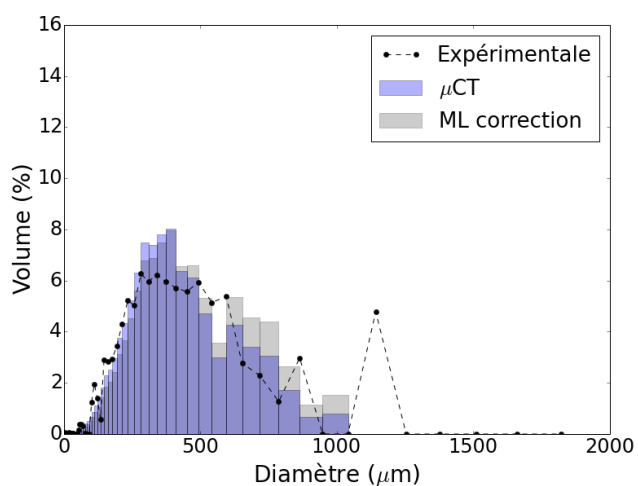
Nous utilisons ces résultats expérimentaux pour estimer la porosité intra-granulaire totale dans l'échantillon [67, 71]. Les calculs sont réalisés en utilisant deux hypothèses différentes. La première hypothèse consiste à considérer que tous les défauts intra-granulaires sont des cavités



(a)



(b)



(c)

FIGURE 5.13 – Comparaison des diamètres expérimentaux et des diamètres équivalents en surface obtenus par traitement d'images pour les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. Les distributions en couleurs sont celles obtenues sur les bibliothèques de grains, les distributions en gris sont celles obtenues après la correction de Miles-Lantuéjoul.

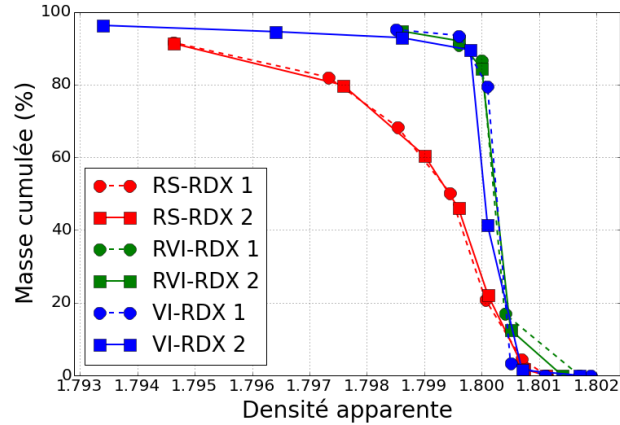


FIGURE 5.14 – Distributions cumulatives des densités des grains de RDX obtenues par méthode de flottation

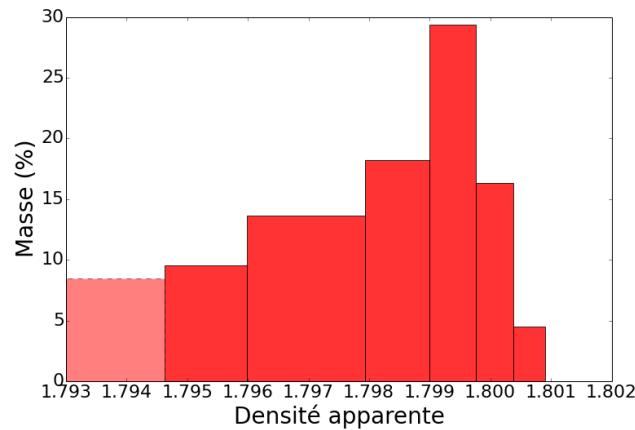


FIGURE 5.15 – Définition des classes de grains de RS-RDX à partir de la première mesure par méthode de flottation

remplies d'air, de densité nulle, nous parlerons de pores. La cristallisation des grains de RDX se faisant au sein d'un solvant, l'autre hypothèse consiste à considérer que toutes les cavités sont remplies d'un solvant de densité 1. En réalité, il a été démontré que les cavités contiennent de l'air, de la cyclohexanone (d'une densité de 0,95) et de l'eau [71]. La cyclohexanone et l'eau sont les solvants intervenant dans le processus de recristallisation. Des bulles d'air dans des cavités contenant du solvant, se déplaçant lorsque le cristal bouge, ont également été observées au microscope optique à l'ISL. Nos deux hypothèses représentent donc les deux cas limites si l'on suppose que le solvant saturé (ou partiellement saturé) de RDX n'a pas une densité trop supérieure à 1.

Les résultats expérimentaux permettent de définir des classes de grains. La première expérience menée sur les grains de RS-RDX, par exemple, relève 7 points d'acquisition définissant 6 classes de grains. La première classe est composée de grains ayant une densité comprise entre 1,8004 et 1,8009 et représente 4,53% de la masse totale de grains caractérisés (Fig 5.15). Nous supposons que les particules sont uniformément réparties dans chaque classe ce qui permet de calculer une densité moyenne d_j pour chaque classe avec l'équation (5.9). Les deux points d'acquisition de densité d_i et d_{i+1} définissent les bornes de la classe j .

$$\frac{2}{d_j} = \frac{1}{d_{i+1}} + \frac{1}{d_i}, \quad (5.9)$$

La méthode de flottation ne permet pas d'accéder à la totalité de la distribution de densités car lors du dernier point de mesure, il reste encore des grains en suspension. Les grains manquants, toujours en suspension à la fin de l'expérience, sont les grains les moins denses donc ceux qui contiennent le plus gros volume de défauts intra-granulaires (inclusions de solvant ou pores). Ces grains constituent une nouvelle classe que nous définissons de deux manières différentes.

- La première méthode consiste à supposer que tous les grains manquants ont une densité égale à celle du dernier point d'acquisition. Dans le cas de la première mesure sur les grains de RS-RDX, par exemple, cette classe est composée des grains avec une densité inférieure à 1,7946 et représente 8,44 % de la masse de grains étudiée. Le volume de défauts intra-granulaires (pores ou inclusions de solvant) calculé avec cette méthode est une sous-estimation du volume réel de défauts intra-granulaires.
- La deuxième méthode utilise les résultats de l'analyse d'images pour mieux définir la dernière classe de grains. Par analyse d'images, nous avons directement accès au volume de défauts intra-granulaires présent dans chaque grain. Nous pouvons donc facilement identifier le grain avec la densité la plus faible à partir du volume du grain V_{grain} et du volume de ses cavités $V_{cavité}$. Nous déterminons la densité du grain dans le cas où les cavités sont remplies d'air d'une densité quasi-nulle (porosités) et dans le cas où les cavités sont remplies d'un liquide de densité 1 (inclusions de solvant).

$$d_{grain} = \frac{d_{max}V_{grain} + d_{incl}V_{cavité}}{V_{grain} + V_{cavité}} \quad (5.10)$$

Nous utilisons cette valeur de densité minimale pour définir la borne inférieure de la classe des grains manquants. La borne supérieure est donnée par la densité du dernier point d'acquisition de la mesure par flottation. Cette deuxième méthode de calcul est une meilleure estimation de la fraction volumique réelle de défauts intra-granulaires car la précision de la mesure s'améliore pour les grains de faible densité. Toutefois, le volume de défauts intra-granulaires déterminé avec cette méthode est probablement une sur-estimation du volume réel car on suppose que les grains sont répartis uniformément au sein de la classe. Il est probable qu'en réalité, on trouve peu de grains avec une densité volumique proche de la borne inférieure et plus de grains avec une densité proche de la borne supérieure.

La fraction volumique de défauts intra-granulaires est calculée, pour chaque classe, selon les deux méthodes et avec les deux hypothèses (les défauts intra-granulaires sont des porosités ou des inclusions de solvant) avec la relation :

$$\Phi_j = \frac{d_{max} - d_j}{d_{max} - d_{incl}} \quad (5.11)$$

Finalement, la fraction volumique totale de défauts intra-granulaires est calculée. Ces résultats sont comparés avec la fraction volumique totale de défauts intra-granulaires déterminée par analyse d'images sur les microtomographies segmentées (Tab. 5.5).

Les résultats, résumés dans le tableau 5.5, indiquent que la fraction volumique de défauts intra-granulaires est différente pour les deux expériences menées sur les grains de VI-RDX. En effet, en supposant que les défauts sont des pores, la fraction volumique calculée à partir de la première mesure en utilisant uniquement les données expérimentales (méthode 1) est de 0,047 % tandis que celle calculée à partir de la deuxième mesure est de 0,069 %. Cet écart se justifie par un plus grand nombre de points d'acquisitions pour de faibles densités lors de la deuxième mesure (Fig. 5.14). Ce résultat souligne l'importance du dernier point d'acquisition expérimental et le fait que le calcul du volume total de défauts intra-granulaires dépend de la précision de la mesure pour les grains de faible densité. Le volume de défauts déterminé en exploitant à la fois les données expérimentales et le traitement d'images (méthode 2) est plus de deux fois supérieur à celui déterminé avec la méthode 1. L'utilisation de la deuxième méthode pour calculer la fraction volumique de défauts réduit la variance entre les deux mesures effectuées sur les grains de VI-RDX.

TABLEAU 5.5 – Fraction volumique totale de défauts intra-granulaires (en %) déterminée selon deux méthodes et deux hypothèses. La première méthode utilise uniquement les données expérimentales pour calculer la fraction volumique de défauts. La deuxième méthode combine les données expérimentales avec le traitement d'images pour obtenir une meilleure précision. Chaque calcul est mené en supposant que les défauts sont soit des pores, soit des inclusions de solvant.

Cavités remplies de ...	RS-RDX		RVI-RDX		VI-RDX	
	air	solvant	air	solvant	air	solvant
Méthode 1 exp. 1	0,126	0,284	0,0409	0,0919	0,0474	0,107
Méthode 1 exp. 2	0,126	0,284	0,0452	0,102	0,0694	0,156
Moyenne	0,126	0,284	0,0430	0,0968	0,0584	0,131
Méthode 2 exp. 1	0,460	0,591	0,183	0,229	0,135	0,189
Méthode 2 exp. 2	0,471	0,601	0,126	0,177	0,131	0,207
Moyenne	0,465	0,596	0,155	0,203	0,133	0,198
Analyse d'images	0,403		0,090		0,119	

D'une manière générale, l'utilisation de la deuxième méthode de calcul donne une estimation plus précise du volume des défauts intra-granulaires.

Le volume de défauts intra-granulaires déterminé par traitement d'images est, théoriquement, supérieur à celui obtenu expérimentalement en supposant que les défauts sont des pores, et calculé avec la première méthode (qui est une sous-estimation du volume réel). Le volume par traitement d'images doit également être inférieur à celui obtenu expérimentalement en supposant que les défauts sont des inclusions de solvant, et calculé avec la deuxième méthode (qui est une sur-estimation du volume réel). Dans notre étude, le cas extrême consiste à considérer que les cavités sont remplies d'un solvant d'une densité de 1. Or, le solvant piégé dans les cavités est un solvant saturé de RDX, sa densité pourrait donc être supérieure à 1, ce qui augmenterait la valeur de la borne supérieure. Les valeurs obtenues par traitement d'images sont bien comprises entre les deux bornes théoriques. Nous sommes néanmoins conscients que nous ne détectons pas correctement une partie des défauts intra-granulaires par traitement d'images. En effet, le microtomographe SkyScan ne détecte pas les éléments inférieurs à environ 3 μm , nous sommes donc incapables de considérer les plus petits défauts ce qui pourrait expliquer en partie la sous-estimation du volume de pores. Le processus de traitement d'images sur les microtomographies, et particulièrement l'étape de filtrage, est également susceptible de réduire la taille ou de supprimer certains défauts intra-granulaires. La mesure de flottation, au contraire, détecte les cavités de taille inférieure au micron mais est moins précise pour détecter les plus grosses cavités. La combinaison du traitement d'images avec une mesure de flottation permet d'obtenir une meilleure estimation de la fraction volumique de défauts intra-granulaires. L'utilisation d'un seul de ces deux moyens entraîne une sous-estimation de la fraction volumique de défauts intra-granulaires.

L'exploitation des résultats du tableau 5.5 nous fournit une dernière information sur l'effet de la recristallisation. Conformément à nos attentes, le volume de défauts intra-granulaires dans les grains de RVI-RDX et VI-RDX est près de 50 % inférieur à celui dans les grains de RS-RDX. Cette observation souligne l'importance et l'efficacité de la recristallisation.

Pour finir notre analyse, nous comparons sur les figures 5.17 les distributions de densités apparentes cumulées en masse obtenues expérimentalement avec celles obtenues par traitement d'images sur nos bibliothèques de grains. Pour rappel, la densité de chaque grain constituant la bibliothèque est calculée avec l'équation (5.10). Nous supposons que les cavités dans les grains sont, soit remplies d'air (densité de 0,0), soit remplies d'un solvant (densité de 1,0).

Les distributions sont davantage conformes aux résultats expérimentaux avec l'hypothèse que les défauts sont des inclusions de solvant. On trouve des courbes similaires pour les grains de RVI-RDX et de VI-RDX qui contiennent peu de défauts. Pour le RS-RDX, en revanche, la courbe expérimentale ne se situe pas entre les courbes d'analyse d'images avec l'hypothèse des porosités et avec l'hypothèse des inclusions. Cet écart pourrait s'expliquer par le fait que le solvant saturé

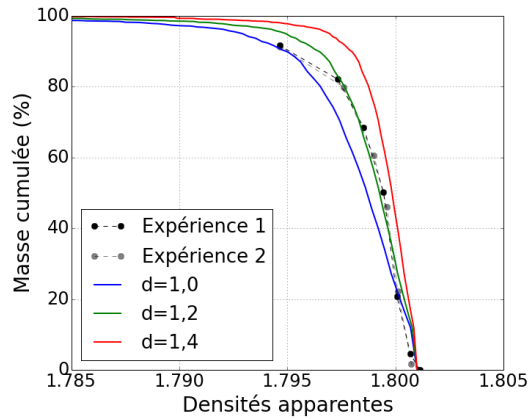
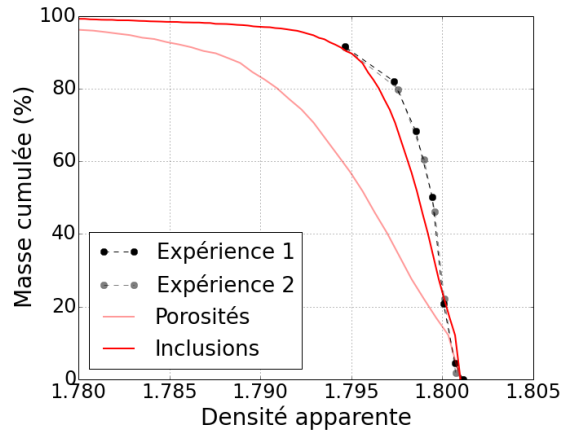


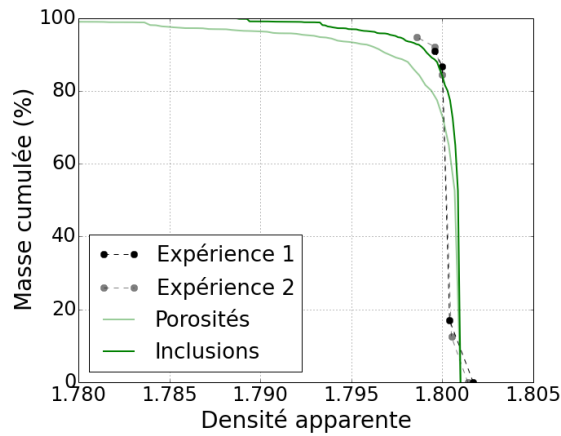
FIGURE 5.16 – Détermination de la densité du solvant dans les inclusions pour que la distribution cumulative de densité apparente des grains de RS-RDX obtenue par traitement d'images corresponde aux résultats expérimentaux

de RDX a une densité supérieure à 1. Pour reproduire au mieux les résultats expérimentaux, la densité des grains calculée à partir des microtomographies doit être réalisée en considérant que les défauts intra-granulaires sont remplis d'un solvant d'une densité de 1,2 (Fig. 5.16).

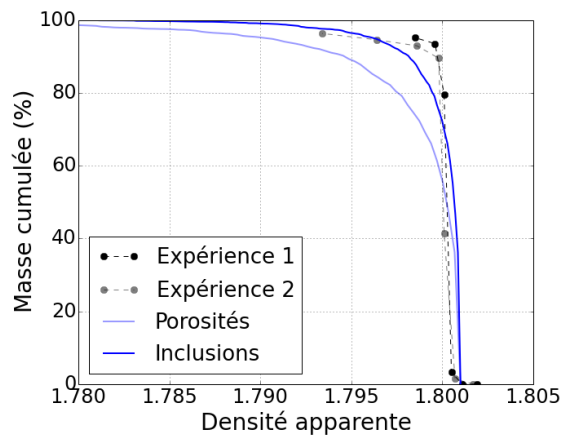
D'une manière générale, les résultats obtenus par analyse d'images sont similaires à ceux obtenus expérimentalement sous l'hypothèse que les défauts sont des inclusions de solvant. Il faut garder en mémoire que nous travaillons sur des matériaux contenant très peu de défauts intra-granulaires, à l'exception des grains du lot de RS-RDX. L'estimation de leur volume est donc complexe et très sensible à la résolution des images, aux nombres de points d'acquisitions expérimentales, à la densité du solvant choisi... La comparaison donne donc de bons résultats même si de légers écarts sont observés.



(a)



(b)



(c)

FIGURE 5.17 – Comparaison des distributions cumulatives de densités obtenues expérimentalement et par analyse d'images pour les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. Les cavités visibles par traitement d'images dans les grains sont considérées comme remplies d'air (courbes claires) ou d'un solvant d'une densité de 1,0 (courbes foncées).

5.3 Conclusions sur la segmentation des microtomographies

Les microtomographies de trois matériaux RDX/cire (70/30 en masse) avec différentes microstructures sont filtrées et segmentées. Le logiciel de segmentation SAMG, développé pendant la thèse de T. Chabardes [172] sur la base des travaux de G. Contesse [24], a été utilisé pour segmenter les microtomographies. Nous avons ensuite vérifié que les volumes segmentés sont représentatifs. Cette vérification s'effectue de deux manières :

- par l'étude de la variance de la fraction volumique en fonction de la taille du volume segmenté;
- par comparaison des distributions de diamètres et de densités apparentes des grains obtenus expérimentalement par l'ISL et par traitement d'images.

La première vérification permet de déterminer l'erreur relative sur la fraction volumique lorsqu'on travaille sur des volumes de 1000^3 voxels. Les erreurs relatives calculées sont de 0,58 % pour le RS-RDX/cire, de 1,41 % pour le RVI-RDX/cire et de 1,50 pour le VI-RDX. Pour travailler avec moins de 1 % d'erreur, il faudrait travailler avec des volumes de taille supérieure à 655^3 voxels pour le RS-RDX/cire, 1357^3 voxels pour le RVI-RDX et à 1471^3 voxels pour le VI-RDX/cire. Nous considérons que les erreurs relatives actuelles sont acceptables, et que les volumes de 1000^3 sont représentatifs.

La seconde vérification permet de contrôler la fiabilité des segmentations. Pour ce faire, nous comparons des distributions de diamètres et de densités apparentes obtenues expérimentalement par l'ISL avec celles obtenues par analyse des volumes segmentés. La comparaison des distributions de diamètres est satisfaisante. L'étude de la distribution des densités nous permet de déterminer la fraction volumique totale de défauts intra-granulaires. La combinaison des données expérimentales et de l'analyse d'images nous fournit de meilleurs résultats qu'en utilisant un seul des moyens de caractérisation. En effet, on s'aperçoit que par analyse d'images, les plus petits défauts ne sont pas détectés car la résolution du microtomographe est insuffisante. La microtomographie permet, en revanche, d'accéder à la densité des grains contenant le plus de défauts intra-granulaires ce qui n'est pas le cas du dispositif expérimental. La comparaison entre les données expérimentales et l'analyse d'images des microtomographies, dans le domaine où les deux méthodes fournissent des résultats exploitables, est satisfaisante.

Pour résumer, les volumes segmentés sont suffisamment grands pour être représentatifs de l'ensemble de la microstructure et l'outil de segmentation SAMG est validé car les segmentations sont fiables et exploitables. Les volumes segmentés des trois matériaux d'étude sont caractérisés dans le chapitre suivant pour identifier les similarités et les différences entre les trois microstructures.

Nous avons présenté brièvement dans la section 3.3.2 l'apport des algorithmes d'apprentissage automatique dans le traitement d'images. Ce type d'algorithme a besoin, avant d'être fonctionnel, d'une phase d'entraînement sur une base de données. L'utilisation des algorithmes d'apprentissage automatique pour la segmentation de milieux granulaires nécessite donc, dans un premier temps, un grand nombre de volumes correctement segmentés. Les segmentations obtenues avec le code SAMG sur nos trois matériaux d'étude pourraient servir à constituer une base d'apprentissage.

Chapitre 6

Caractérisation des microtomographies segmentées

Le chapitre précédent a présenté les paramètres permettant de segmenter les microtomographies de nos trois matériaux RDX/cire. Nous avons montré que les volumes segmentés étaient suffisamment grands et nombreux pour être représentatifs de l'ensemble de la microstructure. Nous avons également montré que les segmentations étaient fiables et exploitables.

Ce chapitre présente les mesures effectuées pour caractériser les trois types de microstructures segmentées. Dans un premier temps, une caractérisation globale est effectuée en mesurant :

- la granulométrie morphologique par ouverture ;
- la covariance spatiale ;
- le module d'élasticité isostatique (ou module de compressibilité) ;
- les points de contact entre les grains.

Dans un second temps, chaque grain extrait des microtomographies segmentées est caractérisé avec une série de descripteurs : volume, surface, sphéricité, convexité, angularité... Nous nous intéresserons plus particulièrement aux descripteurs permettant de mesurer l'angularité d'un objet.

6.1 Caractérisation morphologique et globale

Les microstructures des trois matériaux d'étude sont caractérisées avec les outils de mesure morphologiques introduits dans le chapitre 3.2.3 : la granulométrie par ouverture et la covariance spatiale. Le module d'élasticité isostatique, un descripteur permettant d'évaluer la réponse mécanique des matériaux à la déformation, est également calculé par méthode *Fast Fourier Transform* (FFT). Comme on le verra, ces calculs soulignent l'importance des points de contact entre les grains, soit de la connectivité de la phase des grains de RDX, sur les propriétés mécaniques. Suite à ces résultats, la connectivité et les surfaces de contact entre les grains sont déterminées pour chacun des matériaux.

6.1.1 Granulométrie par ouverture

La courbe granulométrique est obtenue suite à une série d'ouvertures de taille croissante. Cette courbe permet de déterminer les tailles caractéristiques d'un ensemble. Dans notre cas, cet ensemble peut représenter les grains de RDX ou bien son complémentaire (le liant). Les ouvertures de taille croissante suppriment de l'ensemble des objets de plus en plus grands. La courbe

granulométrique obtenue est, par définition (section 3.2.3), équivalente à une probabilité de densité cumulée.

Un élément structurant cubique est utilisé pour déterminer la granulométrie par ouverture des grains de RDX ainsi que du liant (Fig. 6.1)). Il y a peu de variations entre les courbes granulométriques des différents volumes d'un même matériau (Fig. 6.1b, 6.1d et 6.1f). La variation la plus importante a lieu pour le matériau à base de VI-RDX. En effet, le volume VIe a une granulométrie différente avec plus de grains disparaissant pour des ouvertures de taille 10-20. Il s'agit d'un volume atypique. Ce n'est pas surprenant d'observer de plus grandes variations sur ce matériau, car il s'agit du matériau pour lequel l'erreur relative sur la fraction volumique de RDX est la plus élevée (section 5.2.2).

En revanche, les courbes granulométriques du liant pour différents volumes d'un même matériau sont identiques (Fig. 6.1b, 6.1d et 6.1f). Cette reproductibilité d'un volume à l'autre montre une fois de plus que nous travaillons avec des volumes représentatifs de l'ensemble de la microstructure.

Une comparaison des courbes granulométriques entre les trois matériaux pour les grains et le liant est présentée sur la figure 6.2. Une différence de granulométrie entre les trois matériaux est visible (Fig. 6.2a). La taille maximale des grains de RVI-RDX et de VI-RDX est identique et presque deux fois supérieure (ouverture de taille 50) à la taille maximale de grains de RS-RDX (ouverture de taille 35). De plus, les courbes granulométriques de RS-RDX sont plus étroites que celles des grains recristallisés. Nous pouvons tirer les mêmes conclusions que celles faites lors de l'étude de la distribution des diamètres (section 5.2.3) : la recristallisation modifie la granulométrie en générant des grains de plus grosse taille.

Les courbes granulométriques du liant pour les matériaux à base de RVI-RDX et de VI-RDX sont identiques. Les courbes granulométriques du liant pour le matériau à base de RS-RDX indiquent qu'il y a de plus grandes zones de liant par rapport aux deux autres matériaux. La présence de grandes zones de liant suggère que les grains de RS-RDX sont répartis de manière moins homogène dans le milieu. D'autres facteurs peuvent également influencer les courbes granulométriques de liant comme la non convexité des grains maclés de RS-RDX.

6.1.2 Covariance spatiale

La covariance spatiale est mesurée sur chacun des sous-volumes segmentés (Fig. 6.3). On rappelle que $C_X(0)$ correspond à la fraction volumique p de la phase X (ici la phase des grains). La pente à l'origine, liée à la probabilité que deux points proches soient dans la même phase, est proportionnelle à la surface spécifique de grains. La baisse importante de la covariance correspond ainsi majoritairement à l'extinction des plus petites particules. Lorsqu'il n'y a plus de corrélations (au sens de la covariance spatiale), la covariance tend vers une asymptote en p^2 .

La covariance spatiale est similaire sur les volumes segmentés d'un même matériau (Fig. 6.3). La fraction volumique de RDX étant légèrement différente d'un volume à l'autre, $C_X(0)$ et l'asymptote peuvent également être légèrement différentes. Ce phénomène est particulièrement visible pour le RVI-RDX (Fig. 6.3b) où la fraction de RDX du volume noté RVIe est bien plus élevée ($f_{RDX} = 0,578$) que dans les autres volumes. Nous calculons des coefficients de corrélation de Pearson de 0,9999, de 0,9978 et de 0,9987 entre les quatre volumes segmentés des trois matériaux à base de RS-RDX, RVI-RDX et de VI-RDX. Ces coefficients de corrélation élevés indiquent que les covariances spatiales entre les différents volumes d'un même matériau sont similaires, malgré des différences de fraction volumique.

La covariance spatiale entre les trois matériaux est également très proche avec un coefficient de corrélation minimum de 0,9928 entre les volumes RSd et VIb (Fig. 6.4). Cette mesure ne permet

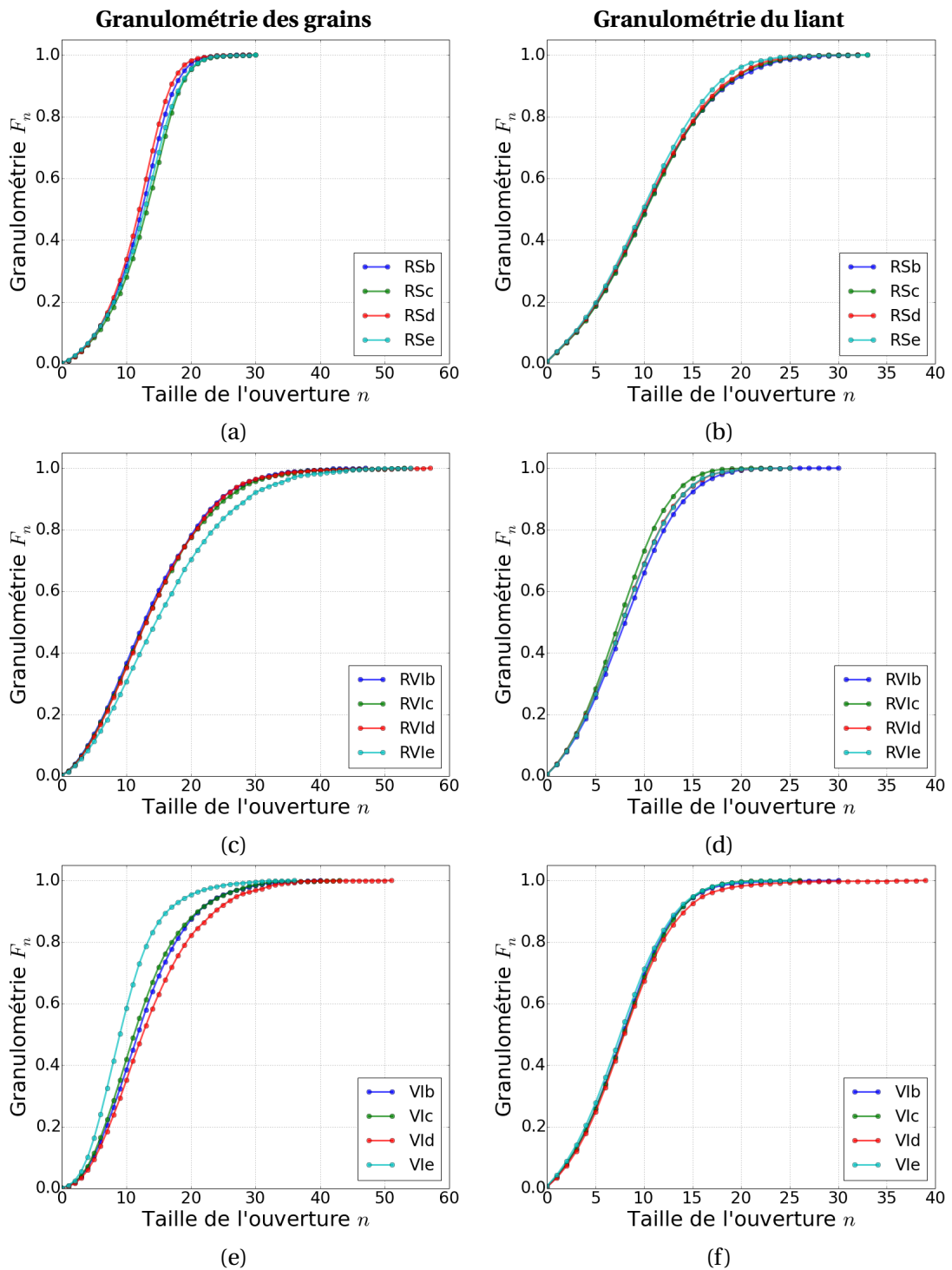


FIGURE 6.1 – Granulométrie par ouverture des grains de RDX et du liant pour les matériaux (a-b) RS-RDX/cire, (c-d) RVI-RDX/cire et (e-f) VI-RDX/cire.

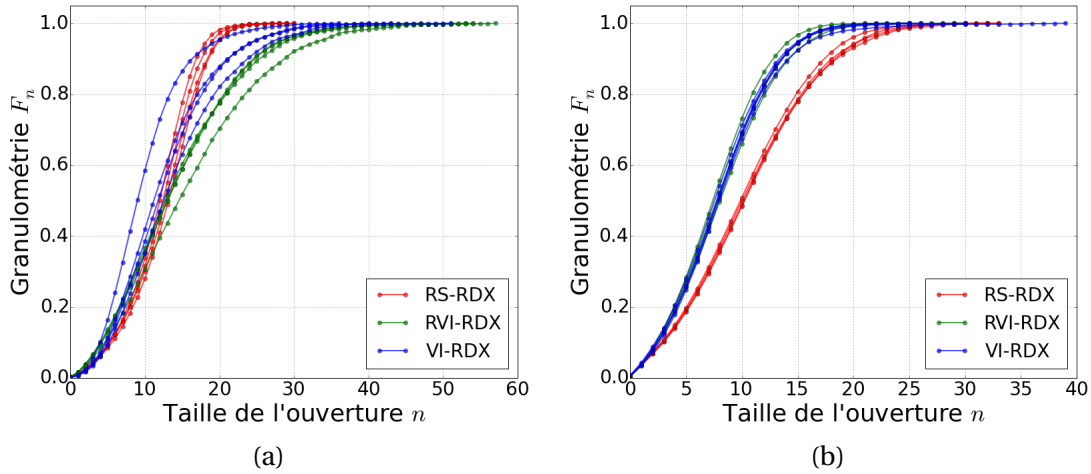


FIGURE 6.2 – Comparaison des courbes granulométriques des trois matériaux pour (a) les grains de RDX et (b) le liant

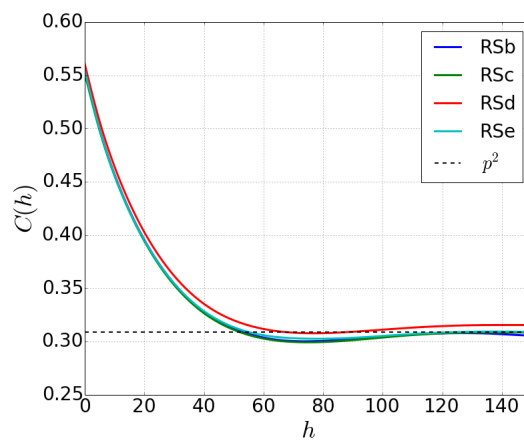
donc pas de faire la distinction entre les trois types de microstructures. Nous remarquons que la covariance spatiale atteint l'asymptote en p^2 pour environ $h = 50$ pixels, ce qui est plus grand que la taille maximale des ouvertures de la courbe granulométrique. Ce phénomène souligne la présence de corrélations sur de longues distances. Ce type de corrélation apparaît généralement dans des modèles de particules rigides interdisant l'interpénétration entre les particules [239], ce qui est notre cas.

6.1.3 Module de compressibilité

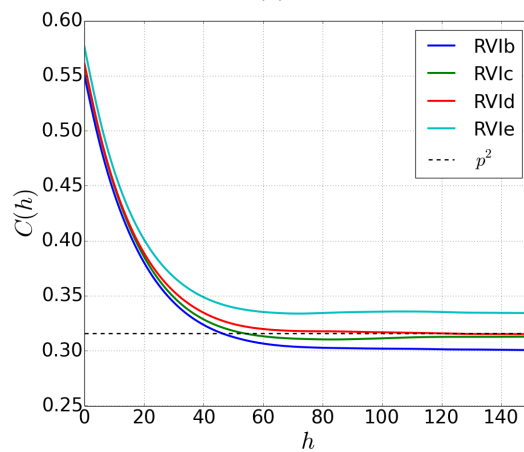
Le dernier descripteur que nous déterminons est le module d'élasticité isostatique K (*bulk modulus* en anglais) également appelé module de compressibilité. Cette grandeur décrit le comportement mécanique du matériau en compression. Un module de compressibilité élevé signifie que le matériau est rigide en compression.

Le module de compressibilité est calculé avec des simulations *Fast Fourier Transform* (FFT). Cette méthode de résolution, introduite par Moulinec et Suquet [240], a tout d'abord été utilisée pour résoudre des problèmes d'homogénéisation en mécanique. Les méthodes d'homogénéisation permettent le changement d'échelle dans la modélisation d'un matériau hétérogène. En connaissant la microstructure du matériau et les propriétés de ses constituants, il est possible d'accéder par homogénéisation à sa description à l'échelle macroscopique. Dans un premier temps, les méthodes de résolution FFT ne calculaient les champs complets (déformations, contraintes) que pour des problèmes élastiques. On trouve maintenant des études prenant en compte la viscoplasticité [241] et le phénomène de fissuration [7, 242]. La résolution FFT s'effectue directement sur des images 2D ou 3D de microstructures. Il n'est donc pas nécessaire de mailler la géométrie, contrairement aux méthodes de résolution par éléments finis, ce qui facilite le traitement de microstructures hétérogènes complexes. Les résultats fournis par méthode FFT ou éléments finis sont généralement similaires. Toutefois, les simulations FFT sont moins coûteuses en mémoire [243].

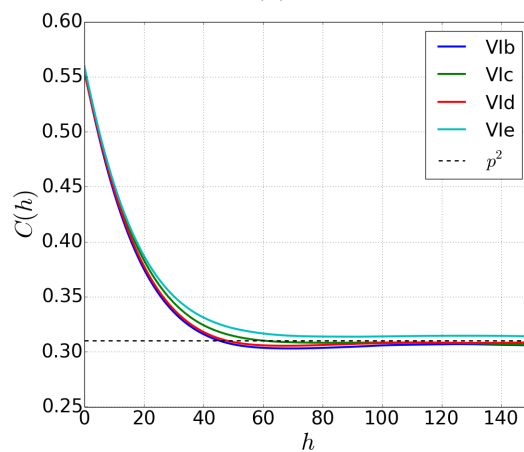
Les lois constitutives du milieu sont traitées dans l'espace des réels, tandis que l'équilibre des contraintes et les déformations admissibles sont traités dans le domaine de Fourier. Le passage de l'espace des réels au domaine de Fourier est réalisé par des transformées de Fourier rapides. Les méthodes de résolution FFT utilisent l'opérateur de Green associé aux problèmes élastiques linéaires [244], et imposent des conditions aux limites périodiques. Plusieurs variantes dans les schémas de résolution FFT ont été proposées au cours du temps. Nous utilisons ici un opérateur de Green « discret » [245] qui améliore la précision des champs aux interfaces. Ce schéma FFT a notamment été employé pour des problèmes d'homogénéisation sur des matériaux énergé-



(a)



(b)



(c)

FIGURE 6.3 – Covariance spatiale des grains de RDX pour les matériaux à base de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX. L'asymptote p^2 est tracé en pointillés noirs avec p égal à la moyenne de la fraction volumique sur les quatre volumes segmentés de chaque matériau (Tab. 5.3).

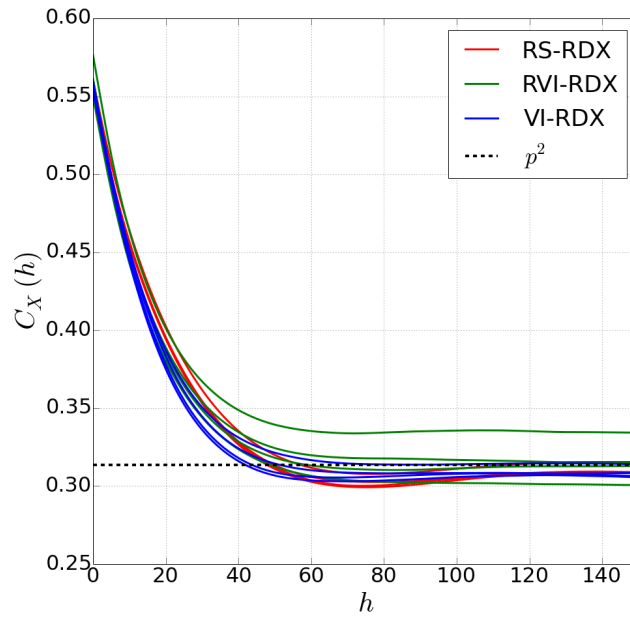


FIGURE 6.4 – Comparaison des covariances spatiales entre tous les volumes segmentés. L'asymptote p^2 est tracée pour une valeur p égale à la fraction volumique théorique de RDX de 0,56.

tiques [246].

Nous notons $\underline{\sigma}(\vec{x})$ le tenseur des contraintes et $\underline{\varepsilon}(\vec{x})$ le tenseur des déformations au point de coordonnées \vec{x} . \mathbb{C} est le tenseur élastique et \vec{u} est le vecteur déplacement.

Les différents volumes segmentés subissent une déformation hydrostatique isotherme de 1 %, c'est à dire que $\langle \text{tr}(\underline{\varepsilon}(\vec{x})) \rangle = 1 \%$, $\langle \cdot \rangle$ est une moyenne spatiale sur la cellule élémentaire du milieu périodique. Étant donné que nous travaillons sur des volumes microtomographiés, un élément correspond à un voxel. Les grains de RDX et le liant sont modélisés par une loi élastique $\underline{\sigma}(\vec{x}) = \mathbb{C}(\vec{x}) : \underline{\varepsilon}(\vec{x})$. Les coefficients du tenseur élastique de la cire, matériau isotrope, sont ceux introduits dans la partie 4.2.2. Les coefficients élastiques du RDX proviennent de mesures par spectroscopie de Brillouin [210] et sont introduits dans la section 4.1.2. Les grains de RDX ayant un comportement anisotrope, l'orientation de chaque grain est choisie aléatoirement par rotation du tenseur élastique. On fait l'hypothèse des petites déformations Eq. (6.1), de l'équilibre quasistatique et on applique des conditions aux bords périodiques.

$$\varepsilon_{ij}(\vec{x}) = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (6.1)$$

Le système d'équations aux dérivées partielles $\text{div} \underline{\sigma} \equiv 0$ est résolu par méthode FFT. Après s'être assuré de la convergence de l'algorithme, nous déterminons le module de compressibilité K (Eq. (6.2)) pour chacun des volumes noté Ω :

$$K = \frac{1}{3} \frac{\text{tr}(\langle \underline{\sigma}(\vec{x}) \rangle_{\Omega})}{\text{tr}(\langle \underline{\varepsilon}(\vec{x}) \rangle_{\Omega})} \quad (6.2)$$

Les résultats sont consignés dans le tableau 6.1. Les modules de compressibilité sont, à quelques exceptions près, similaires pour les différents volumes d'un même matériau. Le module de compressibilité du volume VIe est plus élevé que celui des trois autres volumes de VI-RDX/cire. C'est également dans ce volume que nous avons obtenu une granulométrie légèrement différente, avec

TABLEAU 6.1 – Modules de compressibilité pour les volumes des matériaux RS-RDX/Cire, RVI-RDX/Cire et VI-RDX/Cire

Nom du volume	K (GPa)
RSb	0,475
RSc	0,467
RSc	0,472
RSd	0,471
RVIb	0,527
RVIc	0,530
RVI d	0,581
RVIe	0,595
VIb	0,385
VIc	0,389
VI d	0,362
VIe	0,411

TABLEAU 6.2 – Moyenne du module de compressibilité K obtenue sur les quatre volumes d'étude de chaque matériau. L'écart type est indiqué entre parenthèses.

Matériau	RS-RDX/cire	RVI-RDX/cire	VI-RDX/cire
K (GPa)	0,471 (0,003)	0,558 (0,030)	0,387 (0,017)

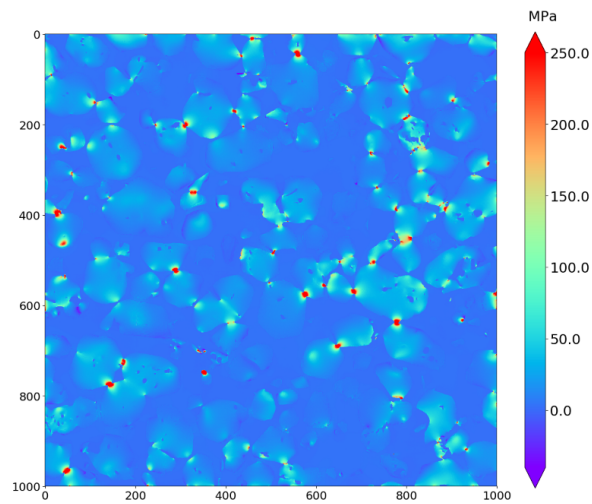
davantage de petits grains (Fig. 6.2). Les deux matériaux RVIc et RVI d ont aussi des modules de compressibilité plus élevés que les autres volumes du même matériau. Nous avons vu dans la section 5.2.1 que ces deux volumes RVIc et RVI d ont des fractions volumiques de RDX plus élevées (Tab. 5.2). Ces différences de modules de compressibilité indiquent une dépendance à la fraction volumique de grains et à la granulométrie.

La différence de module de compressibilité entre les trois matériaux, donc entre les trois microstructures, est bien visible. Les modules de compressibilité moyennés sur les quatre volumes étudiés sont mentionnés dans le tableau 6.2. Le matériau VI-RDX/cire est le matériau le plus souple avec $K \approx 0,39$ GPa, c'est également le moins sensible au choc (section 4.3). Les matériaux RS-RDX/cire et RVI-RDX/cire ont des sensibilités au choc similaires, mais des modules de compressibilité différents.

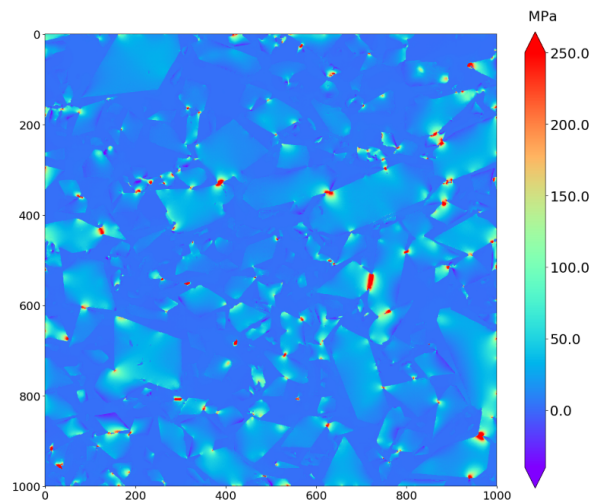
Le champ des contraintes moyennes $1/3 \text{tr}(\sigma(\mathbf{x}))$ dans une coupe extraite d'un volume pour chaque type de microstructure est présenté sur la figure 6.5. Les zones de fortes concentrations de contraintes se situent aux points de contact entre les grains. Ce phénomène a déjà été observé dans une autre étude sur des microstructures granulaires d'un autre type [247]. Les contraintes dans le liant sont bien plus faibles du fait de la relative souplesse de ce constituant.

Nous étudions l'histogramme des contraintes moyennes sur la figure 6.6 pour les différents volumes étudiés. Nous remarquons tout d'abord la bonne reproductibilité entre les différents sous-volumes d'un même matériau. L'analyse des queues de distribution (Fig. 6.6a) indique que le matériau à base de VI-RDX atteint des contraintes moyennes plus faibles que les deux autres matériaux. Ce matériau a également la distribution la plus étroite. Le matériau avec les contraintes moyennes les plus élevées est le RVI-RDX/cire. Pour les trois matériaux, l'histogramme des contraintes moyennes dans les grains et dans le liant présente une queue de distribution asymétrique similaire à des lois de puissance. Ces résultats sont cohérents avec d'autres études élastiques réalisées sur des polycristaux [248].

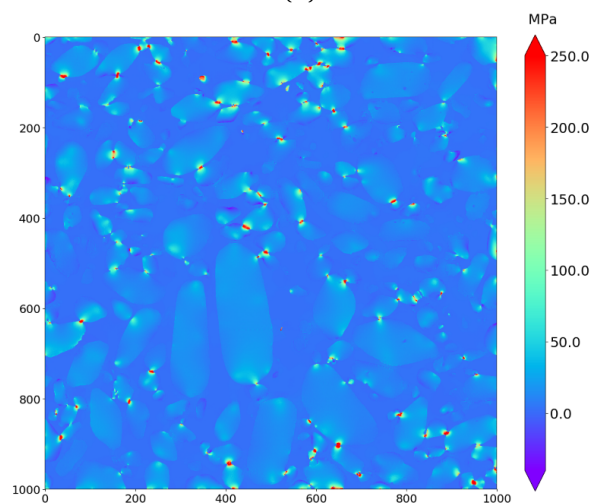
Les bornes supérieures et inférieures d'Hashin-Shtrikman [249] sont calculées pour vérifier que les modules de compressibilité obtenus par calculs FFT sont cohérents. La détermination des



(a)



(b)



(c)

FIGURE 6.5 – Coupes extraites de volumes de 1000^3 voxels des contraintes moyennes pour les matériaux à base de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX

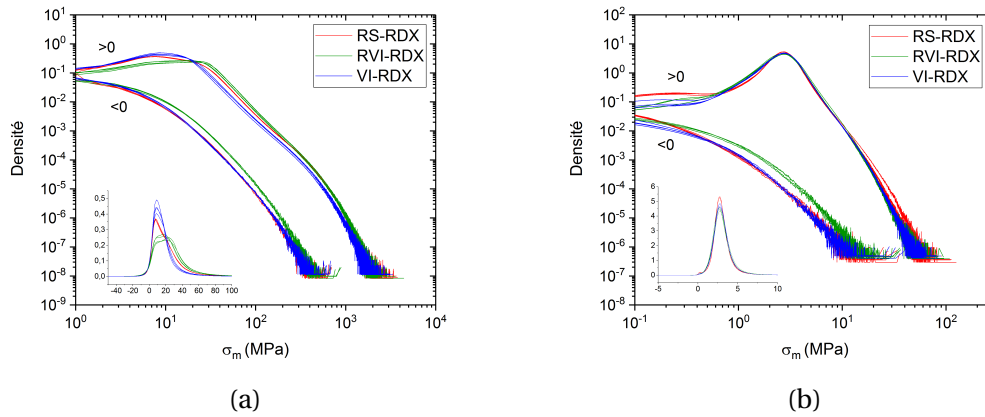


FIGURE 6.6 – Distributions des contraintes moyennes, dans les quatre volumes de chaque matériau, sur une échelle logarithmique dans (a) les grains de RDX et (b) dans le liant. La valeur absolue des contraintes moyennes négatives est également tracée pour faire apparaître les contraintes moyennes négatives. Les distributions sur une échelle linéaire sont présentées sur la sous-figure en bas à gauche.

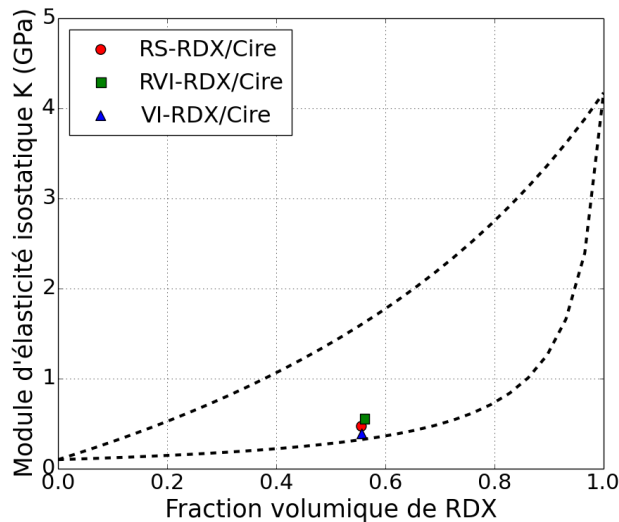


FIGURE 6.7 – Bornes d'Hashin-Shtrikman pour les matériaux RDX/Cire. Les modules d'élasticité isostatiques moyens calculés à partir des quatre volumes de chaque matériau sont également indiqués.

bornes d'Hashin-Shtrikman s'effectue sur des matériaux isotropes composés de plusieurs constituants dont les propriétés sont connues. Ces bornes analytiques encadrent la solution exacte et se calculent à partir de la fraction volumique et des propriétés mécaniques des constituants. Les calculs sont effectués avec un module de compressibilité pour la cire $K_{cire} = 29,5$ MPa et pour le RDX $K_{RDX} = 11,8$ GPa (module de compressibilité calculé à partir des données expérimentales de spectroscopie de Brillouin [212] présentées dans le tableau 4.4).

Les bornes d'Hashin-Shtrikman sont tracées en fonction de la fraction volumique de RDX sur la figure 6.7. Les modules de compressibilité moyens obtenus pour les trois matériaux sont également indiqués. Ils se trouvent entre les deux bornes, proche de la borne inférieure.

6.1.4 Points de contact

Les coupes présentant les champs des contraintes moyennes dans les différents matériaux (Fig. 6.5) ont mis en évidence l'importance des points de contact. Par conséquent, nous étudions le nombre de points de contact et la surface de contact entre les grains pour chaque volume seg-

TABLEAU 6.3 – Moyenne de la connectivité et de la surface de contact par grain sur les quatre volumes segmentés. L'écart type est présenté entre parenthèses.

Matériau	RS-RDX/Cire	RVI-RDX/Cire	VI-RDX/Cire
Connectivité moyenne	2,53 (0,02)	2,82 (0,21)	2,61 (0,10)
Connectivité totale	8626 (280)	15457 (1219)	16482 (737)
Surface de contact moyenne (en μm^2)	1993 (143)	1501 (202)	1006 (55)
Surface de contact totale (en μm^2)	2,71 (0,04). 10^7	3,27 (0,06). 10^7	2,54 (0,04). 10^7

menté.

Les points de contact détectés dépendent de la résolution du microtomographe. En effet, deux grains sont vus comme en contact lorsqu'ils sont plus proches que la résolution d'un voxel. Dans notre cas, les grains sont en contact lorsqu'ils sont à une distance maximum d'environ 4 μm . Pour être rigoureux, il faudrait plutôt parler de zones de proximité entre les grains.

La méthodologie pour identifier les points de contact entre des objets est celle développée par Gostick [250], utilisée notamment par Baux *et al.* [251] pour détecter les connexions entre les pores d'électrodes en or. Le principe est le suivant : chaque grain labellisé de la microstructure est dilaté par un élément structurant cubique de taille 1. Les objets labellisés intersectés par le dilaté du grain sont en contact avec le grain étudié. Pour chaque grain, la connectivité (soit le nombre de grains en contact) et la surface de contact sont déterminées.

Nous calculons pour chaque volume la connectivité moyenne, c'est à dire le nombre de contacts moyens par grain et la connectivité totale (Tab. 6.4). Il n'y a pas de grandes différences entre les connectivités moyennes et les connectivités totales des différents volumes d'un même matériau. En revanche, une différence de connectivité totale est nettement visible entre les trois matériaux.

Les distributions de la connectivité pour les trois matériaux sont tracées sur la figure 6.8. Un certain nombre de grains sont isolés, c'est-à-dire qu'ils ne sont en contact avec aucun autre grain. Des différences entre les trois matériaux sont observables, uniquement sur une échelle logarithmique, au niveau des queues de distribution. La comparaison entre les trois matériaux (Tab. 6.3) indique qu'il n'y a pas de différences significatives en terme de connectivité moyenne. En revanche, il existe une différence claire en terme du nombre de points de contact total entre les trois matériaux. Les contacts entre les grains de RVI-RDX et de VI-RDX sont près de deux fois plus nombreux que ceux entre les grains de RS-RDX.

Nous nous intéressons, dans un second temps, à la surface de contact moyenne et à la surface de contact totale entre les grains. L'objectif est de vérifier si, selon le type de microstructure, les contacts sont plutôt ponctuels ou étendus. La surface de contact, pour chaque grain, est déterminée en comptant le nombre de voxels appartenant au contour du grain qui sont accolés à un autre grain. La résolution d'un voxel n'étant pas la même pour les trois matériaux (Tab. 5.1), nous multiplions ce nombre par la surface d'un voxel. Les résultats restent assez cohérents entre les différents volumes d'un même matériau (Tab. 6.4). En revanche, une différence est bien visible entre les trois matériaux (Fig. 6.9). Les contacts dans le matériau VI-RDX/cire et RVI-RDX sont en moyenne moins étendus que ceux du matériau RS-RDX/cire (Tab. 6.3). Toutefois, une analyse de la surface totale de contact entre les grains révèle que le matériau à base de RVI-RDX a la surface de contact la plus importante, tandis que le matériaux à base de VI-RDX a la surface la plus faible. Cette hiérarchie entre les trois matériaux est la même que celle obtenue avec les modules de compressibilité. Le matériau le plus rigide, le RVI-RDX/cire, est également celui qui a la plus grande surface de contact entre les grains.

L'étude des points de contact a révélé que les trois matériaux ont une connectivité moyenne

TABEAU 6.4 – Connectivité et surface de contact moyenne par grain sur les différents volumes segmentés

Nom	Connectivité moyenne	Connectivité totale	Surface de contact moyenne (en μm^2)	Surface de contact totale (en μm^2)
RSb	2,54	8417	2112	$7,00 \cdot 10^6$
RSc	2,50	8543	2129	$7,26 \cdot 10^6$
RSd	2,56	8442	1957	$6,45 \cdot 10^6$
RSe	2,53	9105	1774	$6,38 \cdot 10^6$
RVib	2,88	14976	1614	$8,40 \cdot 10^6$
RVic	2,47	17084	1168	$8,08 \cdot 10^6$
RVID	3,05	15985	1698	$8,91 \cdot 10^6$
RVIe	2,89	13785	1525	$7,28 \cdot 10^6$
VIb	2,67	16969	1069	$6,79 \cdot 10^6$
VIc	2,55	16528	958,9	$6,22 \cdot 10^6$
VIId	2,50	15269	946,2	$5,78 \cdot 10^6$
VIe	2,74	17163	1052	$6,59 \cdot 10^6$

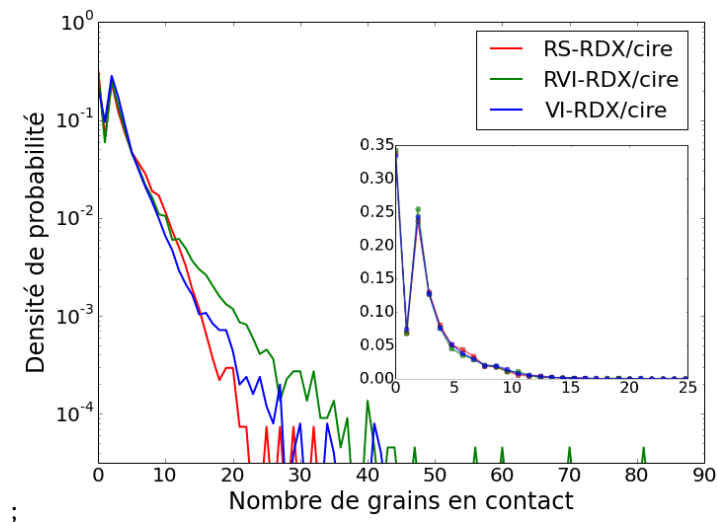


FIGURE 6.8 – Distribution de la connectivité sur les quatre volumes de chaque matériau. La distribution est représentée sur une échelle linéaire sur la sous-figure à droite.

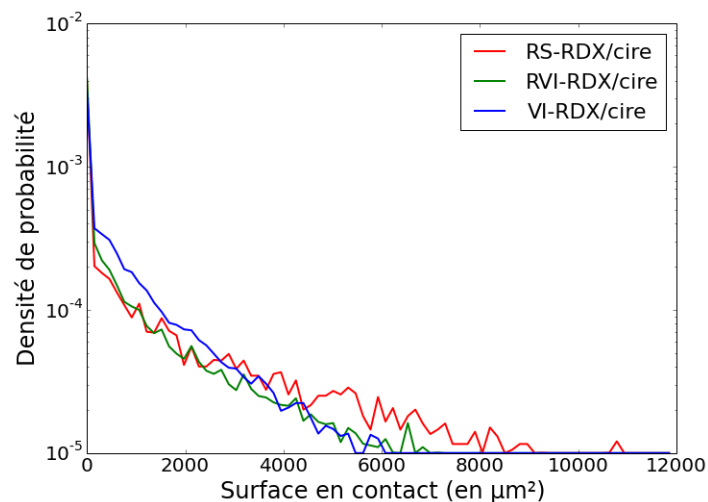


FIGURE 6.9 – Distribution de la surface de contact sur les quatre volumes de chaque matériau.

identique. En revanche, le type de contact entre les grains diffère. Les contacts dans le matériau RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire sont plus ponctuels que pour le RS-RDX/cire. Le RVI-RDX/cire est le matériau avec la surface de contact totale la plus faible, c'est également le matériau qui résiste le moins à la compression, tandis que le matériau avec la surface de contact totale la plus élevée, le RVI-RDX/cire, est celui avec le module de compressibilité le plus élevé. Cette corrélation semble indiquer un lien entre la surface de contact entre les grains et le module de compressibilité. Toutefois, les différences entre les surfaces de contact des trois matériaux ne sont pas nécessairement significatives, et d'autres facteurs jouent probablement un rôle comme la forme des grains ou leur organisation dans la résistance d'un matériau à la compression.

Même si nous retrouvons certaines corrélations entre points de contact et module de compressibilité, d'autres facteurs jouent probablement un rôle, comme la forme des grains ou leur organisation dans l'espace.

6.1.5 Conclusions sur la caractérisation globale

Quatre descripteurs sont calculés sur chaque volume segmenté : la granulométrie par ouverture, la covariance spatiale, le module de compressibilité et les zones de proximité entre les grains. Ces mesures permettent de caractériser et de comparer l'arrangement des grains dans l'espace des trois microstructures. Ces grandeurs permettront également de contrôler que les microstructures générées dans le chapitre 7 sont représentatives des matériaux réels.

La covariance spatiale n'est pas discriminante car il n'y a pas de différences entre les trois matériaux. La granulométrie par ouverture, en revanche, indique que la taille des grains de RS-RDX est plus homogène que celle des grains de RVI-RDX et de VI-RDX. La recristallisation des grains de RS-RDX en RVI-RDX et en VI-RDX génère de plus gros grains, d'où une granulométrie plus étendue. Le calcul du module de compressibilité par méthode FFT révèle des résistances à la compression différentes. Les points de contact et les surfaces de contact entre les grains jouent un rôle sur la résistance du matériau à la déformation. Néanmoins, ils ne permettent pas de justifier entièrement les différences de module de compressibilité entre les trois matériaux.

6.2 Caractérisation des différents types de grains de RDX

Tous les grains complètement inclus dans les volumes segmentés sont extraits pour former des bibliothèques de grains. Nous disposons ainsi d'une bibliothèque de grains de RS-RDX, de RVI-RDX et de VI-RDX. Les grains sont ensuite caractérisés avec une série de descripteurs, l'objectif étant de réaliser une carte d'identité la plus complète possible de chaque grain de RDX. Cette caractérisation permet :

- d'identifier des corrélations entre certains paramètres microstructuraux selon les types de grains ;
- de sélectionner des grains particuliers selon nos besoins et ainsi générer de nouvelles microstructures avec des propriétés microstructurales contrôlées (chapitre 7).

6.2.1 Descripteurs géométriques pour caractériser la forme de grains

Un module Python est développé pour calculer, pour chaque grain extrait, les descripteurs suivants.

- Le **volume** V_g de chaque grain est calculé en comptant le nombre de voxels constituant le grain. Connaissant la résolution d'un voxel (Tab. 5.1), nous accédons au volume du grain.

- La **surface** S peut être calculée de deux manières. La première méthode consiste à appliquer l'opérateur gradient morphologique. Le gradient morphologique fait la différence entre la dilatation et l'érosion par un même élément structurant. Cette opération permet donc d'obtenir les voxels à la frontière de la particule. Il suffit ensuite de compter le nombre de voxels constituant la surface et de multiplier cette somme par la surface d'un voxel. Cette méthode de calcul est une sous-estimation de la surface réelle, mais le calcul est rapide.

La deuxième méthode vise à reconstruire la surface de la particule avec des éléments triangulaires, en utilisant l'algorithme *marching cube* [252]. Celui qui est implémenté dans Python vient de Lewiner *et al.* [253].

Lin *et al.* [254] ont calculé la surface puis le volume avec ces deux méthodes. Il ont montré qu'il y a peu de différences entre : un volume défini par le nombre de voxels constituant le grain, ou un volume défini à partir d'une surface reconstruite. La surface, en revanche, varie beaucoup en fonction de la méthode utilisée. La surface calculée par reconstruction avec l'algorithme *marching cube* est indiquée comme, généralement, la plus proche de la surface réelle. Nous utilisons donc la surface reconstruite, notée S_g , pour le calcul des autres descripteurs.

- La **longueur** (L length), **largeur** (W width) et l'**épaisseur** (T thickness) du grain sont obtenues en calculant les dimensions de la boîte minimale englobante [255]. Cette boîte est orientée de façon à ce que son volume soit minimal. Le code Matlab de J. Korsawe [256] a été adapté au langage Python pour calculer les grandeurs L , W et T . Ces trois longueurs donnent des indications sur la forme des grains.

Différentes classifications de la forme des grains, à partir des grandeurs L , W et T , sont disponibles dans la littérature [255]. La plus connue est la classification de Zingg qui définit quatre classes selon l'élongation (W/L) et l'aplatissement (T/W).

En traçant le diagramme de Zingg pour les trois types de grains de RDX (Fig 6.10), on s'aperçoit que la majorité des particules sont de forme sphérique. La plupart des points divergents sont en réalité des grains de très petite taille composés de quelques voxels. Les grains de RVI-RDX et de VI-RDX ont des classifications assez proches. On note néanmoins que les grains de RVI-RDX ont des formes plus aplaties et allongées que les grains de VI-RDX. Ce résultat n'est pas surprenant car l'étape de traitement de surface permettant de passer des grains de RVI-RDX aux grains de VI-RDX supprime de la matière pour arrondir les angles saillants. Enfin, les formes des grains de RS-RDX sont plus variées car l'on retrouve davantage de grains avec des formes de type disque et lame que les deux autres types de grains.

- Trois **diamètres** différents sont calculés pour chaque grain : le diamètre équivalent en volume d_v , le diamètre équivalent en surface d_s et le diamètre moyen d_m . Le diamètre équivalent en volume (respectivement surface) est défini comme le diamètre d'une sphère ayant le même volume (respectivement surface) que le grain (Eq. (6.3) et (6.4)). Le rayon moyen est défini comme la distance euclidienne moyenne entre le centre de masse de la particule et les voxels de la surface. Le diamètre moyen d_m est égal à deux fois le rayon moyen.

$$d_v = \sqrt[3]{\frac{6V_g}{\pi}} \quad (6.3)$$

$$d_s = \sqrt{\frac{S_g}{\pi}} \quad (6.4)$$

- La **sphéricité** décrit la ressemblance de la particule avec une sphère. Quatre définitions différentes sont implémentées dans le module Python. Les schémas présentés sur la figure 6.11 permettent de résumer les différentes méthodes de calcul de la sphéricité.

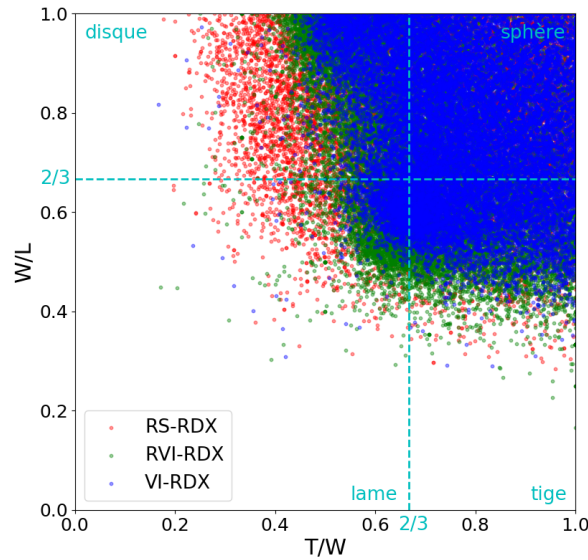


FIGURE 6.10 – Diagramme de Zingg pour les particules de RS-RDX, RVI-RDX et VI-RDX

La première définition provient de Wadell [15] et est notée S_W . Elle est définie comme le rapport de la surface d'une sphère ayant le même volume que le grain, par la surface du grain.

$$S_W = \frac{\sqrt[3]{36\pi V_g^2}}{S_g} \quad (6.5)$$

La deuxième définition provient de l'article de Bullard *et al.* [16]. La sphéricité est définie comme le rapport du rayon de la sphère maximale inscrite, par celui de la sphère minimale contenant la particule, ce qui revient à comparer les volumes.

$$S_B = \frac{r_{max\ inscr.\ sph.}}{r_{min\ encl.\ sph.}} \quad (6.6)$$

La sphéricité selon Alshibli *et al.* [17] est définie comme le rapport du volume de la particule, par le volume d'une sphère de diamètre égal à la longueur caractéristique minimale (soit à l'épaisseur T).

$$S_A = \frac{6V_g}{\pi T^3} \quad (6.7)$$

Enfin, la dernière définition implémentée est celle définie dans la thèse de Delloro [18]. La sphère équivalente de diamètre d_V est placée au centre de masse de la particule. Le volume de l'intersection de la sphère équivalente avec le grain est ensuite déterminé. La sphéricité est calculée comme le rapport du volume de l'intersection et de celui de la particule.

$$S_D = \frac{V_{eq} \cap V_g}{V_g} \quad (6.8)$$

- La **convexité** de la particule est calculée comme le rapport du volume d'un grain sur le volume V_H du grain convexe associé. Une fonction Python de la bibliothèque `scipy` permet de calculer l'enveloppe convexe associée à un nuage de points.

$$C_x = \frac{V}{V_H} \quad (6.9)$$

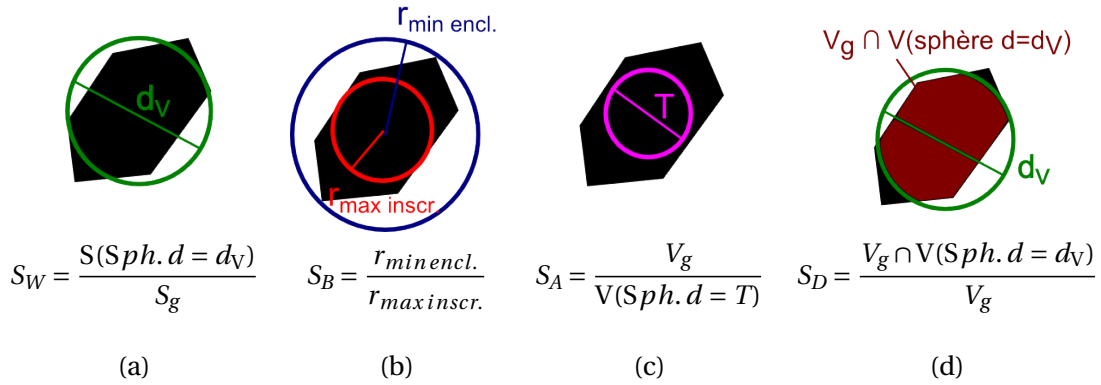


FIGURE 6.11 – Schémas de la méthode de calcul des indices de sphéricité de (a) Wadell [15], (b) Bullard [16], (c) Alshibli [17] et (d) Delloro [18]

- Enfin, une étude sur **les défauts intra-granulaires** est réalisée. Les cavités occluses sont identifiées avec la fonction `fill holes` puis labellisées (Annexe A). Nous avons ainsi accès, pour chaque grain, au volume total et au volume moyen des cavités occluses ainsi qu'à leur nombre. Les pores sont ensuite labellisés pour avoir accès, pour chacun d'entre eux, à leur volume et leur position par rapport au centre de masse.

6.2.2 Critère d'angularité

Le dernier descripteur qui nous intéresse sert à quantifier l'**angularité**. Il devra permettre de différencier les grains de RVI-RDX, avec des angles saillants, des grains plus arrondis de VI-RDX. Si de nombreuses définitions existent en 2D, les méthodes pour caractériser l'angularité sont moins nombreuses et plus complexes à implémenter en 3D. Un résumé des différentes définitions est réalisé dans les paragraphes suivants. Nous avons au final développé un nouvel indice d'angularité, mieux adapté à nos besoins.

État de l'art sur les descripteurs d'angularité

L'angularité d'une particule a , historiquement, d'abord été étudiée sous le nom de « rondeur ». Étudier la rondeur d'une particule consiste à localiser et étudier ses coins les plus saillants. La rondeur n'a pas pour objectif de quantifier l'écart de la particule à une sphère (contrairement à la sphéricité). Nous allons donc commencer par nous intéresser aux différentes définitions traitant de la rondeur d'un objet.

Wentworth [257] définit la rondeur comme le rapport du rayon de courbure du coin le plus saillant d'un grain sur une longueur représentative de la particule. La division par une grandeur quantifiant la taille du grain permet d'avoir un indice normalisé, et ainsi de comparer la rondeur de grains de différentes tailles. Plusieurs autres définitions de la rondeur sont construites sur le même schéma, avec différentes mesures de la taille du grain au dénominateur (Eq. 6.10). On trouve ainsi comme grandeur de normalisation : la moyenne de la longueur L et de la largeur W du grain [258], uniquement la largeur W [259], ou encore le diamètre du disque maximal inscrit [260]. Dans la définition de ces différents indices, seul le diamètre de courbure de l'angle le plus aigu est pris en compte.

$$I_r = \frac{D_k}{M_{\text{taille de la particule}}} \quad (6.10)$$

D_k est le diamètre de courbure de l'angle le plus aigu et M une grandeur décrivant la taille de la particule.

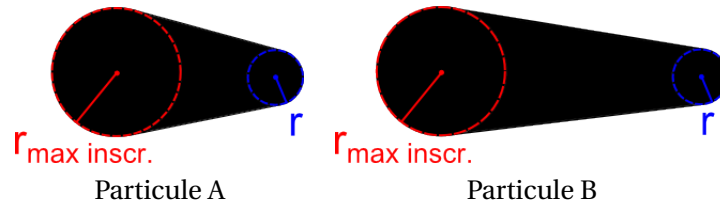


FIGURE 6.12 – Comparaison de deux particules avec le même indice de rondeur selon Wadell [15] mais avec des angularités différentes

Wadell [15] définit les coins d'un grain comme toutes les zones du contour où le rayon de courbure est plus faible que celui du disque maximal inscrit. Son indice de rondeur peut ainsi prendre en compte tous les coins du grain (Eq. 6.11).

$$I_r = \frac{\sum D_r}{n D_{\max \text{ inscr.}}} \quad (6.11)$$

D_r est le diamètre de courbure d'un coin, n le nombre de coins identifiés et $D_{\max \text{ inscr.}}$ le rayon de courbure du disque maximal inscrit dans la particule.

Lees [261] a démontré l'insuffisance des indices de rondeur pour calculer l'angularité d'un grain en prenant l'exemple des deux grains présentés sur la figure 6.12. Ces derniers ont des indices de rondeur (selon Wadell) similaires, alors que la particule B devrait apparaître comme plus anguleuse que la particule A. Un nouvel indice est donc défini prenant en compte :

- l'angle a entre deux plans qui délimitent le coin étudié. Les points du contour ayant un rayon de courbure inférieur à la moitié de celui du disque maximal inscrit sont considérés comme des coins;
- la distance entre le sommet du coin et le centre du disque maximal inscrit;
- le nombre de coins.

L'indice d'angularité I_a est donné par

$$I_a = \sum_{i=1}^n (\pi - a_i) \frac{x_i}{r_{\max \text{ inscr.}}}, \quad (6.12)$$

avec a_i l'angle entre les plans définissant un coin, x la distance entre le sommet du coin et le centre du disque maximal inscrit de rayon $r_{\max \text{ inscr.}}$ et n le nombre de coins. Cet indice peut également être calculé pour des grains 3D. La somme des angles est alors réalisée sur les projections du grain dans trois plans orthogonaux.

Les trois méthodes de calcul suivantes s'appuient sur le fait que la projection 2D d'une particule est en réalité, à cause de la discrétisation de l'image, un polygone formé de N points et n segments. Les méthodes décrites sont celles : de Sukumaran et Ashmawy [19], de l'UIAIA (*University of Illinois Aggregate Image Analyzer*) [262] et l'indice d'angularité par lissage (SAI *Smoothing Angularity Index*) [263].

- Sukumaran et Ashmawy [19] définissent un facteur de forme et d'angularité. La projection 2D d'une particule est, à cause de la discrétisation, en réalité un polygone formé de N points. Un cercle est discrétisé avec le même nombre de points. Le facteur de forme permet de quantifier la déviation de la forme de la particule par rapport au cercle. Pour ce faire, l'angle α entre le segment reliant deux points adjacents de la particule et le segment reliant deux points adjacents du cercle est calculé (Fig 6.13). Le facteur de forme est égal à la somme des angles α sur la somme des angles pour une particule plate, c'est à dire

$$SF = \frac{|\sum_{i=1}^N \alpha_i \text{ particule}|}{|\sum_{i=1}^N \alpha_i \text{ particule plate}|}. \quad (6.13)$$

L'indice d'angularité est donné par la somme des angles internes (angles β sur la figure 6.13). Le dénominateur permet de normaliser le résultat :

$$I_a = \frac{\sum_{i=1}^N (\beta_i - \pi)^2 - \sum_{i=1}^N (\beta_{i \text{ cercle}} - \pi)^2}{3 \times \pi^2 - \sum_{i=1}^N (\beta_{i \text{ cercle}} - \pi)^2}. \quad (6.14)$$

L'indice d'angularité en 3D est une nouvelle fois calculé à partir des projections dans trois plans orthogonaux.

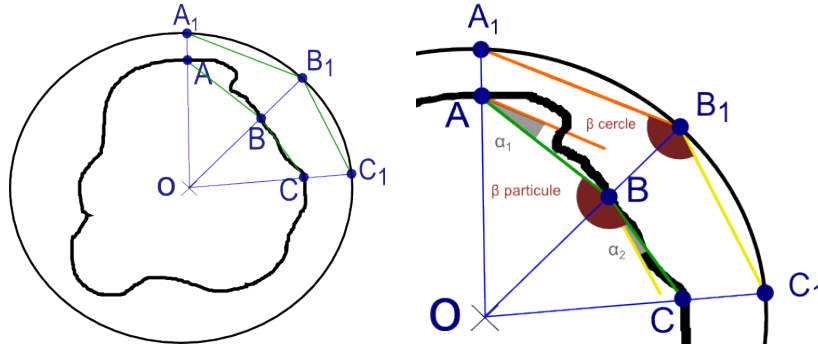


FIGURE 6.13 – Schéma des éléments géométriques permettant de calculer le facteur de forme et l'indice d'angularité selon Sukumaran et Ashmawy [19]

- La méthode UIAIA [262] consiste à projeter le contour d'une particule selon trois plans orthogonaux. Le contour de la particule est, comme précédemment, discrétisé en N points et n segments. Les angles formés par deux segments adjacents sont calculés et classés. Chaque classe, notée e , comprend les angles entre e et $e + \pi/18$ ($e + 10^\circ$). L'indice d'angularité, dans un plan, est donné par

$$I_a = \sum_{e=0}^{17\pi/18} e \times P(e), \quad (6.15)$$

avec $P(e)$ la probabilité pour un angle de se trouver dans la classe e . Finalement l'indice d'angularité total, prenant en compte les projetés dans les trois plans orthogonaux, se calcule par

$$I_{UIAIA} = \frac{A(p_1)I_a(p_1) + A(p_2)I_a(p_2) + A(p_3)I_a(p_3)}{A(p_1) + A(p_2) + A(p_3)}, \quad (6.16)$$

où $A(p_1)$ est l'aire de la particule projetée dans le plan 1 tandis que $I_a(p_1)$ est son indice d'angularité dans le plan 1.

- Le dernier indice d'angularité, s'appuyant sur la discrétisation du contour, est celui développé par Tafesse *et al.* [263]. Il est appelé indice d'angularité par lissage (SAI). Le principe est le suivant : une première spline passe par tous les points du contour, tandis qu'une deuxième spline passe par un point sur cinq. L'indice d'angularité par lissage mesure l'écart entre ces deux splines,

$$I_{SAI} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (d_i - \bar{d})^2}, \quad (6.17)$$

avec d_i la distance entre les courbe au $i^{\text{ème}}$ point de discrétisation, \bar{d} la distance moyenne entre les deux courbes et n le nombre de segments constituant le contour de la particule. Cet indice est calculé pour des particules 3D dans le plan où l'aire du projeté est minimale et dans celui où l'aire du projeté est maximale.

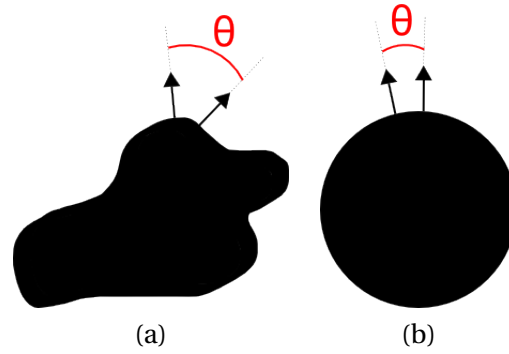


FIGURE 6.14 – Schéma du principe de calcul de l'indice d'angularité par gradient sur (a) une particule quelconque et (b) un disque

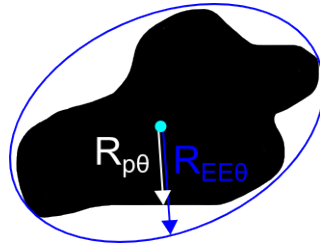


FIGURE 6.15 – Schéma du principe de calcul de l'indice d'angularité par rayon

L'indice d'angularité par méthode du gradient [264] consiste à calculer l'angle θ formé par les vecteurs gradients en deux points adjacents du contour de la particule (Fig. 6.14),

$$I_{GRAD} = \sum_{i=1}^{N-\Delta} |\theta_i - \theta_{i+\Delta}|, \quad (6.18)$$

Δ étant le nombre de points entre les deux gradients. Cette approche, disponible dans un premier temps uniquement en 2D, a été généralisée au cas 3D par Yang *et al.* [265].

Le calcul de l'indice d'angularité par rayon (noté RAD) [264], évalue la différence entre le rayon de la particule et le rayon d'une ellipse équivalente selon différentes directions (Eq.(6.19), Fig. 6.15). L'ellipse équivalente a pour axes et pour orientation la longueur et la largeur de la boîte minimale englobante orientée. Cet indice n'est disponible que pour des formes en 2D,

$$I_{RAD} = \sum_{\theta=0}^{2\pi-\Delta\theta} \frac{|R_{p\theta} - R_{EE\theta}|}{R_{EE\theta}}, \quad (6.19)$$

$R_{EE\theta}$ et $R_{p\theta}$ étant les rayons de l'ellipse équivalente et de la particule selon la direction définie par l'angle θ . $\Delta\theta$ est l'écart entre deux angles adjacents, ce qui correspond donc à la discrétisation radiale.

Deux études [263, 266] comparent les résultats obtenus avec différents indices d'angularité présentés ci-dessus. La première étude [266] indique que l'angularité par gradient et l'angularité UIAIA fournissent les meilleures classifications de particules. La deuxième étude [263] confirme l'efficacité de l'angularité par gradient, mais montre également que l'indice d'angularité par lissage est plus efficace que l'indice d'angularité UIAIA. L'inconvénient majeur des méthodes présentées jusqu'à présent est que les calculs sont effectués uniquement sur des coupes 2D, ou bien sur les projetés dans trois plans orthogonaux. La totalité de l'information disponible, soit la forme du grain en 3D, n'est pas exploitée.

Les outils de morphologie mathématique permettent de caractériser les formes des objets. Ils sont, de plus, facilement généralisables au cas 3D en modifiant l'élément structurant. Masad *et al.* [267] proposent d'utiliser des ouvertures morphologiques pour calculer l'indice d'angularité,

$$I_{morpho} = \alpha(X) = \frac{V[\gamma_0(X)] - V[\gamma_n(X)]}{V[\gamma_0(X)]}, \quad (6.20)$$

avec $V[\gamma_n(X)]$ le volume (surface en 2D) du grain X après une ouverture par un élément structurant de taille n . Le volume $V[\gamma_0(X)]$ correspond donc au volume initial du grain V_g . Le choix de la taille n de l'élément structurant est fondamental. Il est pourtant choisi librement par l'opérateur. Cette approche a été réutilisée par Lee *et al.* [268] en remplaçant l'élément structurant par une ellipse orientée selon les axes principaux du grain (correspondant aux axes de la boîte minimale englobante orientée) et de même rapport que les trois longueurs L , W , T .

Si la plupart des indices d'angularité se calculent sur des particules en 2D, on trouve quelques indices, non morphologiques, permettant de calculer l'angularité sur des particules 3D [265, 269]. Yang *et al.* ont généralisé le calcul de l'indice d'angularité par gradient aux particules en 3D. Une autre approche en 3D est proposée par Zhao et Wang [269] qui calculent la rondeur de particules à partir de microtomographies. Dans un premier temps, la surface de la particule est reconstruite avec des éléments triangulaires. La courbure locale et la normale de chaque élément triangulaire sont ensuite calculées en prenant en compte les éléments dans le voisinage immédiat. La courbure de chaque facette est normalisée par la courbure de la sphère maximale inscrite. La rondeur d'une particule 3D est alors donnée par

$$I_r = \frac{\sum A_n \frac{k_s}{k_i}}{\sum A_n}, \quad (6.21)$$

avec A_n l'aire de l'élément triangulaire, k_i la courbure gaussienne ou moyenne de l'élément triangulaire et k_s la courbure (gaussienne ou moyenne) de la sphère maximale inscrite. Ces deux méthodes permettant de calculer l'indice d'angularité sur des particules 3D sont plus complexes à implémenter.

Pour résumer, la majorité des indices d'angularité proposés jusqu'à présent s'appliquent uniquement sur des projections de particules 3D. Pour traiter des particules 3D, trois approches sont disponibles :

- utilisation de la méthode du gradient;
- reconstruction des particules 3D avec des éléments triangulaires puis détermination de la courbure locale de chaque facette;
- utilisation d'ouvertures morphologiques avec des éléments structurants en 3D.

Les deux premières méthodes sont complexes à implémenter, nous privilégions donc la dernière méthode qui exploite les outils de morphologie mathématique. Le point bloquant des indices d'angularité morphologiques précédents est le choix de la taille de l'élément structurant. En effet, ce dernier est fixé par l'opérateur et doit être adapté pour chaque type de grains. Nous choisissons donc de développer un nouvel indice d'angularité, qui ne nécessite plus l'intervention de l'opérateur.

Développement d'un nouveau critère d'angularité

Le nouvel indice d'angularité doit respecter plusieurs conditions, il doit être :

- indépendant de la taille du grain, pour pouvoir comparer l'angularité de grains de différentes tailles;
- utilisable en 3D;

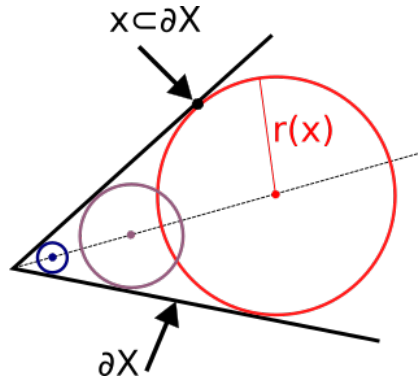


FIGURE 6.16 – Schéma de rayons tangents maximaux inscrits

- rapide et facile à calculer, pour être capable de traiter plus de 15000 particules en un temps raisonnable;
- capable de faire la distinction entre les trois types de grains de RDX.

Le nouvel indice d'angularité a été développé avec l'appui du CMM. La première étape pour le calculer est de déterminer, pour chaque voxel x de la surface du grain, le rayon r du disque (sphère en 3D) tangent maximal inscrit. Le contour du grain, noté ∂X , est déterminé avec la carte de la distance euclidienne dans les grains par rapport au liant. Les pixels (voxels en 3D) dont la distance euclidienne par rapport au liant est égale à 1 sont les pixels appartenant à ∂X . Le rayon du cercle tangent maximal inscrit, pour chaque point du contour, est déterminé avec des ouvertures morphologiques avec une boule euclidienne $B^r \subset \mathbb{Z}^3$. Lorsque le point du contour disparaît après une ouverture de taille donnée, cela signifie que le disque de taille inférieure était le disque tangent maximal inscrit. Les rayons les plus faibles sont donc obtenus dans les coins (en bleu sur la Fig. 6.16).

La deuxième étape consiste à tracer et exploiter la distribution normée et cumulée des rayons tangents maximaux inscrits (Eq. (6.22)).

$$F_{r_n}(\rho) = P\{r_n(x) < \rho, x \in \partial X\} \quad \text{avec} \quad r_n(x) = \frac{r(x)}{R} \quad (6.22)$$

L'indice d'angularité doit permettre la comparaison entre des grains de différentes tailles. Les rayons r des cercles tangents inscrits sont donc normés par le rayon R du disque maximal inscrit. Pour un grain ayant la forme d'un disque, les rayons normés sont égaux à 1 pour tous les points du contour. La distribution cumulative est alors un Dirac centré sur 1 (Fig. 6.17). En réalité, la distribution cumulative n'est pas tout à fait un Dirac à cause de la discrétisation du disque. Pour un grain anguleux, en revanche, les rayons normés prennent des valeurs entre 0 et 1.

La dernière étape est l'intégration de la distribution normée et cumulée des rayons r_n (Eq. (6.23)).

$$I_a(X) = \int_0^1 F_{r_n}(\rho) d\rho \quad (6.23)$$

Cela revient à calculer l'aire sous la courbe de la distribution cumulée. La valeur obtenue est l'indice d'angularité, compris entre 0 (particules parfaitement sphériques) et 1 (particules parfaitement anguleuses). Le cas limite, d'une angularité égale à 1, est obtenu pour un segment de droite.

Des exemples sur des formes de référence sont présentés sur la figure 6.17. Le nouvel indice d'angularité est capable de faire la distinction entre des formes simples comme des disques, des ellipses, des carrés, des triangles et des étoiles. Nous vérifions que l'indice d'angularité est indépendant de la taille de l'objet. Pour ce faire, une série de disques, carrés et triangles équilatéraux

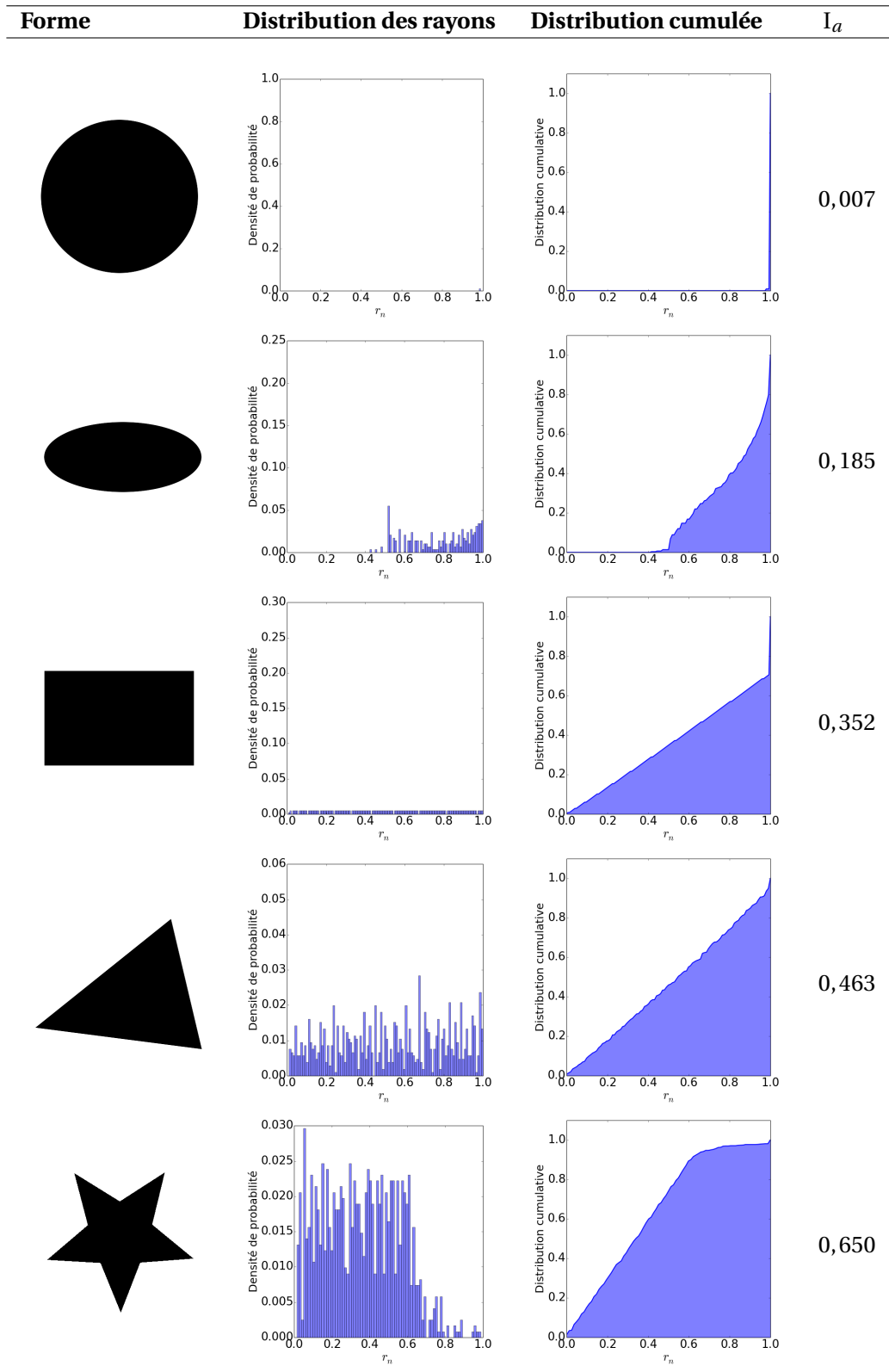


FIGURE 6.17 – Nouvel indice d'angularité sur quelques formes de référence

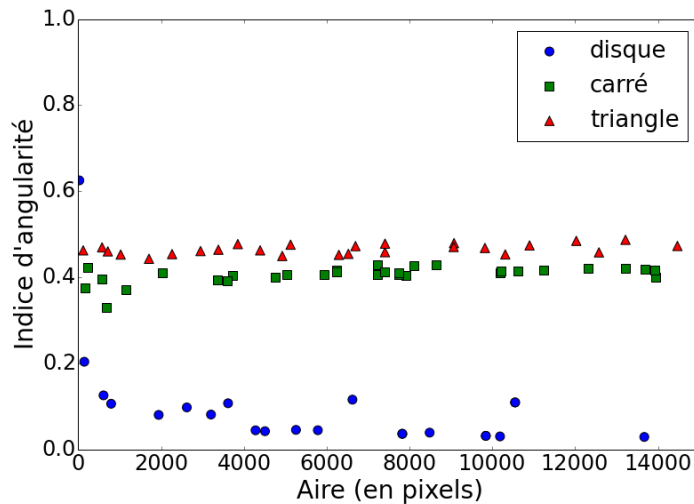


FIGURE 6.18 – Nouvel indice d’angularité en fonction de la taille de particules en forme de disque, carré ou triangle équilatéral

de tailles et d’orientations aléatoires sont générés. L’indice d’angularité en fonction de la taille des particules est présenté sur la figure 6.18. Pour n’importe quelle taille de particule, nous retrouvons toujours par ordre croissant d’indice d’angularité, les disques, les carrés et les triangles. De plus, il y a peu de variations de l’indice d’angularité en fonction de la taille des objets. Les variations les plus importantes sont observées pour les grains de plus petite taille, car le calcul de l’indice d’angularité est alors moins précis, la grille de discrétisation devenant plus grossière pour de plus petits objets.

Le nouvel indice d’angularité est capable de faire la distinction entre des formes simples peu importe leur taille et leur orientation. Il est utilisable sur des grains 2D ou 3D et est peu coûteux en ressources. De plus, ce calcul pourrait, en théorie, se faire en parallèle sur tous les grains dans un volume 3D. Le coût de calcul devient alors très intéressant. Enfin, il ne nécessite pas d’intervention de l’opérateur ce qui rend les résultats plus fiables et reproductibles que les indices d’angularité morphologiques développés précédemment.

6.2.3 Analyse statistique

Chaque grain est caractérisé avec 18 descripteurs : le volume, la surface par reconstruction, la surface par gradient, les trois longueurs L , W , T de la boîte minimale englobante orientée, le diamètre équivalent en surface, le diamètre équivalent en volume, le diamètre moyen, quatre indices de sphéricité, le nouvel indice d’angularité, la convexité, le volume moyen de défauts intra-granulaires, le volume total de défauts intra-granulaires et enfin le nombre de défauts intra-granulaires. Une analyse statistique est réalisée pour exploiter et visualiser cette grande quantité de données. Dans un premier temps, les distributions des différents descripteurs sont tracées et analysées pour chaque type de grain de RDX. Dans un second temps, une analyse en composantes principales est effectuée dans le but de réduire la dimension du problème, et ainsi de visualiser les données. Enfin, une classification des trois types de grains est testée par apprentissage automatique.

Résumé des distributions

Nous commençons par comparer les distributions des différents descripteurs entre les trois types de grains de RDX.

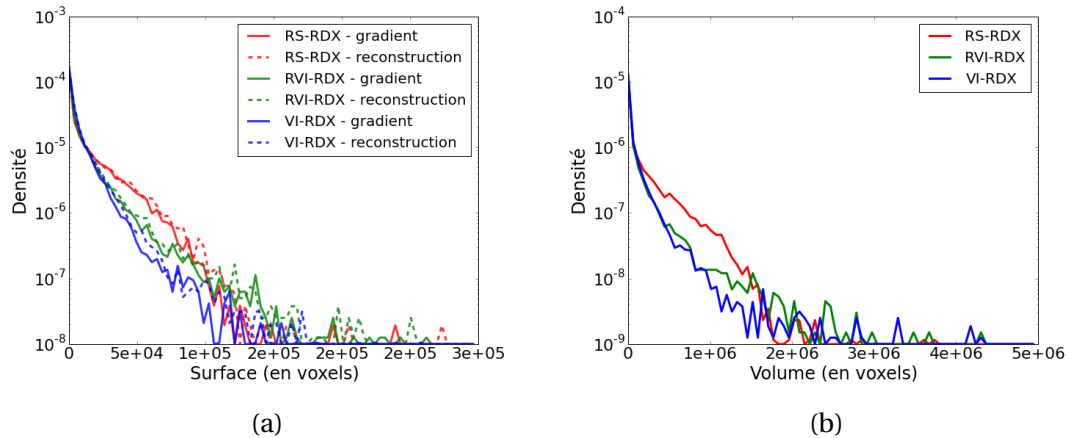


FIGURE 6.19 – Distributions sur une échelle logarithmique (a) de la surface reconstruite et de la surface par gradient, ainsi que (b) du volume pour les trois types de RDX.

Dans un premier temps, une comparaison entre les deux méthodes de calcul de la surface est réalisée (Fig. 6.19a). La surface par gradient est plus faible que la surface reconstruite. Ce n'est pas une surprise car le calcul de la surface par gradient est une sous-estimation de la surface réelle. La surface des grains de RS-RDX est, d'une manière générale, plus importante que celle des grains de RVI-RDX et de VI-RDX. Toutefois, les grains avec les surfaces les plus importantes sont les grains de RVI-RDX et VI-RDX. Les distributions du volume (Fig. 6.19b) indiquent également que les grains de RVI-RDX et de VI-RDX atteignent des tailles plus importantes que les grains de RS-RDX. Ces observations vont dans le même sens que celles réalisées lors de l'étude de la granulométrie par ouverture (section 6.1.1).

Les distributions du diamètre équivalent en volume, du diamètre équivalent en surface et du diamètre moyen sont présentées sur la figure 6.20. Les différents diamètres fournissent les mêmes résultats : les grains de RS-RDX de diamètre inférieur à 50 voxel et de diamètre supérieur à 150 voxels sont moins nombreux que ceux de RVI-RDX et VI-RDX. La distribution de taille des grains de RS-RDX est donc plus étroite.

Nous nous intéressons ensuite aux quatre indices de sphéricité (Fig. 6.21). La même hiérarchie entre les trois types de RDX est obtenue avec les indices de sphéricité de Wadell [15], Bullard [16] et Delloro [18] : les grains de VI-RDX sont les plus sphériques, tandis que les grains de RVI-RDX sont les moins sphériques. La distribution de l'indice de sphéricité des grains de RS-RDX est plus étendue et recouvre, en partie ou totalement, les distributions des deux autres types de grains. L'analyse des distributions de l'indice de sphéricité d'Alshibli [17] mène à des conclusions identiques. Son interprétation est toutefois moins intuitive car les grains les plus sphériques ont un indice de sphéricité proche ou égal à 1, tandis que les grains les moins sphériques ont un indice supérieur à 1. Les grains les plus sphériques sont ceux de RS-RDX et de VI-RDX, les grains les moins sphériques sont ceux RVI-RDX.

Nous regardons ensuite les distributions du nouvel indice d'angularité (Fig. 6.22). Conformément à nos attentes, les grains de VI-RDX sont les moins anguleux mais étonnamment, les distributions de l'indice d'angularité des grains de RS-RDX et de RVI-RDX sont très similaires. Les grains de RVI-RDX ont des angles plus aigus que ceux de RS-RDX, mais les grains de RS-RDX ont plus de coins et sont quelques fois maclés, ce qui pourrait expliquer cette similarité.

Les distributions de la convexité sont présentées sur la figure 6.23. Théoriquement, l'indice de convexité ne devrait pas dépasser 1. Cette différence entre théorie et pratique est liée à la méthode

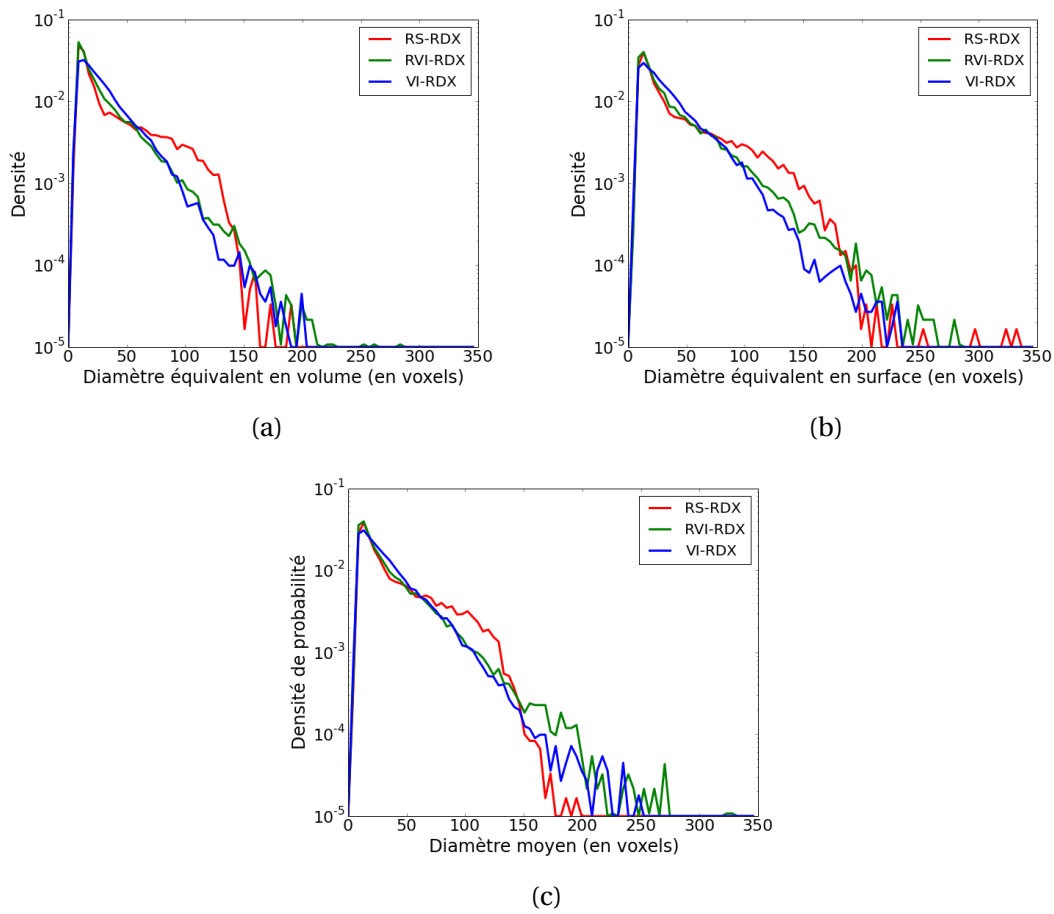


FIGURE 6.20 – Distributions sur une échelle logarithmique (a) du diamètre équivalent en volume, (b) du diamètre équivalent en surface et (c) du diamètre moyen pour les trois types de RDX.

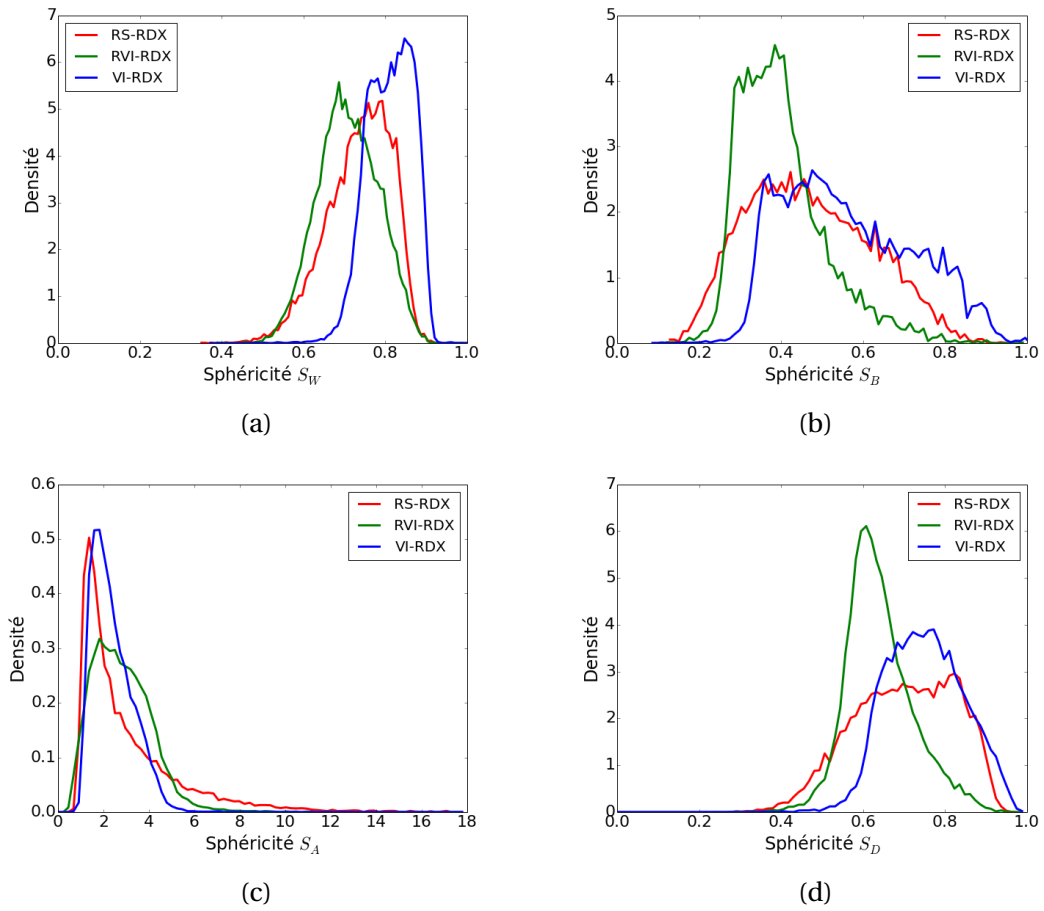


FIGURE 6.21 – Comparaison des distributions des indices de sphéricité de (a) Wadell [15], (b) Bullard [16], (c) Alshibli [17] et (d) Delloro [18] sur les trois types de RDX

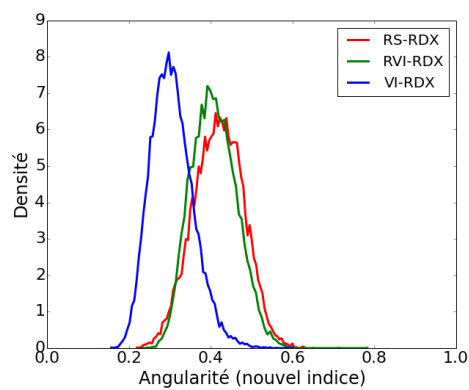


FIGURE 6.22 – Distributions du nouvel indice d'angularité pour les trois types de RDX

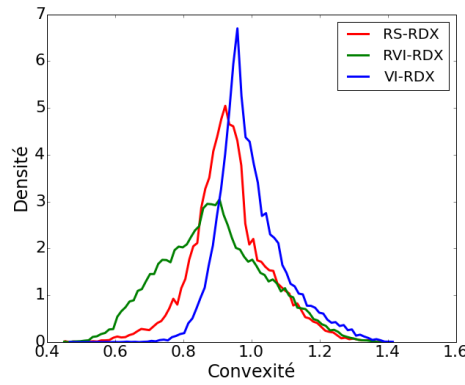


FIGURE 6.23 – Distributions de la convexité pour les trois types de RDX

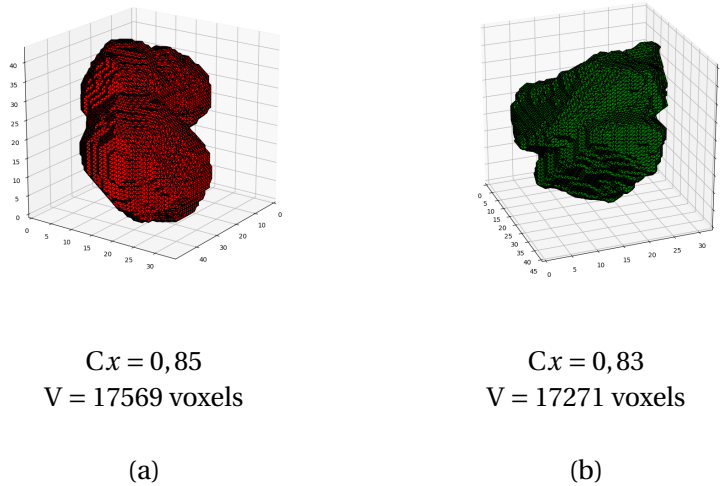


FIGURE 6.24 – Exemple de grains maclés de (a) RS-RDX et (b) RVI-RDX avec des tailles et des indices de convexité similaires

de calcul. Le volume de la particule est déterminé en comptant le nombre de voxels constituant le grain. Le volume de l'enveloppe convexe est calculé à partir d'un nuage de points avec la fonction `convexHull` du module `scipy` de Python. Chaque point du nuage correspond au centre d'un voxel. Le fait de considérer le centre du voxel plutôt que ses sommets conduit à des indices de convexité supérieurs à 1. Néanmoins, les grains avec une convexité supérieure à 1 sont des grains qui sont convexes ou quasiment convexes.

Les grains de VI-RDX sont plus convexes que les deux autres types de grains. Une faible convexité est observée pour les grains de RS-RDX et de RVI-RDX. Nous avons déjà vu que de nombreux grains de RS-RDX sont maclés. Ils sont constitués de plusieurs grains formant plusieurs lobes, et ont ainsi une forme concave. Les grains de RVI-RDX apparaissent comme encore moins convexes. Après une recherche dans la bibliothèque de grains, nous identifions que les grains avec un faible indice de convexité sont souvent constitués de deux grains allongés qui s'entrecroisent avec des orientations différentes (Fig. 6.24). Ces grains peuvent être maclés, ou bien simplement mal segmentés car sous-segmentés.

Enfin, nous nous intéressons aux défauts intra-granulaires en regardant le volume total, le volume moyen et le nombre des cavités occluses dans chaque grain (Fig. 6.25). Sans surprise, le volume moyen et le volume total des cavités occluses est bien plus important dans les grains de RS-RDX, que dans les grains de RVI-RDX et VI-RDX qui ont subi une recristallisation spécifique et

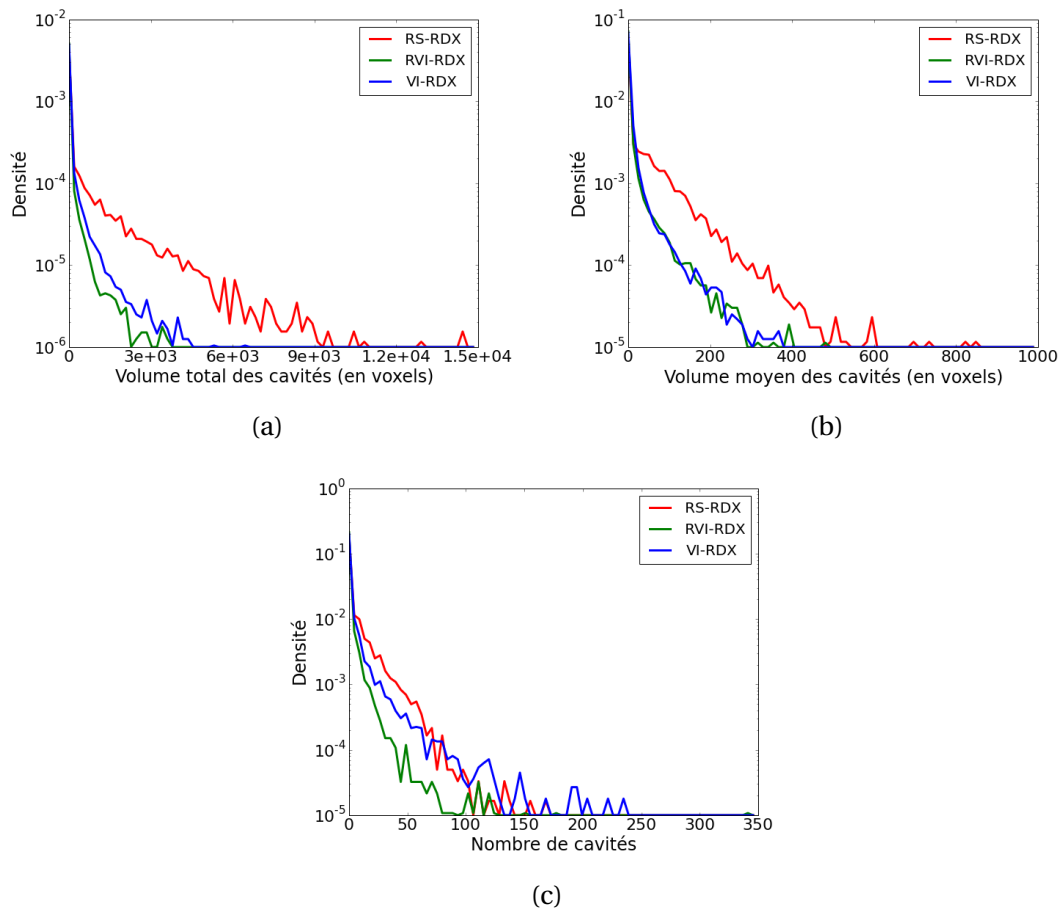


FIGURE 6.25 – Distributions sur une échelle logarithmique (a) du volume total, (b) du volume moyen et (c) du nombre des défauts intra-granulaires par grain pour les trois types de RDX

dédiée.

Le nombre de défauts intra-granulaires est également plus élevé dans les grains de RS-RDX. Nous notons toutefois que les grains contenant le plus grand nombre de défauts intra-granulaires sont des grains recristallisés de VI-RDX (Fig. 6.25). Pour mieux comprendre l'effet de la recristallisation sur les défauts intra-granulaires, nous visualisons les nuages de points en 3D et en 2D des trois types de grains en fonction des différents descripteurs des défauts intra-granulaires (Fig. 6.26). Nous retrouvons sur la représentation 3D (Fig. 6.26a) que le volume total et le volume moyen des cavités dans les grains de RS-RDX sont plus importants que dans les grains de RVI-RDX et de VI-RDX. Les grains de VI-RDX, en revanche, contiennent souvent beaucoup de défauts de très petite taille. Ces nombreux défauts sont probablement liés à un filtrage du bruit insuffisant, qui fait apparaître un trop grand nombre de pores. Si l'on fait abstraction de ces grains particuliers, les nuages de points sur les figures 6.26b et 6.26c des grains de RVI-RDX et de VI-RDX deviennent assez similaires. Cette similarité est alors cohérente avec le processus de formulation des grains. En effet, les grains de VI-RDX sont obtenus suite à un traitement de surface des grains de RVI-RDX (Fig. 4.6) qui n'a pas d'effet sur les défauts intra-granulaires. Finalement, le processus de recristallisation permet de réduire à la fois le nombre et le volume des cavités.

Analyse en composantes principales

Nous souhaitons mettre en évidence les éventuelles relations entre les 18 descripteurs différents, et vérifier si une différence entre les trois types de grains est visible dans l'espace à 18 dimensions. Le problème est qu'une visualisation devient difficile, dès lors que plus de trois va-

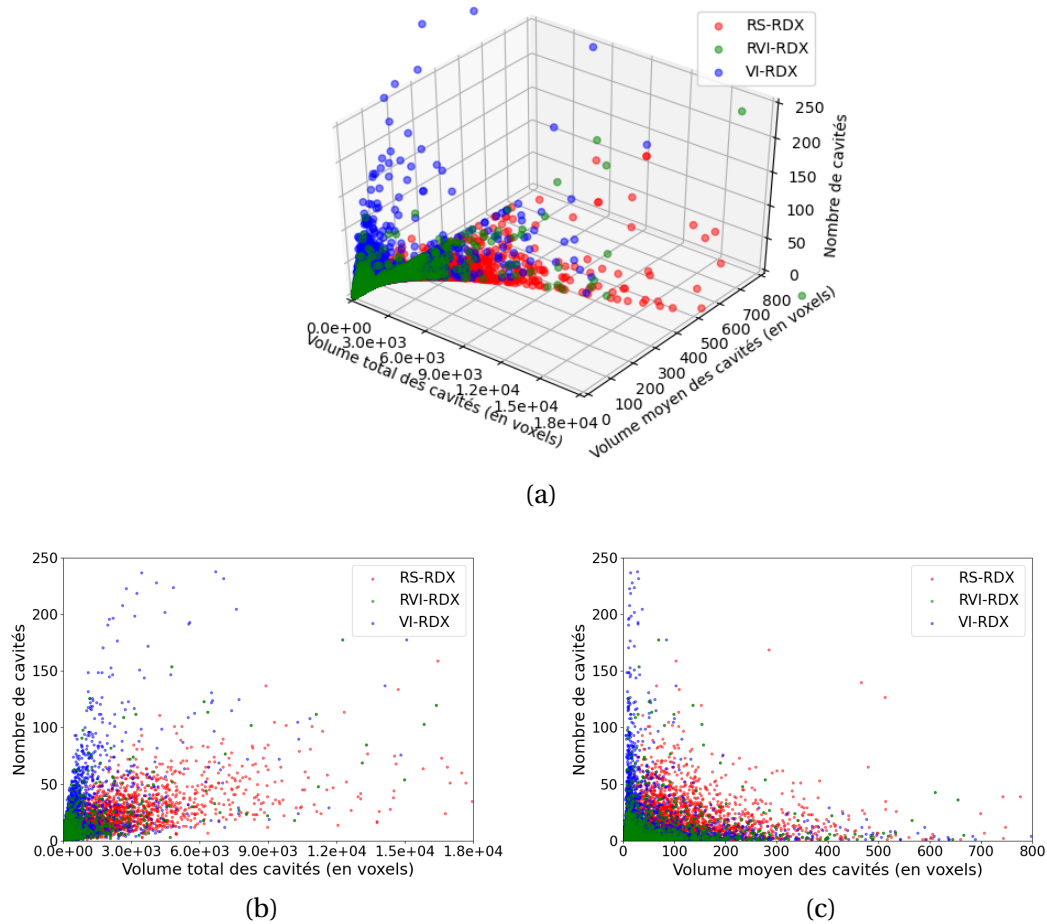


FIGURE 6.26 – Nuage de points de descripteurs des défauts intra-grnulaires : (a) en 3D, (b) nombre de cavités en fonction du volume total des cavités et (c) nombre de cavités en fonction du volume moyen des cavités

riables (descripteurs) interviennent. Nous réalisons donc une analyse en composantes principales (ACP) [270]. L'ACP est un outil d'analyse statistique multivarié permettant de réduire le nombre de variables, et ainsi la dimension, tout en continuant d'exprimer la plus grande partie de la variance. En effet, parmi les différentes variables décrivant un individu (dans notre cas un grain), certaines sont corrélées et transportent la même information. Il est donc possible de réduire la dimension du problème tout en conservant une grande partie de l'information (la variance). Cette réduction passe par la création de nouvelles grandeurs décorréelées, appelées composantes principales. Les composantes principales sont des combinaisons linéaires des grandeurs d'origine. Les premières composantes principales contiennent la majeure partie de l'information. Une analyse par ACP permet donc une réduction de la dimension pour une meilleure visualisation.

Mathématiquement, la solution du problème posé revient à identifier un nouveau repère dans lequel l'inertie (mesure de dispersion) du nuage projeté est maximale. Dans ce repère, le premier axe exprime le plus possible l'inertie, le deuxième axe exprime le plus possible l'inertie non prise en compte par le premier axe, etc... Ce nouveau repère est obtenu en diagonalisant la matrice des variances-covariances. Les vecteurs propres \vec{u}_i sont les axes principaux du nouveau repère. La hiérarchisation des axes principaux et des composantes principales s'effectue avec les valeurs propres λ_i . Le vecteur propre avec la valeur propre la plus élevée est le premier axe principal, le vecteur propre avec la valeur principale la plus faible est le dernier axe principal. Les différentes composantes principales, noté \vec{c}_i contiennent les coordonnées des projections des individus sur les différents axes principaux. La non corrélation des composantes principales est donc liée au fait que les axes sont orthogonaux.

Une ACP est réalisée sur l'ensemble des trois types de grains extraits sans distinction. Pour cette étude, les descripteurs sont préalablement centrés et réduits (pour avoir une moyenne nulle et une déviation standard égale à 1). Nous regardons tout d'abord combien de composantes principales sont nécessaires pour reproduire la plus grande partie de la variance (Fig. 6.27). Deux méthodes empiriques sont utilisées pour déterminer ce nombre. La première méthode, appelée critère de Cattelle [271], consiste à identifier la valeur pour laquelle il y a une rupture de la pente sur l'éboulé des valeurs propres (Fig. 6.27a). En suivant cette règle, trois composantes principales sont exploitées. Le deuxième critère, celui de Kaiser-Guttman [272], retient les composantes principales dont la valeur propre est supérieure à 1 (dans le cas d'une ACP réduite). Quatre composantes principales sont considérées avec ce critère.

Le pourcentage de la variance des variables initiales exprimé par chaque composante principale est calculé par :

$$\frac{\lambda_i}{\sum_{i=1}^p \lambda_i} \quad (6.24)$$

La distribution cumulée, tracée sur la figure 6.27b, indique que les trois premières composantes principales expriment 80,2 % de la variance, et que les quatre premières composantes principales expriment 86,3 % de la variance. Nous choisissons donc d'étudier les quatre premières composantes principales. La réduction de dimension est importante, car elle permet de passer de 18 à 4 variables. Cela nous indique qu'un grand nombre de variables sont fortement corrélées.

L'exploitation des résultats de l'ACP commence par une identification de l'apport des descripteurs d'origine dans chaque composante principale. Pour ce faire, le cercle des corrélations est tracé (Fig.6.28). La projection des flèches sur les axes, qui représentent les composantes principales, donne des indications sur la contribution de chaque variable. Par conséquent, plus un descripteur est proche du cercle, plus sa contribution est importante dans la construction de l'axe principal. Les descripteurs avec les plus petites flèches sont ceux qui sont mal représentés dans la composante principale. Dans notre étude, on s'aperçoit que le premier axe principal contient les informations sur la taille des grains : grandeurs L , W , T , surfaces par gradient et reconstruction, volume, diamètres. Les descripteurs de porosité sont légèrement moins bien représentés. La

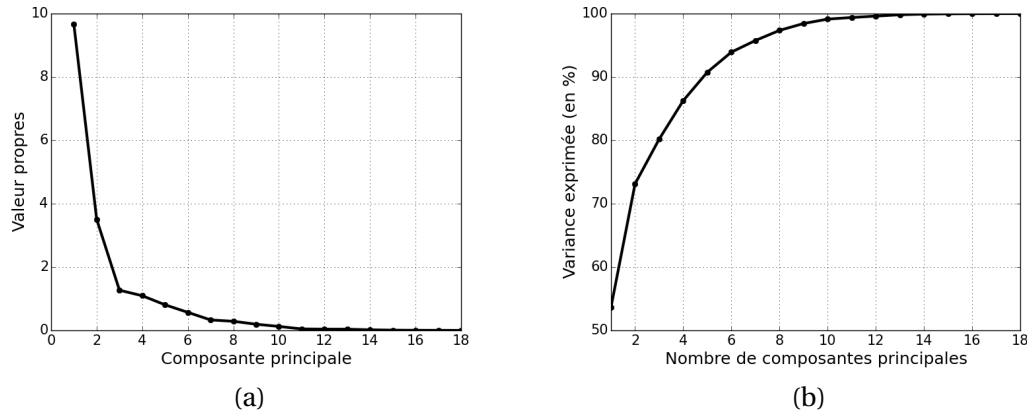


FIGURE 6.27 – Détermination du nombre de composantes principales à retenir avec (a) l'éboullis des valeurs propres et (b) la somme cumulée de la variance en fonction du nombre de composantes principales étudiées

deuxième composante principale porte l'information sur la forme des grains à travers les descripteurs de sphéricité, d'angularité et de convexité. Les troisième et quatrième composantes représentent mieux la sphéricité d'Alshibli, l'angularité et les trois descripteurs de porosité. La définition d'un grain se fait donc avec quatre variables : la première variable décrit la taille du grain, la deuxième et la troisième décrivent la forme du grain, la dernière variable permet de décrire la porosité intra-granulaire.

Les grains sont projetés dans le nouveau repère formé des différents axes principaux (Fig. 6.29). Aucune distinction n'est visible entre les trois RDX dans ce nouvel espace. Pour espérer observer une différence entre les trois types de RDX, il faudrait définir de nouveaux descripteurs. Mais même avec de nouveaux descripteurs, la distinction entre les trois types de grains n'est pas évidente car les petits grains des trois types de RDX ont des formes similaires.

Matrice de corrélation et classification

Nous essayons de classifier les trois types de grains en utilisant des algorithmes d'apprentissage automatique. Pour ce faire, nous réduisons le nombre de grandeurs de départ en étudiant la matrice de corrélation. Nous travaillons sur les descripteurs initiaux plutôt que sur les composantes principales pour pouvoir identifier les descripteurs les plus importants. Ces descripteurs permettront de sélectionner des grains particuliers pour générer de nouvelles microstructures avec des propriétés microstructurales contrôlées.

Les matrices des valeurs absolues des coefficients de corrélations sont tracées sur la figure 6.30. Nous retrouvons globalement les mêmes corrélations sur les trois types de grains. Une différence est toutefois observée entre les trois matériaux sur le nombre de défauts intra-granulaires. Le nombre de défauts intra-granulaires pour les grains de RS-RDX est corrélé avec la taille du grain : plus le grain est grand, plus il y a de chances qu'il contienne de nombreux défauts. Cette corrélation n'est plus observée pour les grains recristallisés de RVI-RDX et de VI-RDX. Les défauts intra-granulaires peuvent se trouver indifféremment dans des grains de grande ou petite taille.

Sans surprises, les différents descripteurs quantifiant la taille d'un grain sont fortement corrélés. Les descripteurs avec un coefficient de corrélation absolu supérieur à 0,9 sont supprimés. Les caractéristiques conservées pour la taille sont le volume V et la longueur L . Les descripteurs de forme retenus sont les quatre indices de sphéricité S_W , S_B , S_A , S_D , l'indice d'angularité I_a et la convexité C_x . Les trois grandeurs décrivant la porosité V_{tot} , V_m et nb sont également conservées. Finalement, la classification est réalisée à partir de 11 descripteurs sur les 18 initiaux.

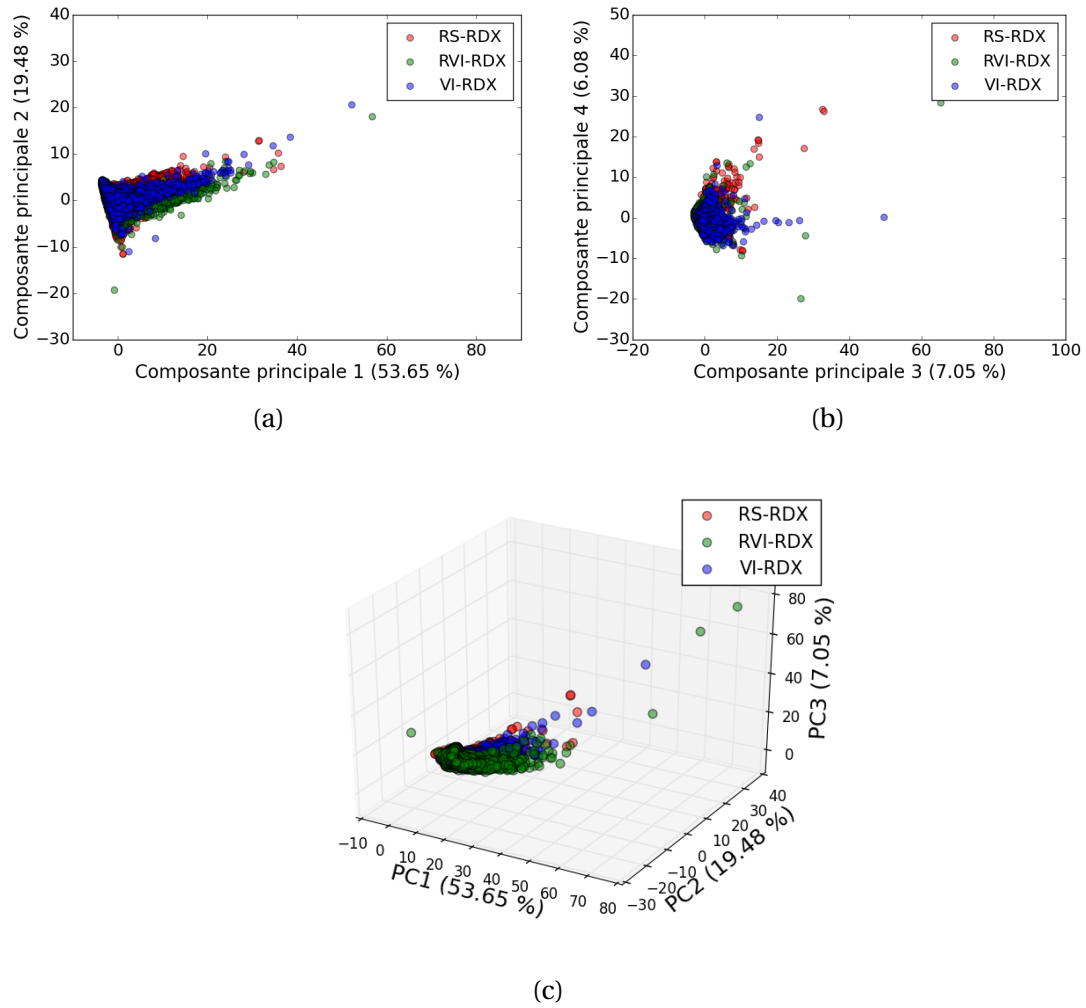


FIGURE 6.29 – Projection du nuage de points dans les plans formés (a) des axes principaux 1 et 2, (b) des axes principaux 3 et 4 et (c) dans le repère formé des axes principaux 1, 2 et 3

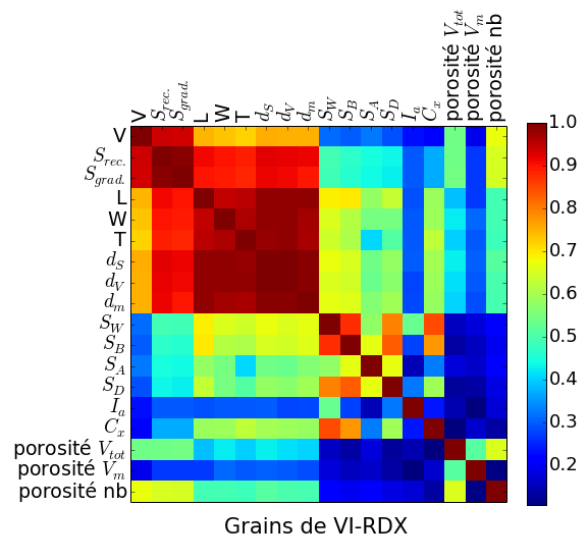
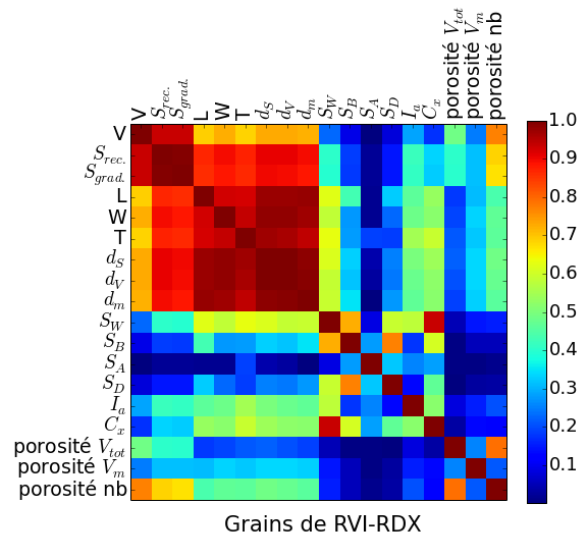
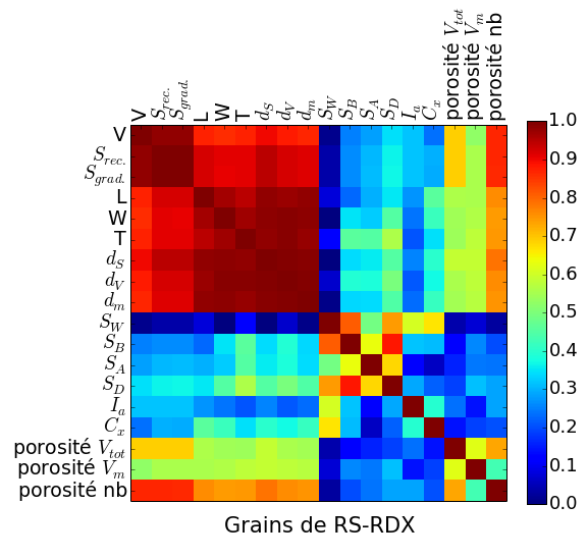


FIGURE 6.30 – Matrice de covariance des descripteurs (en valeurs absolues) pour chaque type de grain de RDX

Un algorithme d'apprentissage automatique linéaire SVM (Support Vector Machine) avec optimisation par descente du gradient stochastique [273] est utilisé pour classifier les trois types de grains. La bibliothèque est scindée en deux : 53 764 grains des trois types de RDX permettent d'entraîner l'algorithme, 5974 grains sont utilisés pour la phase de test. Lors de la phase d'entraînement, l'algorithme apprend où placer les frontières (sous forme d'hyperplans) séparant les trois classes de grains. Cette optimisation se fait dans un espace à 11 dimensions, car chaque grain est caractérisé par 11 descripteurs. Lors de la phase de test, les 5974 grains restants sont classés selon leur position par rapport aux hyperplans. Le taux de bonne classification s'élève à 73,1 %. Ce processus est reproduit sur des grains avec un diamètre équivalent en volume supérieur à 40 μm . L'entraînement est réalisé sur 14846 grains, le modèle est testé sur 1650 grains. Le taux de bonne classification s'élève cette fois-ci à 89,2 %. Ces résultats indiquent que les plus petits grains ont des formes très similaires, il est donc difficile de faire la distinction entre les trois types de RDX. Nous pourrions éventuellement obtenir de meilleurs résultats avec d'autres types d'algorithmes, mais l'objectif de cette classification est principalement de vérifier si l'utilisation de plusieurs descripteurs permet de décrire de façon suffisamment fine un grain, pour être capable de faire la distinction entre les trois types de RDX. Les résultats sont satisfaisants puisqu'après la suppression des plus petits grains, où les descripteurs sont moins représentatifs du fait de la discrétisation, la classification de près de 90 % des grains est correcte.

Une nouvelle réduction du nombre de descripteurs est effectuée en identifiant quels descripteurs ont le plus d'importance dans la classification. Au final, 6 descripteurs sur les 18 initiaux ressortent comme prépondérants :

- un descripteur de taille donné par la longueur L ;
- cinq descripteurs de la forme donnés par la sphéricité de Wadell S_W , la sphéricité de Bullard S_B , la sphéricité d'Alshibli S_A , la sphéricité de Delloro S_D et l'indice d'angularité I_a ;
- un descripteur des défauts intra-granulaires donné par le nombre de défauts dans chaque grain.

6.2.4 Conclusions sur la caractérisation des grains

Les grains extraits des différentes microtomographies segmentées sont caractérisés par 18 descripteurs. L'un de ces descripteurs est un nouvel indice d'angularité défini à partir d'outils de morphologie mathématique. Cet indice d'angularité peut être calculé à la fois sur des objets en 2D et en 3D. Il est, de plus, rapide à calculer et indépendant de la taille des objets.

Une analyse par composante principale est réalisée pour réduire la dimension du problème et estimer le nombre de grandeurs non corrélées nécessaires pour décrire un grain. Quatre composantes principales sont suffisantes pour exprimer 86,3 % de la variance totale des variables initiales, ce qui indique que de nombreux descripteurs sont corrélés. La visualisation du nuage de points dans ce nouveau repère à 4 dimensions ne permet pas de faire la distinction entre les trois types de RDX.

Une tentative de classification est donc réalisée avec des outils d'apprentissage automatique. L'apprentissage est réalisé à partir de 11 descripteurs. Le passage de 18 descripteurs à 11 descripteurs est effectué en étudiant la matrice de corrélation. Après entraînement de l'algorithme du gradient stochastique, le taux de réussite de classification est de 73,1 %. Ce taux monte à 90 % lorsque les plus petits grains, où l'effet de la discrétisation est important sur la détermination des marqueurs, ne sont plus considérés. Ce résultat démontre que les plus petits grains des différents types de RDX sont similaires. Il indique également que les 11 descripteurs permettent de décrire les grains de manière suffisamment précise pour permettre de faire la différence entre les trois types de grains.

Suite à cette classification, une nouvelle réduction du nombre de descripteurs est effectuée. Les paramètres restants sont les plus pertinents pour caractériser les grains de RDX. Sur les 18 paramètres initiaux, 6 descripteurs sont finalement retenus : la longueur L , les quatre indices de sphéricité, l'indice d'angularité et le nombre de défauts intra-granulaires dans chaque grain. Ce sont ces descripteurs qui seront utilisés pour sélectionner des grains particuliers lors de la génération de nouvelles microstructures (chapitre 7).

Troisième partie

Modélisation de matériaux énergétiques

Chapitre 7

Génération de microstructures à partir de microtomographies

Il est possible de réaliser des simulations numériques basées sur les géométries réelles extraites des microtomographies, mais la géométrie est, comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, complexe. Il est donc difficile de déterminer quels facteurs jouent réellement un rôle dans la formation des points chauds. Nous cherchons donc à générer des géométries à la fois simplifiées et statistiquement représentatives. Travailler sur des modèles simplifiés permet de décorréler les paramètres. On peut étudier l'influence d'un paramètre, par exemple celui de la présence de défauts intra-granulaires, en privilégiant la sélection des grains contenant des défauts dans la bibliothèque de grains préalablement créée et triée. Ces microstructures virtuelles doivent cependant conserver un niveau de réalisme satisfaisant, afin de ne pas devenir trop théoriques. Ce chapitre présente, dans un premier temps, la méthodologie pour générer des microstructures à partir d'une bibliothèque de grains. Dans un second temps, la représentativité des microstructures virtuelles est vérifiée en contrôlant que la granulométrie, la covariance spatiale et le module de compressibilité respectent ceux des matériaux réels microtomographiés.

7.1 Génération des microstructures

7.1.1 Méthodologie

Un code en Fortran a été mis au point pour générer des microstructures à partir d'une bibliothèque de grains, en respectant une fraction volumique et une distribution de taille de grains donnée. L'algorithme s'appuie sur le principe du RSA (Random Sequential Adsorption) [274]. Le RSA consiste à choisir un grain, puis à essayer de le placer dans un volume à une position aléatoire. Le grain est adsorbé, ou implanté, dans le modèle s'il n'intersecte pas d'autres grains placés au préalable. Pour obtenir des grains « coupés » sur le bord du volume, comme dans un sous-volume extrait des microtomographies, les microstructures générées sont périodiques. Nous rappelons que la méthode RSA est adaptée pour générer des modèles avec des fractions volumiques maximales de l'ordre de 70 %. Pour obtenir des modèles plus denses, des codes de compaction s'appuyant sur l'algorithme de Lubachevsky-Stillinger [146] sont utilisés (voir Sec.2.2.2 pour plus de détails).

La génération des microstructures avec le code Fortran se décompose en 5 étapes (Fig. 7.1).

- La première étape est l'organisation de la bibliothèque de grains en plusieurs classes selon la taille des grains. Nous utilisons pour générer nos microstructures 8 classes définies à partir du volume des grains. La détermination des bornes de chaque classe n'est pas linéaire mais logarithmique pour éviter d'avoir des classes ne contenant que très peu de grains. En effet, les plus gros grains étant peu nombreux, on peut ne retrouver qu'une dizaine de grains dans certaines classes si les bornes sont définies de manière linéaire. Le même gros grain apparaît alors plusieurs fois dans le volume avec la même orientation, ce qui peut introduire

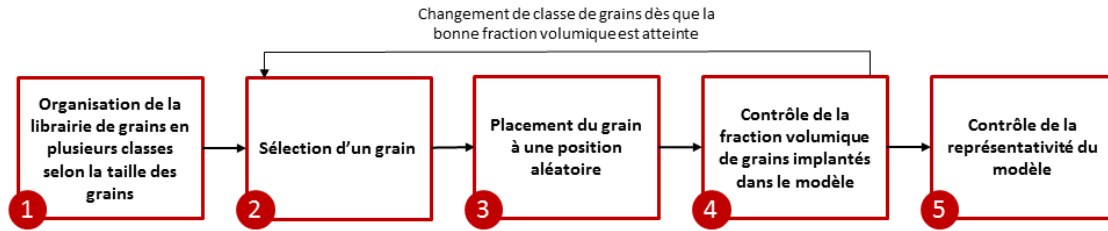


FIGURE 7.1 – Schéma des différentes étapes pour générer des microstructures virtuelles

TABEAU 7.1 – Exemple de la répartition des grains dans 8 classes selon le volume des grains pour la bibliothèque de grains de VI-RDX.

Classe	Bornes (volume en nombre de voxels)	Nombre de grains	Pourcentage (en volume) à implanter
1	> 1 730 197	62	15,7
2	481 603-1 730 197	433	25,6
3	134 055-481 603	2 099	32,9
4	37 314-134 055	3 873	16,4
5	10 386-37 314	5 624	6,36
6	2 891-10 386	5 901	1,83
7	805-2 891	4 983	0,43
8	0-805	2 236	0,06

un biais. Le pourcentage de grains (en volume) provenant de chaque classe est ensuite déterminé pour respecter une granulométrie donnée. Une correction de Miles-Lantuéjoul a été appliquée au préalable (voir définition dans la section 5.2.3). Cette correction permet de compenser le fait que seuls les grains complètement inclus dans les volumes segmentés sont extraits. Par conséquent, les plus gros grains ayant une probabilité plus élevée de se trouver sur les bords du volume sont sous-représentés dans la bibliothèque. Les 8 classes définies pour les grains de VI-RDX ainsi que le pourcentage de grains provenant de chaque classe nécessaire pour reproduire la granulométrie du matériau VI-RDX/cire microtomographié sont présentés dans le tableau 7.1.

- La deuxième étape est la sélection d'un grain au sein d'une classe. La sélection du grain peut se faire de manière aléatoire, mais peut également se faire selon certains critères. Par exemple, il est possible d'implanter dans le modèle uniquement les grains les moins anguleux, avec un indice d'angularité inférieur à 0,3. Mais il est possible que dans certaines classes, très peu de grains (voir aucun grain) aient un indice d'angularité inférieur au seuil fixé. Dans cette situation, un nouveau seuil est calculé de telle sorte qu'au minimum 15 % des grains de la classe puissent être sélectionnés. Cette souplesse sur le critère de sélection des grains permet : de respecter la granulométrie souhaitée, d'éviter d'implanter dans le volume le même grain un grand nombre de fois.

Pour être capable d'atteindre des fractions volumiques de grains importantes, nous commençons par placer les grains provenant de la première classe, qui contient les plus gros grains. Nous finissons par la classe contenant les plus petits grains.

- La troisième étape est le placement du grain dans le volume. Une distance de répulsion minimale entre les grains peut être fixée par l'opérateur. Cette distance de répulsion permet de fixer la distance minimale entre les objets. Le grain sélectionné est placé à une position aléatoire dans le volume. Si le grain n'intersecte aucun grain placé préalablement, il est implanté

dans le volume. En cas d'intersections, deux options se présentent en fonction du nombre de grains déjà placés. Dans le cas où moins de 20 grains ont déjà été implantés dans le modèle, une nouvelle position aléatoire est choisie jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'intersections. Dans l'autre cas, le grain est déplacé d'un voxel dans une direction aléatoire choisie au préalable jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'intersections, et que la distance de répulsion minimale soit respectée. Si après avoir parcouru toute la longueur du volume, le grain n'est toujours pas adsorbé, il est replacé à une nouvelle position aléatoire. Si le grain a été replacé 50 fois sans qu'aucune position ne soit validée, le processus redémarre avec un nouveau grain. Déplacer le grain au lieu de choisir une nouvelle position permet d'atteindre des fractions volumiques de près de 60 % en des temps de calcul raisonnables.

- Lorsqu'un grain est adsorbé, la nouvelle fraction volumique de grain est déterminée. Le pourcentage (en volume) des grains de chaque classe à implanter dans le volume pour respecter une granulométrie donnée a été calculé lors de la première étape. À partir de la fraction volumique de grains souhaitée, il est donc possible de calculer la fraction volumique à partir de laquelle il faut changer de classe. Les étapes 2, 3 et 4 sont répétées pour chacune des classes de grains jusqu'à atteindre la fraction volumique finale.
- La dernière étape est une vérification de la représentativité des microstructures générées. Cette étape est décrite plus en détail dans la section 7.2.

7.1.2 Résumé des microstructures disponibles

Plusieurs microstructures virtuelles ont été générées avec le code Fortran en considérant 8 classes de grains définies à partir du volume. Ces nouvelles géométries respectent :

- une fraction volumique de 56 %;
- la granulométrie des matériaux microtomographiés.

Nous disposons d'un modèle de 500^3 voxels pour le matériau RS-RDX/cire et d'un modèle de 500^3 voxels pour le matériau RVI-RDX/cire. La génération de ces microstructures est très chronophage, car elle nécessite près de 6 jours de calcul sur un processeur. Le matériau RVI-RDX/cire est complexe à générer du fait des formes allongées et concaves des grains de RVI-RDX. Pour le matériau RS-RDX/cire, la difficulté provient de la forme concave des grains, mais aussi de sa granulométrie étroite. Le code Fortran pourrait être optimisé pour réduire ces temps de calcul. Quelques pistes d'optimisation sont évoquées à la fin de ce chapitre.

Nous avons finalement choisi de ne pas générer davantage de microstructures représentatives des matériaux RS-RDX/cire et RVI-RDX/cire, mais de nous concentrer sur le matériau VI-RDX/cire. Ce matériau est plus facile à modéliser, même s'il faut près de six jours de calcul pour obtenir des volumes de 1000^3 voxels. Nous disposons d'une vingtaine de microstructures virtuelles représentant le matériau VI-RDX/cire de 500^3 et de 1000^3 voxels. Un résumé des différents modèles disponibles est présenté dans le tableau 7.2. Certains modèles sont générés avec les mêmes paramètres pour vérifier la stabilité de la méthode et la reproductibilité des résultats (par exemple les modèles numérotés 9 et 10 ou encore les modèles numérotés 16 et 17).

Les microstructures de 500^3 voxels nous ont permis de tester des configurations, et d'obtenir des résultats plus rapidement. Les exploitations se font préférentiellement sur les volumes de 1000^3 voxels. En dehors des dimensions, trois paramètres varient d'un modèle à l'autre.

Le premier paramètre qui varie est la fraction volumique de grains égale soit à 54 %, soit à 56 %. Des premiers essais de segmentations, non présentés dans le manuscrit, conduisaient à des fractions volumique d'environ 54 %. Cette fraction volumique a été retenue pour générer le premier lot de modèles. Les segmentations finales ayant des fractions volumiques de RDX environ égale à la fraction volumique théorique de 56 %, de nouveaux modèles ont été générés. Ces modèles avec

TABLEAU 7.2 – Caractéristiques des différentes microstructures générées avec 8 classes de grains

Numéro	Taille (voxels)	fraction volumique	Répulsion h (voxels)	Sélection des grains
RS-RDX/cire				
1	500 ³	0,54	0	aléatoire
RVI-RDX/cire				
2	500 ³	0,54	0	aléatoire
VI-RDX/cire				
3	500 ³	0,54	0	aléatoire
4	500 ³	0,54	-3	aléatoire
5	500 ³	0,54	-5	aléatoire
6	500 ³	0,54	1	sphéricité de Wadell > 0,82
7	500 ³	0,54	1	angularité < 0,30
8	1000 ³	0,54	0	aléatoire n°1
9	1000 ³	0,54	0	aléatoire n°2
10	1000 ³	0,56	0	aléatoire n°1
11	1000 ³	0,56	0	aléatoire n°2
12	1000 ³	0,54	1	aléatoire
13	1000 ³	0,56	0	sphéricité de Wadell < 0,82
14	1000 ³	0,56	0	sphéricité de Wadell > 0,82
15	1000 ³	0,54	1	sphéricité de Wadell > 0,82
16	1000 ³	0,56	0	angularité < 0,30 n°1
17	1000 ³	0,56	0	angularité < 0,30 n°2
18	1000 ³	0,54	1	angularité < 0,30
19	1000 ³	0,56	0	angularité > 0,30

des fractions volumiques différentes permettent de quantifier l'effet de la fraction volumique sur la granulométrie par ouverture, la covariance spatiale et la réponse élastique d'un matériau.

Le deuxième paramètre que nous faisons varier est la distance de répulsion entre les grains. Des microstructures avec des distances de répulsion de -5, -3, 0, et 1 voxels sont disponibles. Les microstructures avec des répulsion négatives sont décrites plus en détail dans la section 7.2.2.

Le dernier paramètre est la méthode de sélection des grains à implanter dans le modèle. Certaines microstructures sont construites avec des grains choisis aléatoirement. Pour d'autres microstructures, seuls les grains ayant un indice d'angularité inférieur ou supérieur à 0,30, ou encore un indice de sphéricité de Wadell inférieur ou supérieur à 0,82 sont sélectionnés. Nous rappelons que la sphéricité de Wadell est définie comme le rapport de la surface d'une sphère ayant le même volume que le grain sur la surface du grain (voir section 6.2.1). Les valeurs seuils d'angularité et de sphéricité correspondent aux valeurs médianes de la bibliothèque de grains. La sélection des grains se fait à partir des descripteurs de formes identifiés comme les plus pertinents lors de l'analyse statistique réalisée dans le chapitre 6 (Sec. 6.2.3). Des coupes extraites des microstructures virtuelles générées avec différentes méthodes de sélection des grains et une répulsion nulle (modèles numérotés 10, 13, 14, 16, 19) sont présentées sur la figure 7.2. Visuellement, il est difficile de faire la différence entre la microtomographie segmentée et les différents modèles. La différence de microstructure entre les modèles construits avec des grains plus ou moins sphériques, et avec des grains plus ou moins anguleux, n'est pas non plus visible sur les coupes 2D.

Nous vérifions l'effet des méthodes de sélection des grains en étudiant les distributions des descripteurs principaux (identifiés lors de l'analyse statistique, voir section 6.2.3) du matériau réel et des différents modèles. Nous traçons ainsi les distributions de l'indice d'angularité, des quatre indices de sphéricité et du nombre de défauts intra-granulaires (Fig. 7.3 et Fig. 7.4). Les cinq microstructures virtuelles étudiées sont celles numérotées 10, 13, 14, 16, et 19 dans le tableau 7.2.

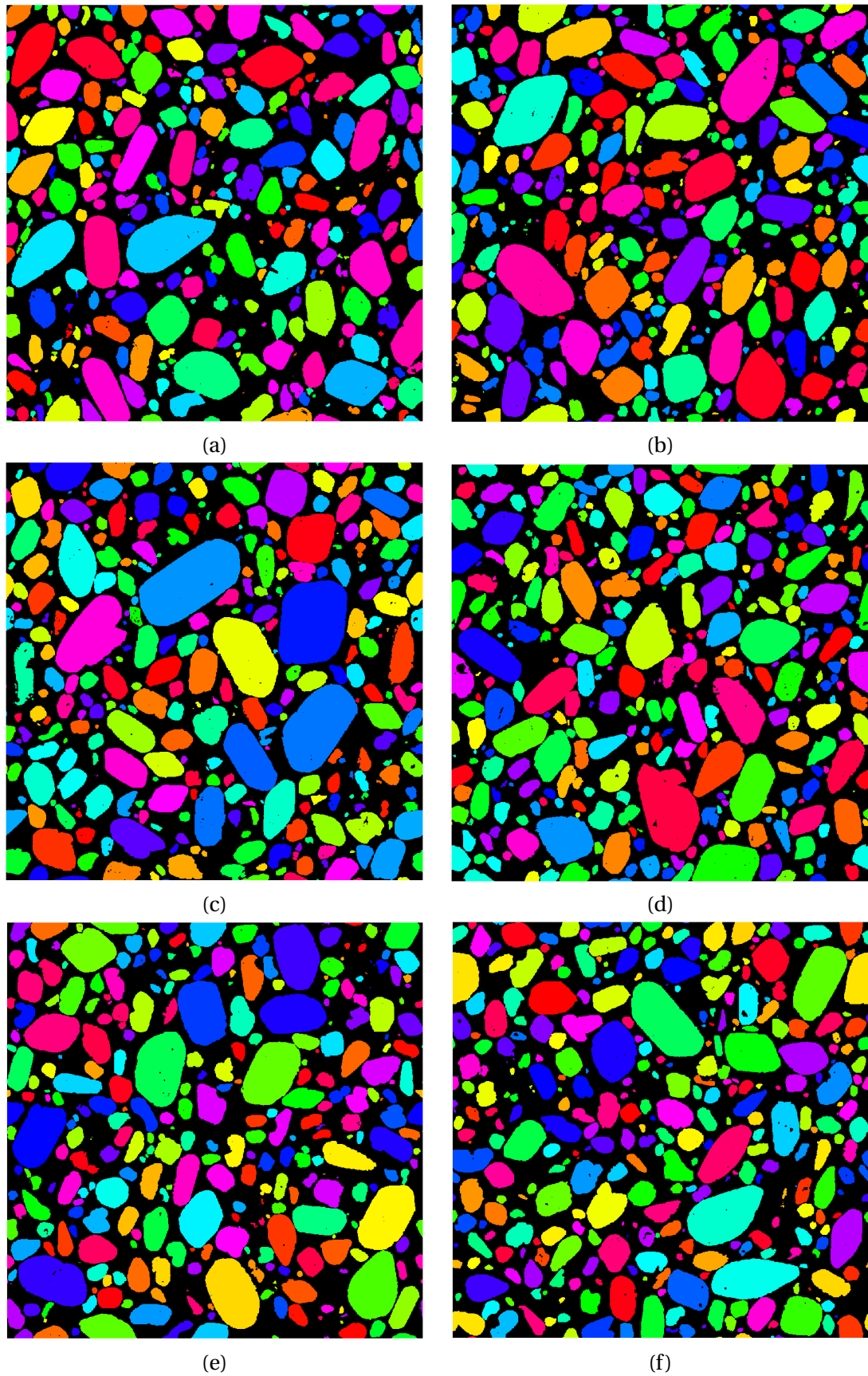


FIGURE 7.2 – Coupes extraites de volumes de 1000^3 (a) d'une microstructure segmentée, et de modèles générés avec une répulsion nulle en sélectionnant les grains (b) aléatoirement, (c) avec un indice de sphéricité $S_W < 0,82$, (d) avec un indice de sphéricité $S_W > 0,82$, (e) avec un indice d'angularité $I_a < 0,30$ et (f) avec un indice d'angularité $I_a > 0,30$

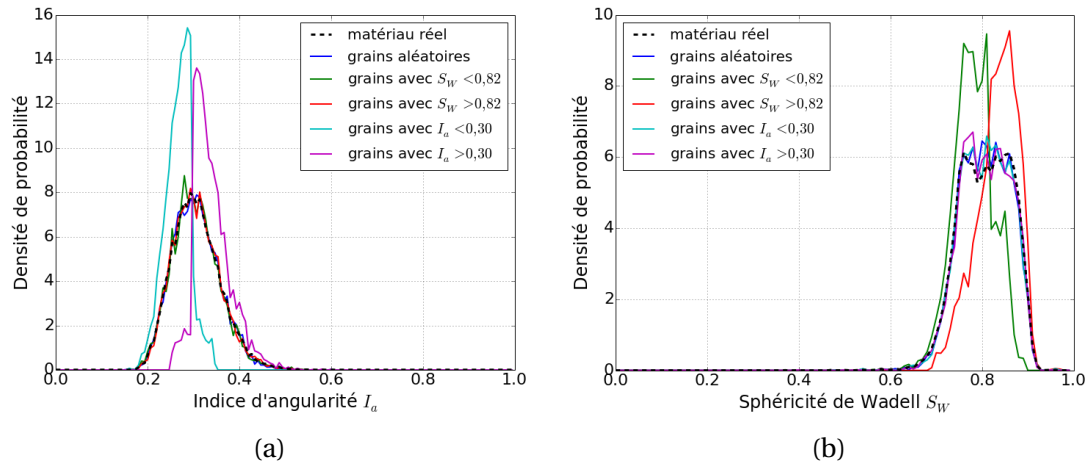


FIGURE 7.3 – Comparaison des distributions entre le matériau réel et plusieurs modèles avec des méthodes de sélection des grains différents (modèles numérotés 10, 13, 14, 16, 19) de (a) l'indice d'angularité I_a et (b) l'indice de sphéricité de Wadell S_W

Pour les deux microstructures à angularité contrôlée, le biais dans la sélection des grains est bien visible : le pic de distribution est décalé vers la gauche pour la microstructure construite avec des grains d'angularité inférieure à 0,30, et décalé vers la droite pour la microstructure construite avec des grains d'angularité supérieure à 0,30 (Fig. 7.3a). Nous remarquons tout de même que certains grains ont des angularité au-dessous ou au-dessus du seuil théorique de 0,3. Ce phénomène révèle que dans certaines classes, moins de 15 % des grains peuvent être sélectionnés, ce qui entraîne le calcul d'un nouveau seuil comme expliqué à la section 7.1.1. Les trois autres modèles, avec une sélection des grains aléatoire ou avec une sélection des grains en fonction de l'indice de sphéricité de Wadell respectent la distribution d'angularité du matériau réel.

Des constatations similaires sont réalisées sur les microstructures à sphéricité contrôlée en étudiant la figure 7.3b. Seules les distributions de sphéricité de Wadell des modèles où les grains sont sélectionnés en fonction de l'indice de sphéricité sont différentes. Les autres modèles respectent, une nouvelle fois, la distribution du matériau réel.

Nous vérifions sur la figure 7.4 que la distribution des autres descripteurs n'est pas affectée par la méthode de sélection des grains. Les sphéricités de Bullard, d'Alshibli et de Delloro ainsi que le nombre de défauts intra-granulaires des cinq microstructures virtuelles respectent bien ceux du matériau réel. Cette analyse montre que nous sommes capables de générer plusieurs modèles en faisant varier uniquement un seul paramètre microstructural. Cela est lié au fait que les deux descripteurs utilisés pour sélectionner les grains font partie des six descripteurs faiblement corrélés, tels qu'identifiés lors de l'analyse statistique (Sec. 6.2.3).

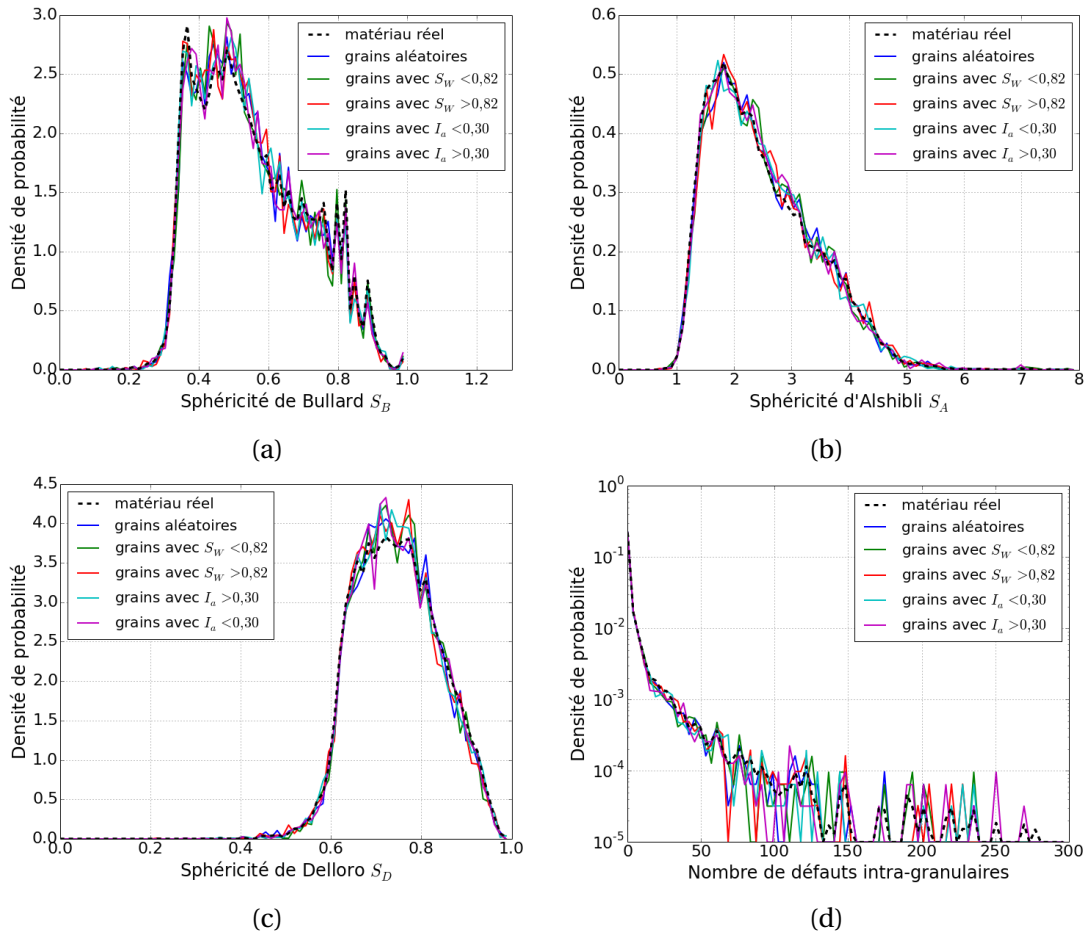


FIGURE 7.4 – Comparaison des distributions entre le matériau réel et plusieurs modèles avec des méthodes de sélection des grains différents (modèles numérotés 10, 13, 14, 16, 19) de (a) l'indice de sphéricité de Bullard S_B , (b) l'indice de sphéricité d'Alshibli S_A , (c) l'indice de sphéricité de Delloro S_D et (d) le nombre de défauts intra-granulaires par grain

7.2 Comparaison des microstructures virtuelles avec les matériaux réels

Pour vérifier que les modèles sont représentatifs du matériau réel, c'est à dire des microtomographies segmentées, nous déterminons et comparons les différentes grandeurs de caractérisation globale introduites dans la section 6.1. Nous comparons donc :

- la granulométrie par ouverture des grains et du liant ;
- la covariance spatiale ;
- le module d'élasticité isostatique.

7.2.1 Contrôle de la granulométrie et de la covariance spatiale

La comparaison des granulométries par ouverture (Fig. 7.5) et de la covariance spatiale (Fig. 7.6) est illustrée pour trois des modèles de 1000^3 voxels avec une fraction volumique de 56 % : le modèle 10 où les grains sont choisis aléatoirement, le modèle 14 construit avec des grains dont l'indice de sphéricité de Wadell est supérieur à 0,82, et le modèle 19 construit avec des grains dont l'indice d'angularité est supérieur à 0,30. Des résultats similaires sont obtenus sur tous les autres modèles présentés dans le tableau 7.2.

La comparaison de la granulométrie par ouverture des grains de VI-RDX, entre les microstructures segmentées et les trois modèles, est présentée sur la figure 7.5a. Les courbes granulométriques sont très proches, ce qui révèle que 8 classes permettent de reproduire correctement la distribution de taille de grains du matériau réel. La courbe granulométrique du liant est légèrement moins bien reproduite (Fig. 7.5b) lorsque la fraction volumique de grains est de 56 %. La courbe granulométrique indique en effet que la répartition des grains dans le modèle est plus homogène que dans le matériau réel. En revanche, lorsque la fraction volumique est égale à 54 %, la courbe granulométrique du liant est quasi identique à celle du matériau réel (Fig. 7.9).

L'écart entre modèles et matériau réel reste tout de même acceptable, même lorsque la fraction volumique est égale à 56 %. Du point de vue de la distribution de taille et de l'espacement entre les grains, notre modèle numérique est satisfaisant.

La deuxième vérification porte sur la covariance spatiale (Fig. 7.6). $C(0)$ doit correspondre à la fraction volumique de RDX p et l'asymptote à p^2 . Une fraction volumique $p = 0,56$ est bien retrouvée pour les trois modèles. Encore une fois les résultats entre le volume segmenté et les modèles numériques sont satisfaisants.

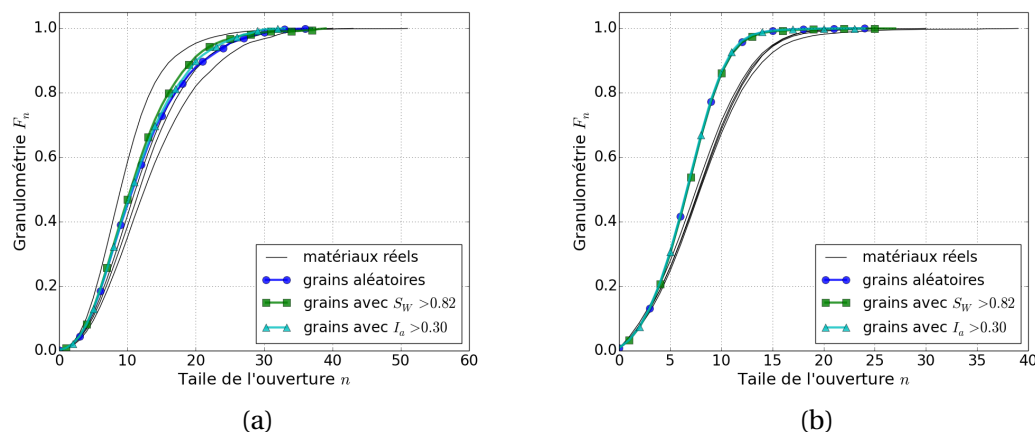


FIGURE 7.5 – Granulométrie des microstructures segmentées et de plusieurs modèles (numérotés 10, 14, 19) avec différentes méthode de sélection des grains pour (a) les grains et (b) le liant

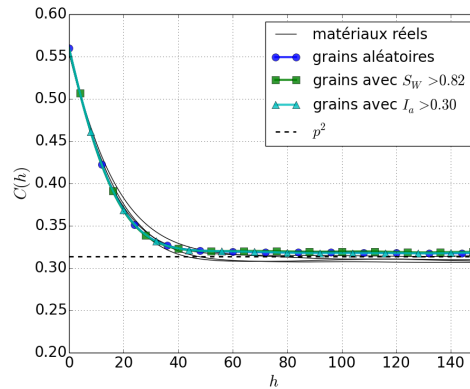


FIGURE 7.6 – Covariance spatiale des microstructures segmentées et de plusieurs modèles (numérotés 10, 14, 19) avec différentes méthodes de sélection des grains

7.2.2 Contrôle du module de compressibilité

Nous vérifions que la réponse élastique des matériaux virtuels est identique à celle du matériau réel, c'est-à-dire à celles des microtomographies segmentées. Pour ce faire, les différents modèles subissent la même déformation hydrostatique que celle appliquée sur les matériaux réels (section 6.1.3). Nous nous concentrons, une fois encore, sur le matériau à base de VI-RDX. Les champs complets des contraintes et le module d'élasticité isostatique (ou module de compressibilité) sont estimés par calculs FFT.

Le module de compressibilité, noté K , des différentes microstructures virtuelles est présenté dans le tableau 7.3. Pour commencer, nous remarquons la bonne reproductibilité des résultats. En effet, les différents modèles générés avec les mêmes paramètres ont des modules de compressibilité très similaires :

- les modèles 8 et 9, avec une fraction volumique de 54 %, une répulsion nulle et une sélection des grains aléatoire ont un module de compressibilité égal à 0,20 GPa;
- les modèles 10 et 11, avec une fraction volumique de 56 %, une répulsion nulle et une sélection des grains aléatoire ont un module de compressibilité égal à 0,22 GPa;
- les modèles 16 et 17, avec une fraction volumique de 56 %, une répulsion nulle et une sélection des grains avec un indice d'angularité inférieur à 0,30 ont un module de compressibilité égal à 0,22 GPa.

D'une manière générale, le module de compressibilité des modèles est près de deux fois plus faible que celui du matériau réel égal à 0,387 GPa (Tab. 6.2). Les modèles sont donc plus souples que le matériau réel. Cette différence de réponse élastique entre microstructures réelles et virtuelles indique qu'un paramètre important n'est pas pris en compte dans notre modèle.

Nous avons vu précédemment que les contraintes maximales étaient localisées au niveau des points et des surfaces de contact entre les grains (section 6.1.3). Or, l'algorithme de génération des modèles s'inspire de la méthode RSA, où un grain est implanté lorsqu'il n'y a pas d'intersections avec des grains placés préalablement. Avec cette méthode de construction, la connectivité est presque nulle. Nous construisons donc deux modèles avec des distances de répulsion négatives. Pour générer ces modèles particuliers, l'étape 3 de l'algorithme est légèrement modifiée. Le grain est déplacé dans une certaine direction jusqu'à ce qu'une position pour laquelle il n'y a plus d'intersections soit trouvée. Une fois cette position identifiée, le grain est à nouveau déplacé dans la même direction, mais le sens opposé pour obtenir une épaisseur d'intersection égale à la distance de répulsion négative. Dans les deux modèles générés, l'épaisseur de recouvrement n'est que de 3 ou 5 voxels pour éviter une modification importante de la distribution de taille des

TABLEAU 7.3 – Module de compressibilité et fraction volumique des différents modèles avant et après l’insertion de contacts entre les grains

Num.	Taille (voxels)	Répulsion (voxels)	Sélection des grains	f_v avant/après fermeture	K avant/après fermeture (GPa)
3	500 ³	0	aléatoire	0,540/0,543 0,540/0,550	0,195/0,346 (taille 1) 0,195/0,624 (taille 2)
4	500 ³	-3	aléatoire	0,540/0,543	0,248 / 0,365
5	500 ³	-5	aléatoire	0,540/0,543	0,257/0,334
6	500 ³	1	$S_W > 0,82$	0,540/-	0,172/-
7	500 ³	1	$I_a < 0,30$	0,540/0,542	0,172/0,263
8	1000 ³	0	aléatoire n°1	0,540/0,543	0,202/0,395
9	1000 ³	0	aléatoire n°2	0,540/0,550	0,207/0,388
10	1000 ³	0	aléatoire n°1	0,560/0,563	0,222/0,461
11	1000 ³	0	aléatoire n°2	0,560/0,563	0,220/0,458
12	1000 ³	1	aléatoire	0,540/-	0,173/-
13	1000 ³	0	$S_W < 0,82$	0,560/0,563	0,220/0,459
14	1000 ³	0	$S_W > 0,82$	0,560/0,563	0,220/0,457
15	1000 ³	1	$S_W > 0,82$	0,540/-	0,174/-
16	1000 ³	0	$I_a < 0,30$ n°1	0,560/0,563	0,218/0,461
17	1000 ³	0	$I_a < 0,30$ n°2	0,560/-	0,220/-
18	1000 ³	1	$I_a < 0,30$	0,540/-	0,174/-
19	1000 ³	0	$I_a > 0,30$	0,560/0,563	0,221/0,469
Matériau réel	1000 ³	-	-	0,557	0,387

grains et de la fraction volumique finale. En effet, le volume perdu lors du recouvrement d’un grain par un autre n’est pas calculé. Une comparaison de la connectivité et des surfaces spécifiques en contact entre le matériau réel et les trois modèles de 500³ voxels avec une répulsion de 0, -3 et -5 voxels est présentée sur la figure 7.7. Les modèles avec des distances de répulsion négatives ont effectivement une connectivité et des surfaces de contact plus importantes que le modèle avec une répulsion nulle. On rappelle que la connectivité est la mesure du nombre de points de contact entre les grains (Sec. 6.1.4). Néanmoins, cette répulsion négative n’est pas suffisante pour reproduire la connectivité et les surfaces de contacts du matériau réel, qui restent plus élevées. Cette augmentation des points et surfaces de contact, même minimale, génère une augmentation du module de compressibilité. Ce dernier passe de 0,17 GPa (répulsion de 1 voxel) et 0,20 GPa (répulsion nulle) à 0,25 GPa dès lors que certains grains s’interpénètrent sur une épaisseur de 5 voxels.

Nous décidons alors d’introduire artificiellement des contacts entre les grains par une opération morphologique de fermeture. Cette opération bouche les canaux et les isthmes, ce qui crée des points et des surfaces de contact entre les grains déjà proches initialement. Cette opération supprime également la porosité intra-granulaire. Une fois l’opération de fermeture effectuée, la porosité intra-granulaire est donc réintroduite dans le modèle. Un exemple illustrant l’effet de la fermeture suivi de la récupération des défauts intra-granulaires est visible sur la figure 7.8. L’introduction de contacts entre les grains affecte de manière négligeable la granulométrie (Fig. 7.9), la covariance spatiale (Fig. 7.10) et la fraction volumique (Tab. 7.3). Ce résultat est présenté sur les figures 7.9 et 7.10 pour un modèle avec une fraction volumique de 54 %, une répulsion nulle et une sélection des grains aléatoire (modèle numéro 9). Les mêmes conclusions sont obtenues pour tous les autres modèles, y compris ceux avec une fraction volumique de grains de 0,56.

Une fermeture par un élément structurant cubique de taille 1 est appliquée sur plusieurs microstructures virtuelles. Ces nouveaux modèles subissent, comme précédemment, une déformation hydrostatique de 1 %. Le module de compressibilité et le champ complet des contraintes

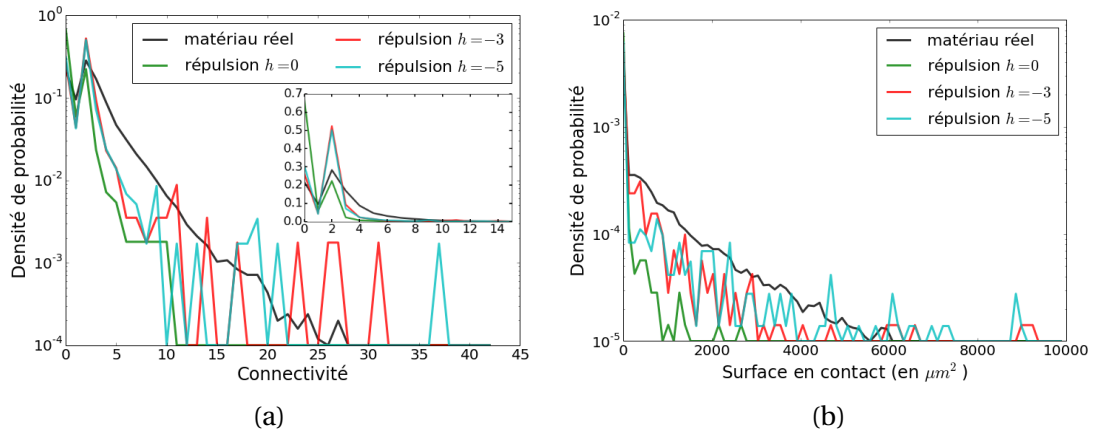


FIGURE 7.7 – Comparaison des distributions de (a) la connectivité et (b) les surfaces de contacts entre le matériau réel et trois modèles des distances de répulsion de 0 (modèle n°3), -3 (modèle n°4) et -5 voxels (modèle n°5)

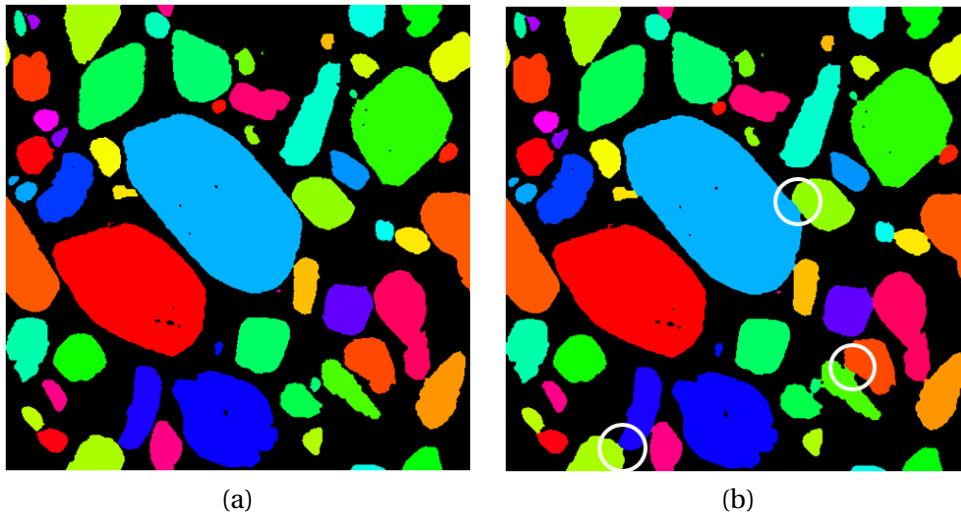


FIGURE 7.8 – Comparaison d’une microstructure (a) avant et (b) après l’introduction de points de contact par une fermeture puis une récupération de la porosité

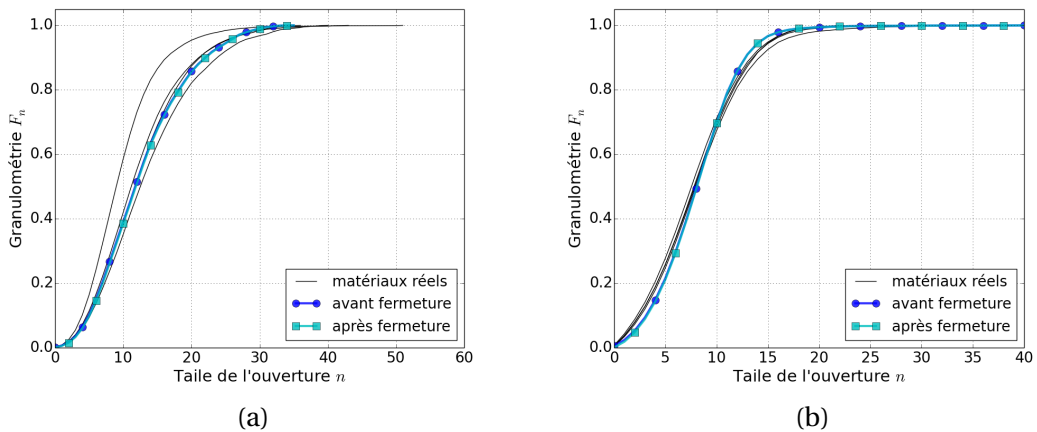


FIGURE 7.9 – Granulométrie des microstructures segmentées et du modèle 9 avec sélection aléatoire des grains de VI-RDX avant et après ajout de points de contact par fermeture morphologique pour (a) les grains et (b) le liant

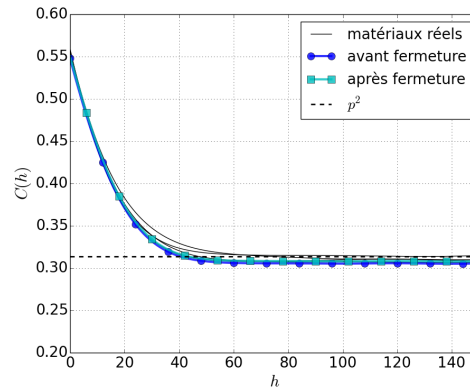


FIGURE 7.10 – Covariance spatiale des microstructures segmentées et du modèle 9 avec sélection aléatoire des grains de VI-RDX avant et après ajout de points de contact par fermeture morphologique

sont, une nouvelle fois, déterminés par méthode FFT. L'introduction de contacts entre les grains permet de se rapprocher du module de compressibilité du matériau réel de 0,387 GPa (Tab. 7.3). Les modèles les plus représentatifs du matériau réel, en terme de module de compressibilité, sont ceux où les grains ont été sélectionnés aléatoirement avec une répulsion nulle et une fraction volumique initiale de 54 % (modèles 3, 8 et 9). En revanche, les modèles construits avec les mêmes paramètres, mais avec une fraction volumique initiale de 56 % sont plus rigides que le matériau réel VI-RDX/cire (modèles 10 et 11). Les distributions de la connectivité et des surfaces de contact des modèles 8 et 10, avec les mêmes paramètres mais des fractions volumiques différentes, sont présentées sur la figure 7.11. La fermeture permet d'obtenir des connectivités et des surfaces de contact entre les grains se rapprochant de celles du matériau réel. La comparaison des surfaces de contact entre les grains pour le matériau réel et les modèles après l'opération de fermeture est très satisfaisante. Des écarts plus importants sont observés pour la connectivité, avec davantage de grains ayant plus de 15 contacts dans les modèles que dans le matériau réel. Néanmoins, les différences apparaissant principalement sur la queue de distribution, la comparaison des contacts entre les microstructures virtuelles et les microstructures réelles est également satisfaisante. La figure 7.11 indique que la connectivité et les surfaces de contact entre les grains pour les modèles avec une fraction volumique de 54 % et 56 % sont très proches, même après l'opération de fermeture. La différence de module de compressibilité entre ces deux modèles, déjà présente initialement, est amplifiée par l'opération de fermeture. La connectivité et les surfaces de contact étant similaires, la variation du module de compressibilité est liée à la fraction volumique. Nous rappelons que la fraction volumique moyenne des quatre sous-volumes microtomographiés de VI-RDX/cire est de 55,7 %.

Finalement, cette étude révèle l'importance de calibrer finement les contacts entre les grains et la fraction volumique de grains pour modéliser à l'échelle macroscopique la réponse élastique d'un milieu granulaire.

L'introduction de contacts entre les grains est également clairement visible sur les distributions des contraintes moyennes locales (Fig. 7.12). La distribution des contraintes dans le modèle après la fermeture est très proche de celle mesurée sur les microtomographies. Pour toutes les microstructures virtuelles testées, l'introduction des contacts entre les grains a permis de se rapprocher de la réponse élastique du matériau réel. Ce résultat met en évidence l'importance des contacts entre les grains dans la réponse élastique locale du matériau.

En comparaison de la connectivité, la forme des grains semble être un paramètre moins important dans la réponse élastique de nos matériaux. En effet, les deux modèles construits à partir des grains ayant une sphéricité de Wadell supérieure ou inférieure à 0,82 et les deux modèles construits à partir des grains ayant une angularité supérieure ou inférieure à 0,30, ont la même

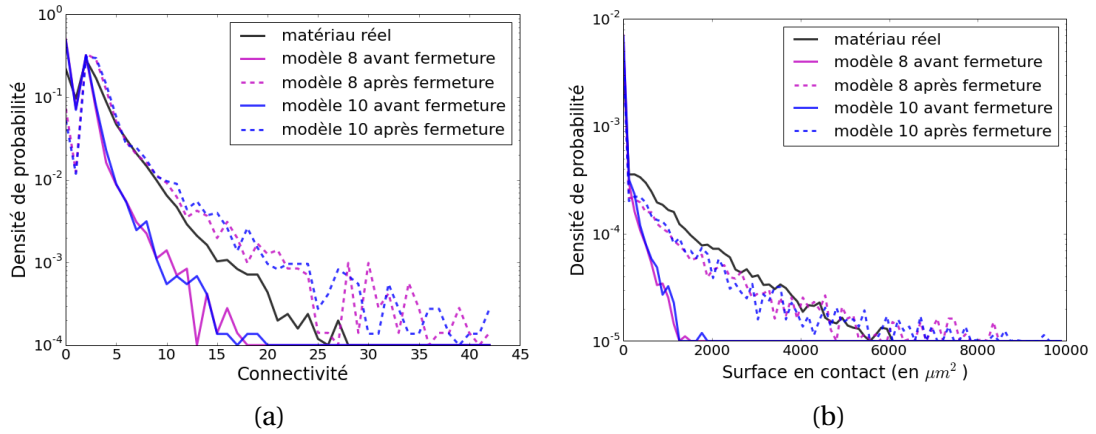


FIGURE 7.11 – Comparaison des distribution (a) de la connectivité et (b) des surfaces de contact entre le matériau réel et deux modèles avec des paramètres identiques (1000^3 voxels, de distance de répulsion nulle, sélection aléatoire des grains) mais des fractions volumique de 54 % (modèle 8) et 56 % (modèle 10)

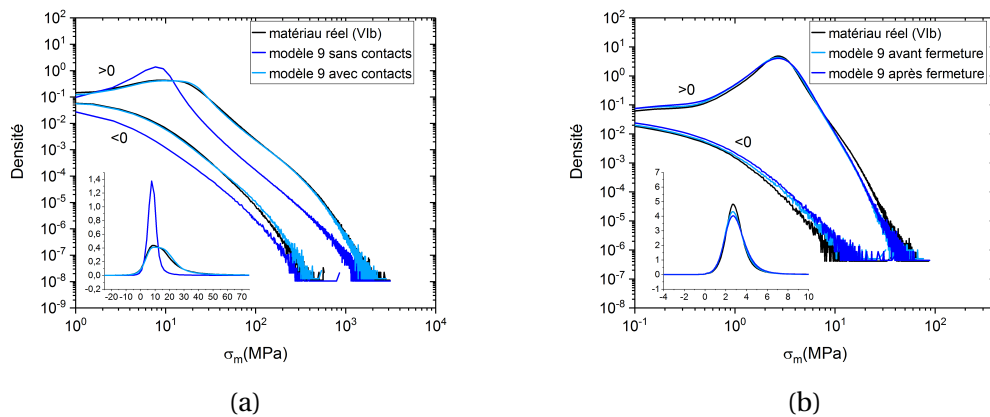


FIGURE 7.12 – Distribution de la contrainte moyenne de la microtomographie segmentée Vib et du modèle généré avec une répulsion nulle et une sélection des grains aléatoire (modèle 9) avant et après fermeture (a) dans les grains de RDX et (b) dans le liant

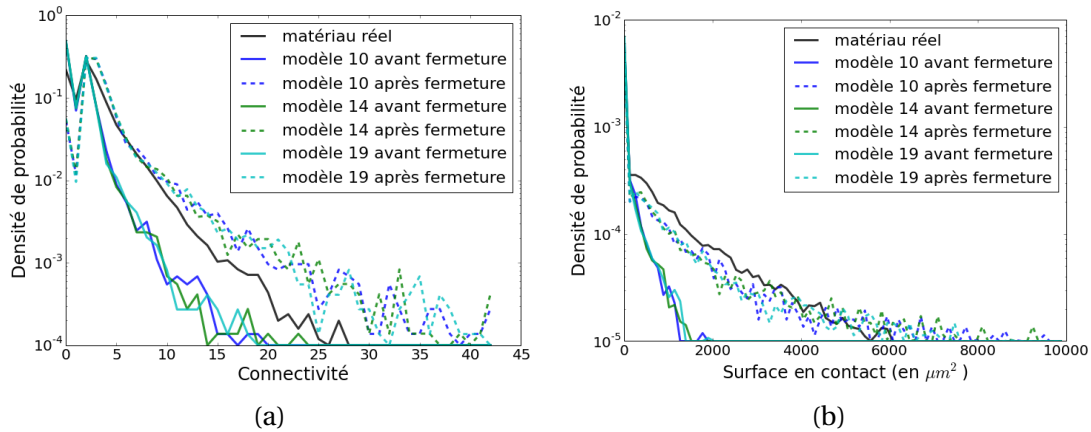


FIGURE 7.13 – Comparaison des distribution (a) de la connectivité et (b) des surfaces de contact entre le matériau réel et trois modèles avec différentes méthodes de sélection des grains : aléatoire (modèle 10), où l'indice de sphéricité est supérieur à 0,82 (modèle 14) , où l'indice d'angularité est supérieur à 0,3 (modèle 19)

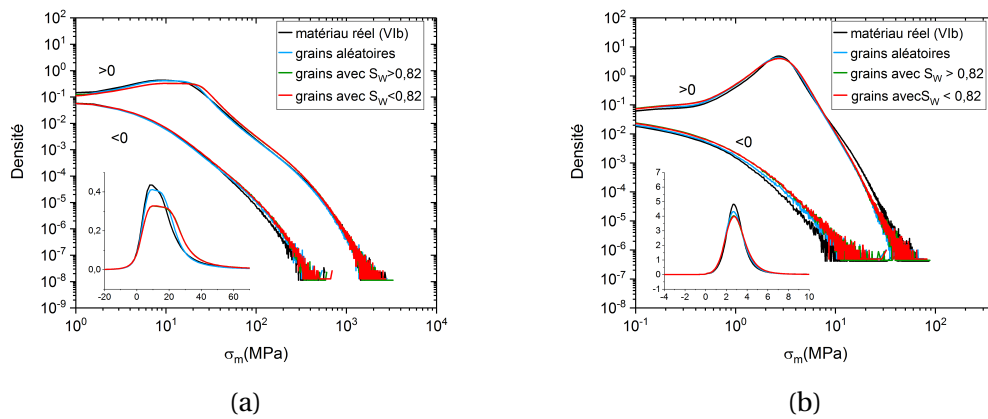


FIGURE 7.14 – Distribution de la contrainte moyenne de la microtomographie segmentée V1b et de différents modèles générés avec sélection aléatoire des grains ou selon leur angularité et sphéricité (modèle 9, 15, 19) après l'ajout des contacts (a) dans les grains de RDX et (b) dans le liant

réponse élastique. Les modules de compressibilité, ainsi que les distributions des contraintes sont quasiment identiques (Tab.7.3 et Fig. 7.14). Cette similarité est présente avant et après l'ajout des contacts entre les grains (Fig. 7.13). Un deuxième modèle avec sélection des grains les plus anguleux (modèle n°17) est généré dans le but de confirmer ces observations. Le module de compressibilité reste très proche de celui du premier modèle (numéroté 16), généré avec les mêmes paramètres. Cette ressemblance entre tous les modèles générés avec un biais dans la sélection des grains pourrait provenir du fait que les différences entre les formes des grains ne sont pas assez marquées. Une solution pour vérifier cette hypothèse pourrait consister à générer des microstructures respectant la granulométrie du matériau VI-RDX/cire, mais avec les grains plus anguleux de RVI-RDX. Par manque de temps, la génération de 1000^3 voxels étant particulièrement coûteuse, cela n'a pas été fait.

7.3 Conclusions et perspectives

Un code Fortran, basé sur le principe du RSA (*Random Sequential Adsorption*), a été développé pour générer des microstructures à partir d'une bibliothèque de grains. Une vingtaine de microstructures représentant le matériau VI-RDX/cire ont été générées. En revanche, seule une microstructure représentant les matériaux RS-RDX/cire et RVI-RDX est disponible du fait des temps de

calcul importants. Bien que le code pour générer différentes microstructures soit opérationnel, il est encore en cours de développement et peut donc être optimisé. L'une des pistes d'optimisation est l'introduction d'une rotation lors du placement d'un grain dans le modèle. L'idée est la suivante : après que le grain a été déplacé jusqu'à ce qu'il n'y ait plus d'intersections, une rotation est effectuée jusqu'à obtenir un deuxième point de contact. La rotation est centrée sur le point du grain qui intersectait un autre grain avant le dernier déplacement. Ce dernier point de contact permet de générer des empilements de grains plus denses. Une autre solution pour réduire les temps de calcul serait de mieux définir les classes des grains, pour faciliter la transition d'une classe à une autre. En effet, l'implantation d'un nouveau grain devient plus compliquée lorsqu'il ne manque plus que quelques grains pour passer à la classe suivante. La situation se débloque dès lors qu'il y a un changement de classe, car les grains étant plus petits, ils se logent plus facilement dans les interstices. Une meilleure estimation du nombre de classes et de leurs bornes en fonction de la granulométrie souhaitée permettrait d'accélérer les calculs.

Nous sommes parvenus à générer des microstructures représentatives en choisissant aléatoirement des grains dans la bibliothèque, mais également en sélectionnant uniquement des grains avec des géométries spécifiques. Ces microstructures respectent la granulométrie morphologique des grains et du liant ainsi que la covariance spatiale des microstructures segmentées. En revanche, les modèles apparaissaient initialement comme plus souples que le matériau réel. Cette différence est liée à l'absence de points et de surfaces de contact entre les grains dans les microstructures virtuelles. Après introduction de contacts entre les grains, grâce une opération de morphologie mathématique de fermeture, la réponse élastique des modèles se rapproche de celle du matériau réel. Les *distributions locales* des champs de contraintes dans le modèles sont très proches de celles obtenues sur les microtomographies. En revanche, la forme des grains semble n'avoir que peu d'influence. L'écart relatif maximal sur le module de compressibilité entre les modèles et le matériau réel est de 18 %. Cette étude a mis en évidence l'importance des contacts entre les grains dans la réponse élastique à la déformation quasi statique d'un matériau. Le comportement mécanique du matériau réel soumis à un chargement isotrope statique ne peut être reproduit qu'avec un contrôle fin de la connectivité et des surfaces de contact entre les grains.

Chapitre 8

Simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique

Des simulations numériques dynamiques à l'échelle mésoscopique sont réalisées avec le code de calcul OURANOS. Ces premières simulations utilisent des coupes et des volumes extraits des microtomographies segmentées. L'objectif est de vérifier si nous sommes capables, avec les outils de simulation dont nous disposons actuellement, d'observer une différence de sensibilité au choc entre les trois matériaux.

Dans un premier temps, les spécificités du code de calcul OURANOS sont introduites. Une présentation des configurations des simulations (géométries, conditions initiales, conditions aux limites et modèles matériaux) est réalisée dans un deuxième temps. Dans la troisième section, les résultats des différentes simulations sont exploités. Enfin, de nouvelles pistes d'exploitation et d'amélioration sont présentées dans une dernière section.

8.1 Simulations avec le code de calcul OURANOS

8.1.1 Présentation du code OURANOS

OURANOS est un code par éléments et volumes finis développé par le CEA [275]. Ce code dispose d'un schéma numérique lagrangien et de trois schémas eulériens : Godounov, BBC et MYR. Tous les schémas sont explicites car OURANOS est dédié à la modélisation de scénarios de dynamique rapide (impact, explosion...) impliquant de grandes déformations, des interactions fluide/structure, etc. La résolution d'un système d'équations différentielles avec une méthode explicite consiste à calculer la solution au temps $t + \delta t$ à partir de la valeur de la fonction au temps t . La résolution explicite impose des pas de temps faibles, ce qui est le cas pour des simulations modélisant des phénomènes dynamiques. Une résolution implicite calcule la solution au temps $t + \delta t$ à partir de la valeur de la fonction au temps t et $t + \delta t$. La méthode de résolution implicite permet de travailler avec des pas de temps plus élevés et est plus adaptée à la résolution de simulations de phénomènes quasi statiques. En configuration lagrangienne, le maillage est attaché aux objets et se déforme avec eux. Dans un code eulérien, au contraire, la grille est fixe et les objets (caractérisés par leur masse, leur quantité de mouvement et leur énergie) se déplacent et se déforment sur cette grille. Les codes eulériens permettent de s'affranchir des déformations de mailles trop importantes qui posent des problèmes de stabilité numérique. Cette méthode de calcul est donc adaptée pour traiter de grandes déformations. En revanche, la gestion des interfaces et des contacts entre les différents matériaux est plus compliquée à traiter que dans le cas lagrangien. Le transport de la matière dans la grille eulérienne génère également des problèmes de diffusion non rencontrés avec l'approche lagrangienne. Dans notre étude, toutes les simulations numériques réalisées avec le code OURANOS utilisent un schéma eulérien.

Pour rappel (Sec. 2.1), le code de simulation OURANOS résout les bilans de la masse Eq. (2.1),

de la quantité de mouvements Eq. (2.2) et de l'énergie Eq. (2.3). Ces trois relations sont complétées par une équation d'état et une loi de comportement pour suivre l'état thermodynamique et l'évolution des contraintes dans le matériau. La résolution eulérienne des cinq équations se décompose en deux phases : une phase dite lagrangienne suivie d'une phase de transport de la matière, aussi appelée phase d'advection. La phase lagrangienne consiste à résoudre le système d'équation de manière similaire à un schéma lagrangien, et à calculer les différentes grandeurs (pression, vitesse, température...) sur une grille qui se déforme. La phase d'advection consiste à projeter les résultats de la phase lagrangienne sur la grille eulérienne fixe.

La différence entre les trois schémas de résolution eulérien, Godounov, BBC et MYR, réside dans les lieux où sont calculées les vitesses matérielles. Les trois schémas calculent la pression, la densité et l'énergie au centre des mailles. En revanche, la vitesse est calculée au centre de la maille dans le schéma Godounov, au milieu des faces dans le schéma BBC et aux nœuds dans le schéma MYR. Le schéma Godounov est uniquement utilisé pour les résolutions purement hydrodynamiques, sans lois de comportement. Nous n'utiliserons donc pas ce schéma pour nos calculs. Des études antérieures ont révélé que, pour des simulations mésoscopiques, les différences entre les schémas BBC et MYR sont minimales [276]. Le schéma BBC est utilisé pour réaliser nos simulations numériques.

Lors de la phase d'advection, c'est-à-dire de la projection sur la grille eulérienne fixe, plusieurs matériaux peuvent se retrouver dans la même maille. On parle alors de maille mixte. À partir de la fraction volumique de chaque matériau présent dans la maille, les interfaces sont reconstruites. Plusieurs méthodes de reconstruction des interfaces dans les mailles mixtes sont disponibles dans OURANOS.

- La méthode SLIC (Simple Line Interface Calculation) [277] définit les interfaces par des droites en 2D ou des plans en 3D qui ne peuvent qu'être parallèles aux axes de la grille eulérienne. Les interfaces sont donc verticales ou horizontales. Cette méthode de reconstruction est efficace lorsque le mouvement des objets se fait dans la même direction que l'un des axes.
- La méthode YOUNGS [278] définit les interfaces comme des droites affines/plans orientés indépendamment des axes de la grille eulérienne. Cette méthode modélise donc mieux les mouvements de matière d'orientation quelconque. La faiblesse de la méthode de YOUNGS est qu'elle n'est pas robuste lorsqu'il y a plus de deux matériaux dans une maille. Il faut alors choisir un ordre de priorité, ce qui peut être complexe lorsqu'il y a beaucoup de matériaux.
- La méthode SMYRA (Sandia Modified Youngs Reconstruction Algorithm) [279] est une évolution de la méthode YOUNGS. Elle permet de régler le problème de l'ordre de priorité des matériaux qui est déterminé à l'aide des mailles environnantes. Cette méthode de reconstruction est cependant plus coûteuse en temps de calcul.

Étant donnée que nous travaillons sur des microstructures comprenant trois phases au maximum (le liant, les grains, la porosité), la méthode de reconstruction choisie est celle de Youngs.

8.1.2 Calcul de la température

Nous souhaitons étudier la formation des points chauds, et donc exploiter les cartes des champs de température. Ce paragraphe présente de quelle manière la température est calculée dans les simulations OURANOS. Nous commençons par présenter les phénomènes physiques qui ne sont pas pris en compte dans les simulations numériques OURANOS.

Le premier phénomène thermique qui n'est pas implémenté est la conduction thermique. Nous utilisons la méthode de Gogulya *et al.* [280], reprise par T. Elia dans sa thèse [31], pour estimer les temps caractéristiques thermiques et mécaniques, et ainsi s'assurer que la conduction

TABLEAU 8.1 – Temps caractéristiques thermique et mécanique en fonction du diamètre équivalent en volume des grains de RDX. Les diamètres sont calculés sur l'ensemble des grains disponibles dans la bibliothèque de grains.

Grandeur	Taille des grains de RDX (d_V en (μm))	Temps thermique (en μs)	Temps mécanique (en μs)
20 ^{ème} centile	47,3	11	0,0055
40 ^{ème} centile	67,8	23	0,0079
médiane	83,3	34,7	0,0096
60 ^{ème} centile	103,9	54	0,012
moyenne	118,3	70,0	0,014
80 ^{ème} centile	177,5	158	0,021

thermique peut être négligée par rapport aux phénomènes mécaniques. Le temps caractéristique thermique est calculé par $\tau_t = d^2/k$ avec d la taille des grains de RDX et k le coefficient de conductivité thermique. Le temps caractéristique mécanique est estimé par $\tau_p = d/D$ avec D la vitesse du choc dans le matériau. Un coefficient de conduction thermique du RDX de $0,20 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\text{K}^{-1}$, déterminé expérimentalement à 50°C [281], est utilisé pour réaliser les calculs. A noter que la température obtenue dans des grains de RDX suite à un choc est supérieure à 50°C . Le coefficient de conduction thermique est, en réalité, plus élevé que celui utilisé pour nos calculs et le temps caractéristique thermique est donc, en conséquence, surestimé. Nous déterminons, par la méthode de croisement des polaires de choc, qu'un projectile en acier à la vitesse de 1000 m/s (configuration des simulations numériques) qui impacte de l'hexogène génère dans celui-ci une onde de choc se propageant à la vitesse de 4414 m/s . Les temps caractéristiques pour équilibrer les pressions, ainsi que les temps caractéristiques de la conduction thermique sont présentés dans le tableau 8.1 pour différents diamètres de grains de RDX. Les diamètres sélectionnés sont les diamètres (équivalents en volume) moyens, médians et correspondant aux 20^{ème}, 40^{ème}, 60^{ème} et 80^{ème} centiles de l'ensemble des grains présents dans la bibliothèque de grains. Le $X^{\text{ème}}$ centile est égal à la valeur du diamètre équivalent en volume telle que $X\%$ des grains ont un diamètre équivalent en volume inférieur. Le tableau 8.1 indique que le temps caractéristique mécanique est largement inférieur au temps caractéristique thermique. Cela signifie que le phénomène de conduction thermique est très lent comparé à la propagation du choc. De plus, le temps nécessaire à la conduction thermique est trop important par rapport au temps de formation des points chauds, qui est de quelques microsecondes.

Le deuxième phénomène thermique qui n'est pas implémenté dans le code est le rayonnement. Ce dernier n'est généralement pas considéré dans les calculs mésoscopiques [117], alors qu'il semble jouer un rôle dans la modélisation de la déflagration [282].

L'élévation de température dans un matériau suite au passage d'une onde de choc est liée d'une part à l'augmentation de la pression, et d'autre part aux déformations plastiques. L'élévation de la température liée à la surpression est calculée avec l'équation d'état qui relie les différentes grandeurs thermodynamiques entre elles. Une partie de l'énergie plastique est dissipée sous forme de chaleur (Eq. (8.1)). Le pourcentage d'énergie converti en chaleur est donné par le coefficient de Taylor-Quinney β [283]. Ce coefficient est compris entre 0 lorsque tout le travail plastique reste stocké dans le matériau et 1 lorsque tout le travail est converti en chaleur. Dans les simulations numériques, il est généralement fixé à 0,9 [284, 285]. Pourtant, le coefficient de Taylor-Quinney est dépendant du matériau (par exemple $\beta \approx 0,5$ pour un acier 304 et $\beta \approx 0,3$ pour des alliages d'aluminium), de la vitesse de déformation et du type de sollicitation (traction, compression ou cisaillement) [285].

$$\beta \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\epsilon}}_p = m c_p \Delta T \quad (8.1)$$

$\underline{\underline{\epsilon}}_p$ est le tenseur de vitesse de déformation plastique, $\underline{\underline{\sigma}}$ le tenseur des contraintes, m la masse, c_p

la capacité calorifique à pression constante et ΔT la variation de température.

Dans le code OURANOS, le coefficient de Taylor-Quinney est par défaut égal à 1, ce que nous avons conservé. Tout le travail plastique est donc converti en chaleur.

8.2 Configurations testées

8.2.1 Géométries

Les simulations numériques sont réalisées sur des microstructures réelles issues des microtomographies en 2D et en 3D.

La première difficulté est l'import des images 2D et 3D sous forme de géométries maillées dans OURANOS, qui n'est capable de lire que deux formats de maillage : IDEAS et UNV. Nous avons donc développé un code Python permettant de générer des géométries au format UNV à partir d'images au format RAW, JPG, PNG... Le maillage importé dans OURANOS doit être constitué uniquement de quadrilatères (2D) ou d'hexaèdres (3D), mais n'a pas besoin d'être régulier. En effet, avant tout calcul eulérien le code OURANOS réalise automatiquement une phase de remaillage consistant à projeter le maillage importé sur la grille cartésienne utilisée par le solveur eulérien. La résolution de la grille eulérienne est choisie identique à celle de l'image originale pour ne pas perdre d'informations sur la géométrie de la microstructure. A chaque pixel ou voxel de l'image correspond donc une maille du modèle éléments finis.

Les fichiers géométrie au format UNV sont constitués principalement de trois blocs :

- la définition des nœuds, avec un identifiant (un nombre) et ses coordonnées dans l'espace;
- la définition des mailles, avec un identifiant (un nombre) et les identifiants des 4 (2D) ou 8 (3D) nœuds permettant de construire la maille;
- la définition des objets, à partir de l'identifiant des mailles le constituant.

Dans un premier temps, les géométries UNV sont écrites en faisant correspondre à chaque pixel une maille. Si cette méthode est adaptée pour écrire des microstructures 2D, les fichiers deviennent bien trop lourds, donc inexploitable dès lors qu'il faut traiter des géométries en 3D. Prenons l'exemple d'un volume de 1000^3 voxels, le fichier texte au format UNV doit définir : les 1001^3 nœuds représentant déjà plus d'un milliard de lignes, et les 1000^3 mailles équivalentes aux voxels représentant également un milliard de lignes. Une nouvelle méthode d'écriture du maillage a donc été mise au point pour réduire le nombre de mailles sans perdre d'informations sur la géométrie. Le principe est de fusionner les mailles et les nœuds lorsque plusieurs voxels adjacents définissent le même matériau. Cette méthode permet de réduire la taille d'un fichier de maillage correspondant à une coupe de 1000^2 pixels, de 223 Mo à 3 Mo.

Les microstructures étudiées subissent l'impact d'un projectile en acier à la vitesse de 1000 m/s (Fig. 8.1). Cet impact génère une pression, déterminée par croisement de polaires de choc, d'environ 5 GPa. Pour rappel, les seuils de détonation déterminés expérimentalement (Fig. 4.9) sont d'environ 6,2 GPa pour les matériaux RS-RDX/cire et RVI-RDX/cire et d'environ 7,2 GPa pour le matériau VI-RDX/cire. La vitesse du projectile génère donc une onde de choc dont la pression est théoriquement inférieure aux seuils d'amorçage en détonation. Le projectile en acier est suffisamment long pour éviter qu'un retour d'onde ne perturbe le choc primaire, l'onde de choc se propageant dans le matériau est donc soutenue au centre de l'échantillon. Des conditions aux limites de type « flux » (ou de type Neumann) sont imposées aux faces d'entrée et de sortie du choc pour éviter les réflexions d'ondes et gérer les entrées et sorties de matière sur la grille eulérienne. Pour avoir une déformation uniaxiale, des conditions aux limites de type « mur » (ou de type Dirichlet) sont appliquées sur les frontières horizontales pour bloquer les déplacements. Les simulations 2D sont des simulations en déformations planes.

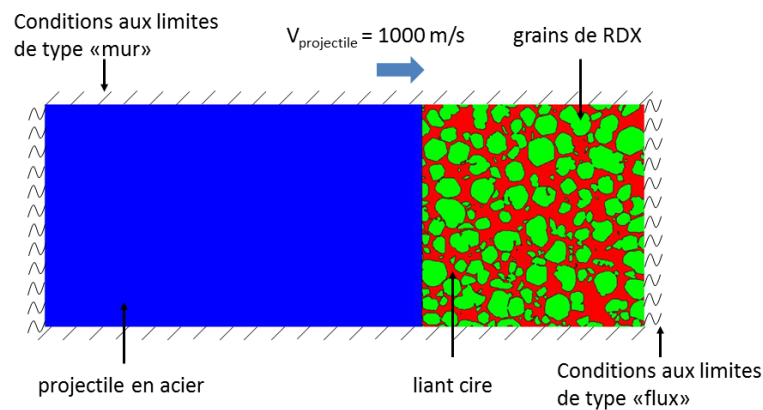


FIGURE 8.1 – Schéma de la géométrie des simulations numériques sur une coupe extraite du matériau RS-RDX/cire

Les calculs sont d'abord menés sur des coupes 2D extraites des microtomographies. Ces premiers calculs permettent de choisir et de tester différents paramètres, avant de passer aux calculs en 3 dimensions.

Les simulations numériques dynamiques sont réalisées sur des microstructures non labellisées, c'est-à-dire que tous les grains font partie du même objet. Un calcul 2D a toutefois été réalisé sur une coupe segmentée, et comparé avec un calcul réalisé sur la même microstructure non labellisée. Les résultats sont similaires pour un temps de calcul bien plus long (avec 12 processeurs pour les deux types de calcul, 2h25min sur la microstructure non labellisée contre 33h32min sur la microstructure labellisée). Les calculs sont plus longs en raison des bilans de matières qui sont effectués tout au long de la simulation sur plus de 250 grains, et de la reconstruction des interfaces effectuée cette fois avec la méthode SMYRA afin de pouvoir gérer plus de deux objets dans les mailles mixtes. La labellisation des grains, et donc la présence de plus de 250 objets, complexifie également la visualisation des résultats dans l'interface graphique d'OURANOS qui n'est pas conçue pour traiter autant d'objets. Dans ces conditions, le passage aux calculs 3D avec une microstructure labellisée n'est pas envisageable.

8.2.2 Modélisation des matériaux

Les trois matériaux RDX/cire sont modélisés de la même manière, de telle sorte que la seule différence entre les trois matériaux réside dans la microstructure. Dans le domaine des chocs, la partie isotrope du tenseur des contraintes (liée à l'équation d'état) est plus importante que la partie déviatorique (liée à la loi de comportement). Nous accordons donc une attention particulière aux choix des équations d'état (EOS).

Le projectile en acier est modélisé avec une équation d'état de Murnaghan et une loi de comportement élasto-plastique parfaite. Les coefficients sont indiqués dans le tableau 8.2. La cire est modélisée avec une EOS de Murnaghan et une loi de comportement élasto-plastique parfaite. Les coefficients pour la cire ont été donnés dans le tableau 4.9.

Pour les grains de RDX, cinq équations d'états différentes sont testées sur la même microstructure, avec la même configuration. Les équations d'état sont :

- Birch-Murnaghan de la phase α [8] ;
- Birch-Murnaghan de la phase γ [8] ;

TABLeAU 8.2 – Équation d'état et loi de comportement utilisées pour modéliser le projectile en acier dans les simulations dynamiques

Équation d'état : Murnaghan		
Grandeur	Valeur	Unité
ρ_0	7860	kg/m ³
Γ	1,67	-
c_v	408,0	J/kg.K
K_0	1,64	GPa
K'_0	6,01	-
Loi de comportement : Élasto-plastique parfaite		
Grandeur	Valeur	Unité
G	0,40	GPa
σ_y	0,073	GPa

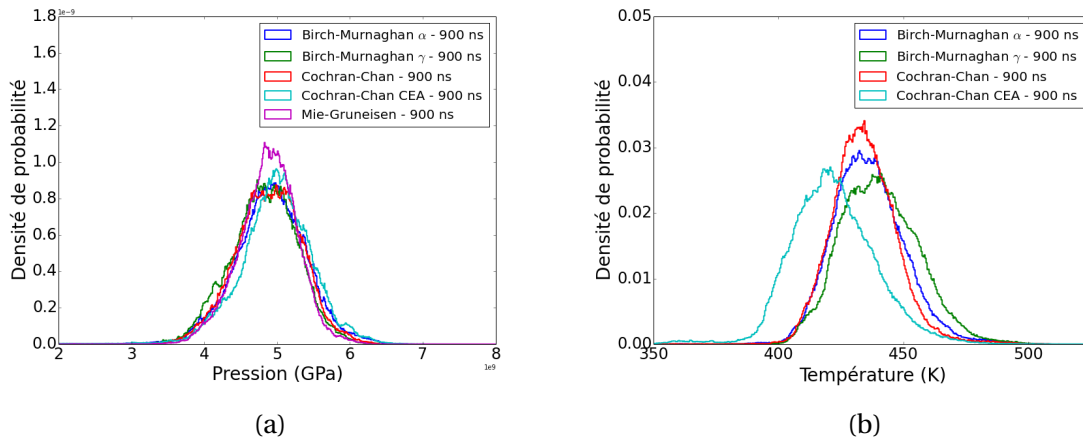


FIGURE 8.2 – Comparaison des distributions dans les grains de RDX 900 ns après le choc (a) de la pression et (b) de la température pour différentes équations d'état

- Cochran-Chan avec détermination des paramètres selon la méthode de Cochran [128] (coefficients provenant de la thèse de V. Chuzeville [41]);
- Cochran-Chan avec détermination des paramètres selon la méthode du CEA Gramat développée par G. Baudin dans la thèse de V. Chuzeville [41];
- Mie-Gruneisen [41].

L'influence de l'équation d'état des grains de RDX sur les résultats est étudiée en comparant les distributions de pression et de température dans les grains derrière le front de choc (Fig. 8.2). Les pressions et températures sont relevées 900 ns après le choc.

Il y a peu de différences entre les distributions de pression, peu importe l'équation d'état utilisée. Ce résultat n'est pas surprenant car toutes ces équations d'état sont construites à partir des mêmes courbes de compression expérimentales. Les différences sont, en revanche, plus marquées sur les distributions de température. En effet, les équations d'état ne sont pas conçues pour restituer correctement la température, car elle n'est pas mesurée lors des expériences. L'équation d'état de Mie-Gruneisen est une équation d'état incomplète qui ne permet pas d'accéder à la température, elle n'apparaît donc plus lors de la comparaison en température. L'équation d'état de Birch-Murnaghan du γ RDX génère les températures les plus élevées, tandis que l'équation d'état de Cochran-Chan avec les coefficients du CEA génère les températures les plus faibles. Les résultats sont similaires avec les équations d'état de Cochran-Chan classique et de Birch-Murnaghan pour le α RDX. Cette étude montre l'importance du choix de l'équation d'état lorsqu'on s'intéresse aux champs des températures, et donc à l'amorçage d'un explosif à l'échelle mésoscopique. Nous

travaillons par comparaison entre trois matériaux et les simulations effectuées sont inertes (purement mécaniques, sans amorçage de la détonation). Le choix de l'équation d'état est donc, dans notre cas, moins crucial. L'ensemble des calculs 2D et 3D présentés dans la suite du manuscrit ont été réalisés avec l'équation d'état de Birch-Murnaghan du γ RDX. Pour gagner en représentativité, et se rapprocher de la réalité, il faudrait plutôt utiliser l'équation d'état de Cochran-Chan avec les paramètres CEA. Ce point est exposé plus en détail dans les perspectives de ce chapitre (Sec. 8.4).

Nous rappelons que le RDX a un comportement mécanique anisotrope (Sec.4.1.2). La modélisation du comportement anisotrope n'étant actuellement pas possible avec le code de calcul OURANOS, nous utilisons une loi de comportement élasto-plastique-parfaite avec un module de cisaillement $G = 6,06$ GPa et une limite élastique $\sigma_Y = 0,44$ GPa. Les coefficients de l'équation d'état et de la loi de comportement du RDX sont résumés dans le tableau 4.6.

Actuellement, aucun critère d'endommagement n'est intégré dans les simulations numériques dynamiques. Cette étape majeure sera réalisée après l'exploitation des expériences de récupération sous choc (Chap. 9), et est donc laissée en perspectives.

8.3 Exploitation des simulations numériques

8.3.1 Calculs en 2D

Simulations sur des coupes extraites de microtomographies

Trois coupes de chaque matériau sont extraites des microtomographies pour réaliser de premières simulations numériques (Fig. 8.3). Les coupes sélectionnées ont une fraction surfacique de grains de 0,56. Les microstructures ne sont pas labellisées; elles comportent donc trois phases : les grains de RDX, le liant cire, les cavités remplies d'air. L'objectif de cette première étude est de vérifier si nous retrouvons, par simulations numériques, les mêmes tendances entre les trois matériaux que celles obtenues expérimentalement. Pour rappel, les matériaux à base de RS-RDX et de RVI-RDX ont des seuils de sensibilité au choc similaires, et sont plus sensibles que le matériau à base de VI-RDX.

Un contrôle de la covariance spatiale et de la granulométrie est effectué pour vérifier que les trois coupes d'un même matériau présentent des répartitions spatiales de grains et des distributions de taille de grains similaires. Pour ce but, la covariance spatiale ainsi que la granulométrie par ouverture sur les grains et le liant sont mesurées. La figure 8.4 indique que la covariance spatiale et les granulométries restent proches sur les coupes d'un même matériau.

Les cartes des champs de pression et de température sont présentées sur les figures 8.5, 8.6 et 8.7. Nous commençons par étudier les champs de pression. Nous remarquons que le front de choc n'est pas plan. En effet, la vitesse du choc dépend du matériau traversé et donc de la microstructure, ce qui explique que le front de choc soit en avance dans certaines zones. Les champs de pression sont très hétérogènes. La présence des cavités remplies d'air génère des ondes de réflexion car l'impédance Z ($Z = \rho_0 c_0$) du RDX et de l'air diffèrent sensiblement. Lorsqu'une onde de choc traverse un objet composé de plusieurs matériaux, celle-ci se transmet et se réfléchit à chacune des interfaces. Lorsque les matériaux ont des impédances proches, la réflexion de l'onde de choc est limitée. Les résultats des calculs montrent que les pressions les plus élevées sont localisées autour des défauts intra-granulaires, mais également dans les zones où la densité de grains est importante (plusieurs grains en contact ou très proches).

Les champs de température sont moins hétérogènes que les champs de pression. Nous remarquons que la température dans le liant est plus élevée que dans les grains. Cela s'explique par le fait que la capacité calorifique à volume constant c_v de la cire est plus faible que celle du RDX (voir calcul de la température avec Eq. (2.16)) mais aussi par le fait que la déformation plastique dans la cire est plus importante. Les plus fortes températures sont localisées, comme pour la pression,

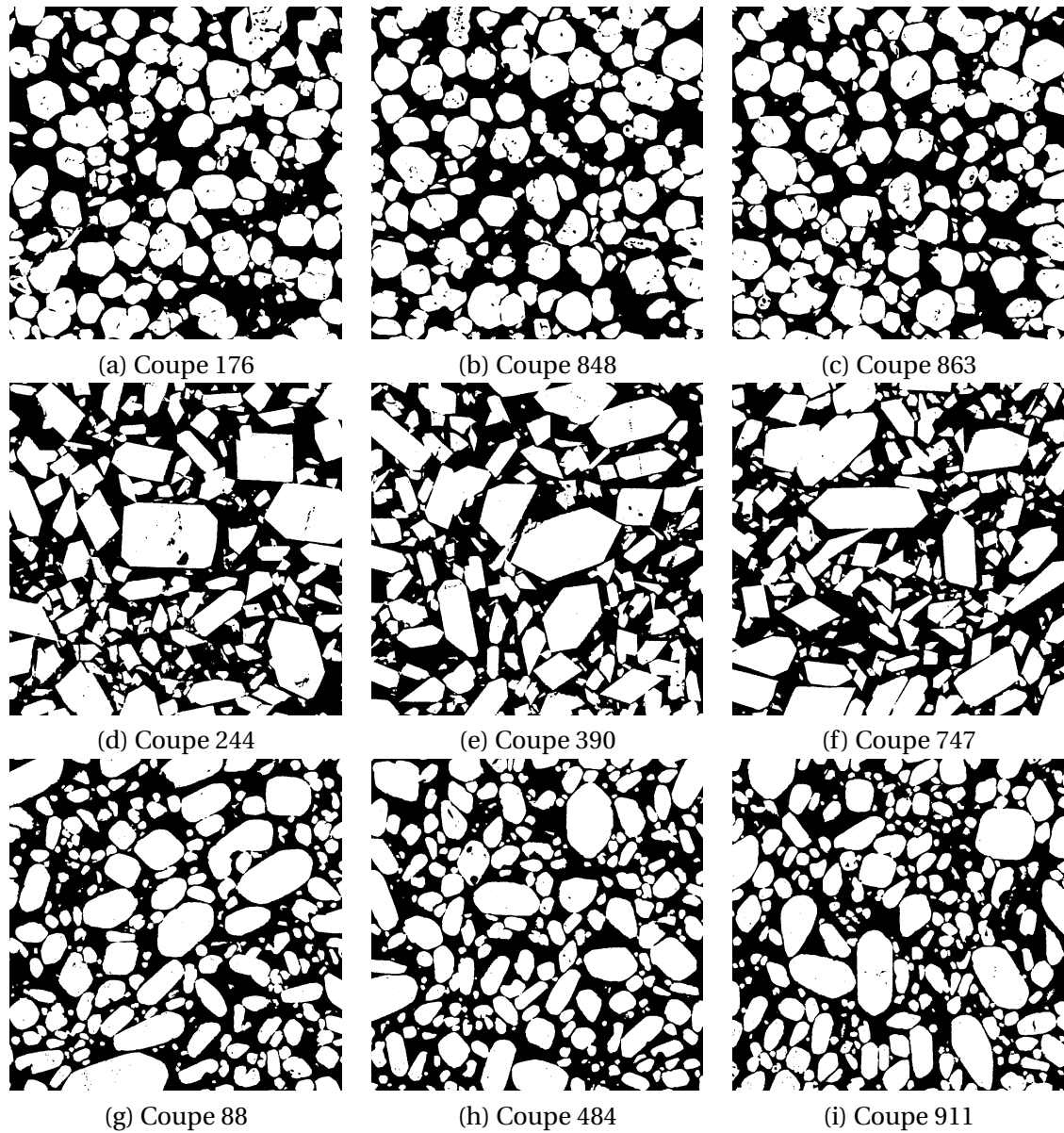


FIGURE 8.3 – Coupes extraites des microtomographies des matériaux (a-c) RS-RDX/cire, (d-f) RVI-RDX/cire et (g-h) VI-RDX/cire

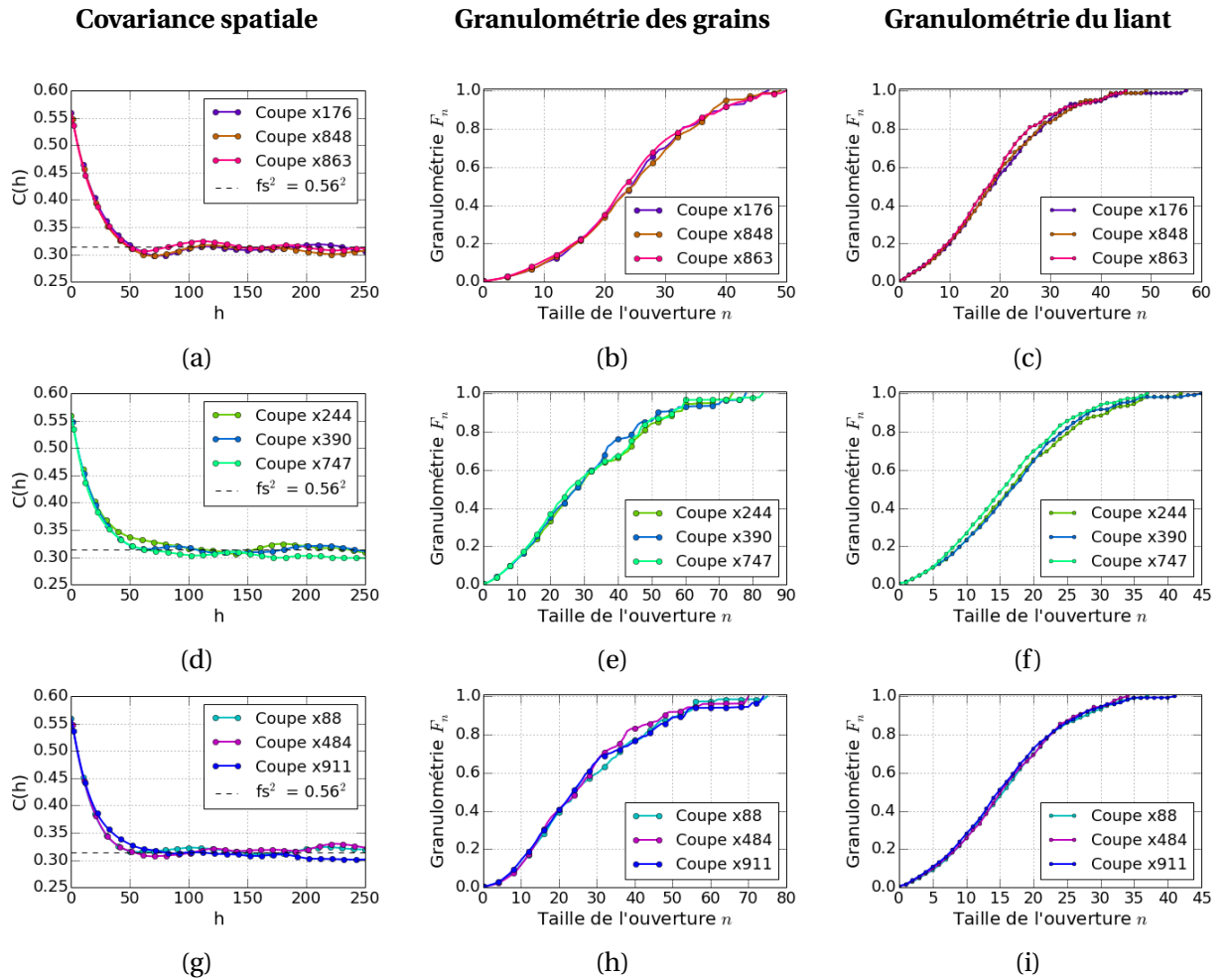


FIGURE 8.4 – Covariance spatiale des grains, granulométrie par ouverture des grains et granulométrie par ouverture du liant pour les coupes de (a-c) RS-RDX/cire, (d-f) RVI-RDX/cire et (g-i) VI-RDX/cire

près des défauts intra-granulaires. Les différentes études sur le phénomène d'implosion de pores, présentées dans la section 2.3.1, indiquent qu'un maillage très fin est nécessaire pour modéliser correctement ce phénomène. Ici, un certain nombre de pores dans les grains de RVI-RDX et de VI-RDX occupent un volume de moins de 10 mailles, ce qui est insuffisant pour modéliser l'effondrement d'un pore de manière adaptée. Néanmoins, l'importance de la porosité intra-granulaire dans la formation des points chauds est clairement visible sur les champs de pression et de température. Nous n'observons pas de correspondance directe entre les champs de pression et de température : les grains situés dans les zones de plus forte pression ne sont pas nécessairement les grains avec les températures les plus élevées.

La comparaison visuelle entre les différentes simulations mésoscopiques montre rapidement ses limites. En effet, il est difficile de repérer visuellement des différences significatives entre différentes cartes de pression. Nous choisissons donc de nous intéresser aux distributions de pression et de température. Les résultats sont présentés sur la figure 8.8 pour le matériau à base de VI-RDX, mais des conclusions identiques sont obtenues sur les deux autres matériaux (présentés en annexe B sur les figures B.1 et B.2). Les distributions de pression et de température dans la microstructure choquée sont relevées à 100 ns et 750 ns.

De fortes variations des distributions de pression et de température entre les trois coupes du même matériau sont observées à 100 ns. Ces variations sont bien moins marquées à 750 ns. Cela s'explique par le fait que la distribution est calculée sur un volume de plus en plus grand avec l'avancée de la simulation. Mais ce phénomène d'homogénéisation n'est pas uniquement lié à la méthode de calcul d'une distribution. En effet, si nous regardons les champs de pression à des temps différents (Fig. 8.5e, Fig. 8.6e et Fig. 8.7e), nous remarquons que la pression est très hétérogène et varie rapidement derrière le front de choc. Des variations restent toujours visibles plus loin derrière le front de choc, mais elles sont plus diffuses.

Sur les distributions de température, deux pics apparaissent à 750 ns. Le premier pic de température, autour de 450 K, correspond en réalité à la température moyenne dans les grains. Le deuxième pic, autour de 490 K correspond à la température moyenne dans la cire.

Les distributions de pression et de température dans les grains des trois matériaux sont comparées pour détecter les éventuelles différences entre les microstructures. Pour faciliter la visualisation, seules les distributions moyennes des trois coupes d'un même matériau sont tracées (Fig. 8.9, Fig. 8.10). Elles sont tracées sur une échelle linéaire et logarithmique pour permettre une meilleure visualisation des queues de distribution, donc des points chauds.

Pour les distributions de pression (Fig. 8.9), des différences importantes entre les trois matériaux sont observées derrière le front de choc à 100 ns. La distribution de pression derrière le front de choc dépend de la microstructure. A partir de 750 ns, les distributions sont quasiment identiques entre les trois matériaux. L'observation des queues de distribution révèle que davantage de grains de RS-RDX atteignent des pressions supérieures à 6 GPa, par rapport aux deux autres types de grains. Les queues de distribution dans les grains de RVI-RDX et de VI-RDX, quant à elles, sont proches.

Sur les distributions de température dans les grains (Fig. 8.10), en revanche, il existe une différence claire entre les trois types de grains à partir de 500 K. Les grains de RS-RDX sont plus nombreux à atteindre des températures supérieures à 500 K, par opposition aux grains de VI-RDX qui sont moins nombreux à atteindre ce seuil. Pour être conforme aux résultats expérimentaux, les grains de RVI-RDX devraient, théoriquement, atteindre des températures similaires aux grains de RS-RDX, ce qui n'est pas reproduit par nos simulations. La température maximale indiquée sur la figure 8.10 est égale à 700 K. En réalité, la température maximale atteinte dans les différentes simulations numériques est d'environ 1200 K. Ces températures extrêmes sont atteintes en des points isolés, dans des mailles mixtes.

Les points chauds que nous considérons ont des températures comprises entre 500 K et 700 K (Fig. 8.11). Ces zones de plus fortes températures sont localisées dans les grains en contact avec

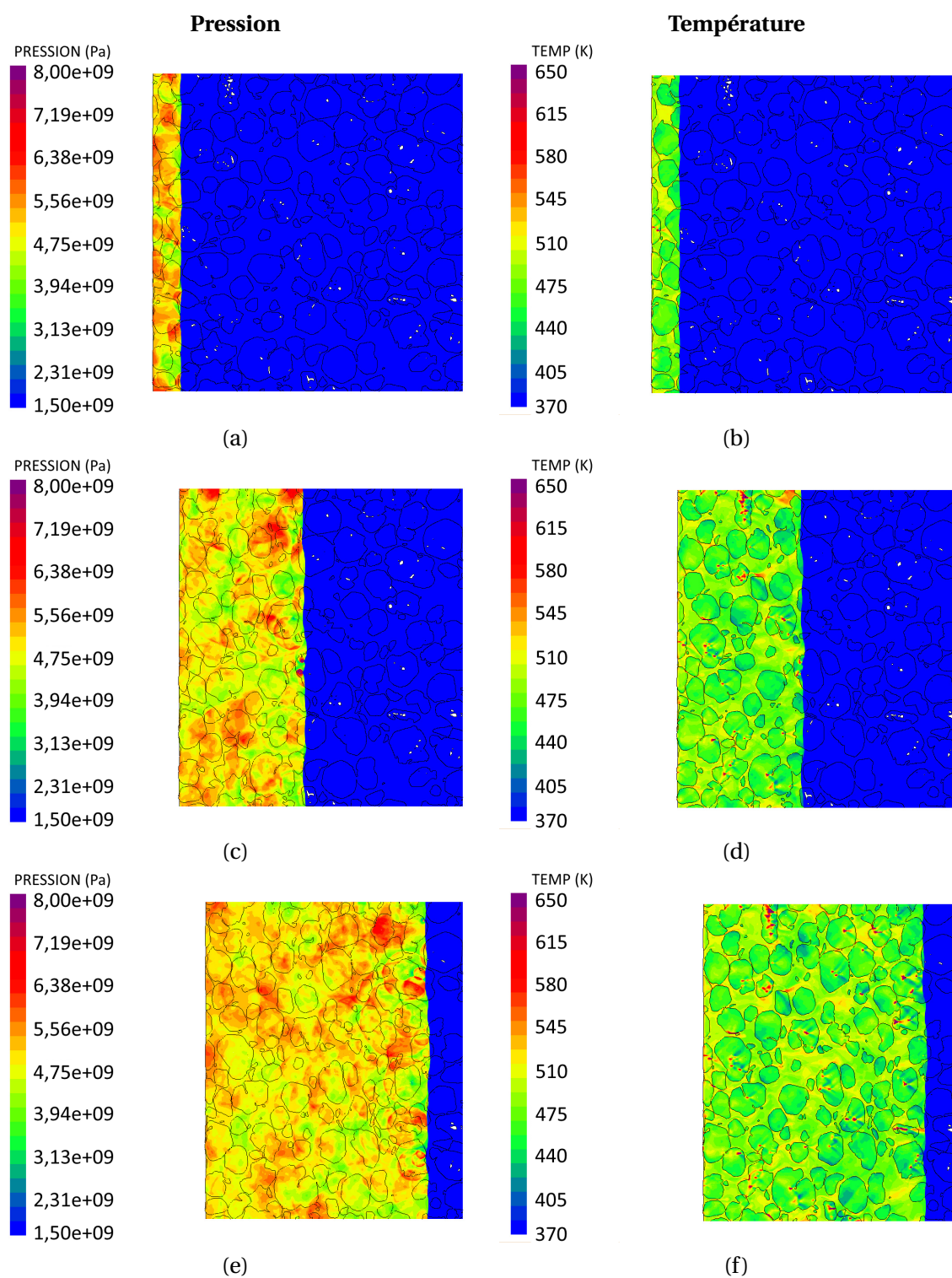


FIGURE 8.5 – Champs des pressions et des températures dans la coupe 848 (Fig. 8.3b) du matériau RS-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns

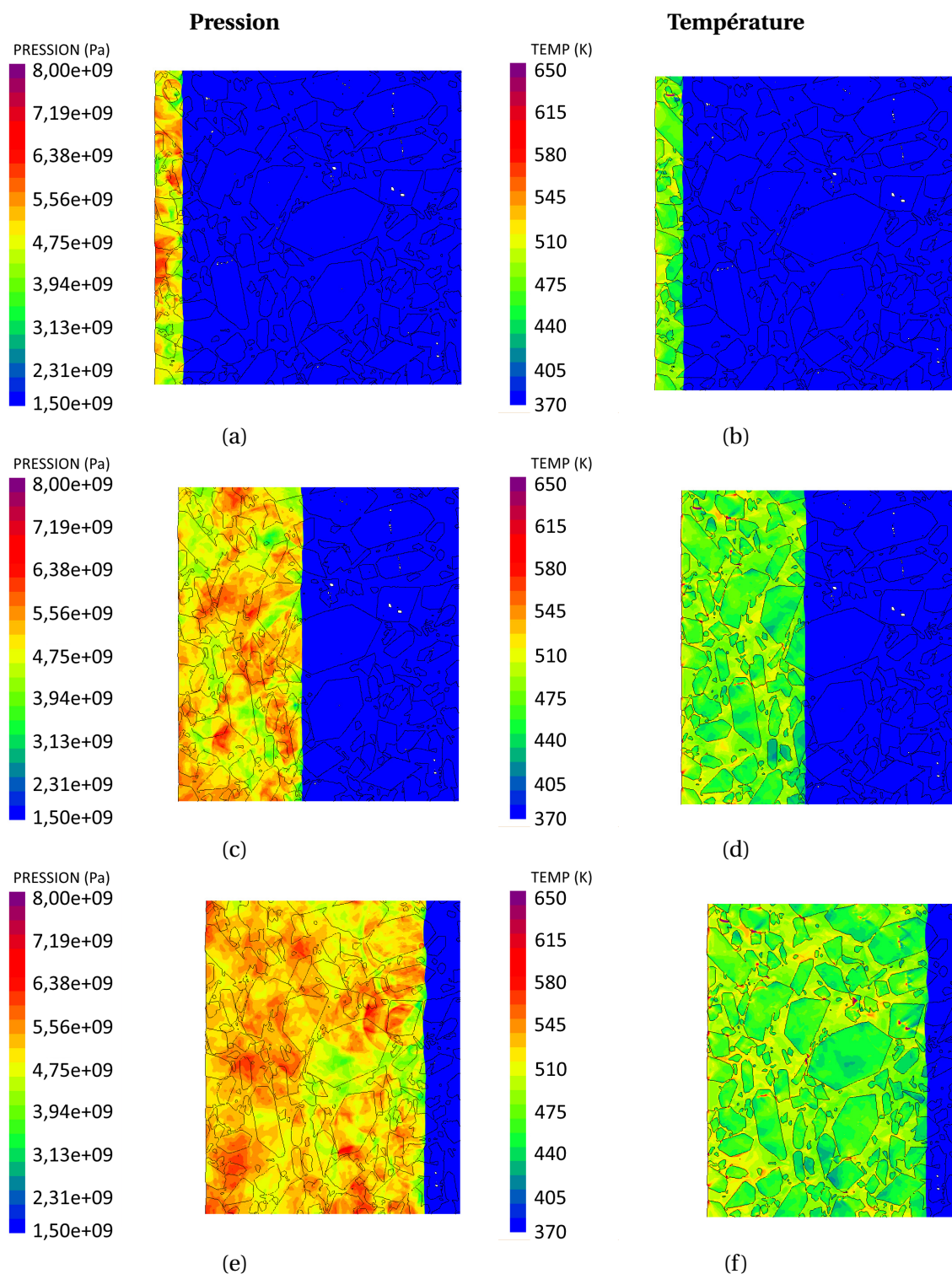


FIGURE 8.6 – Champs des pressions et des températures dans la coupe 390 (Fig. 8.3e) du matériau RVI-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns

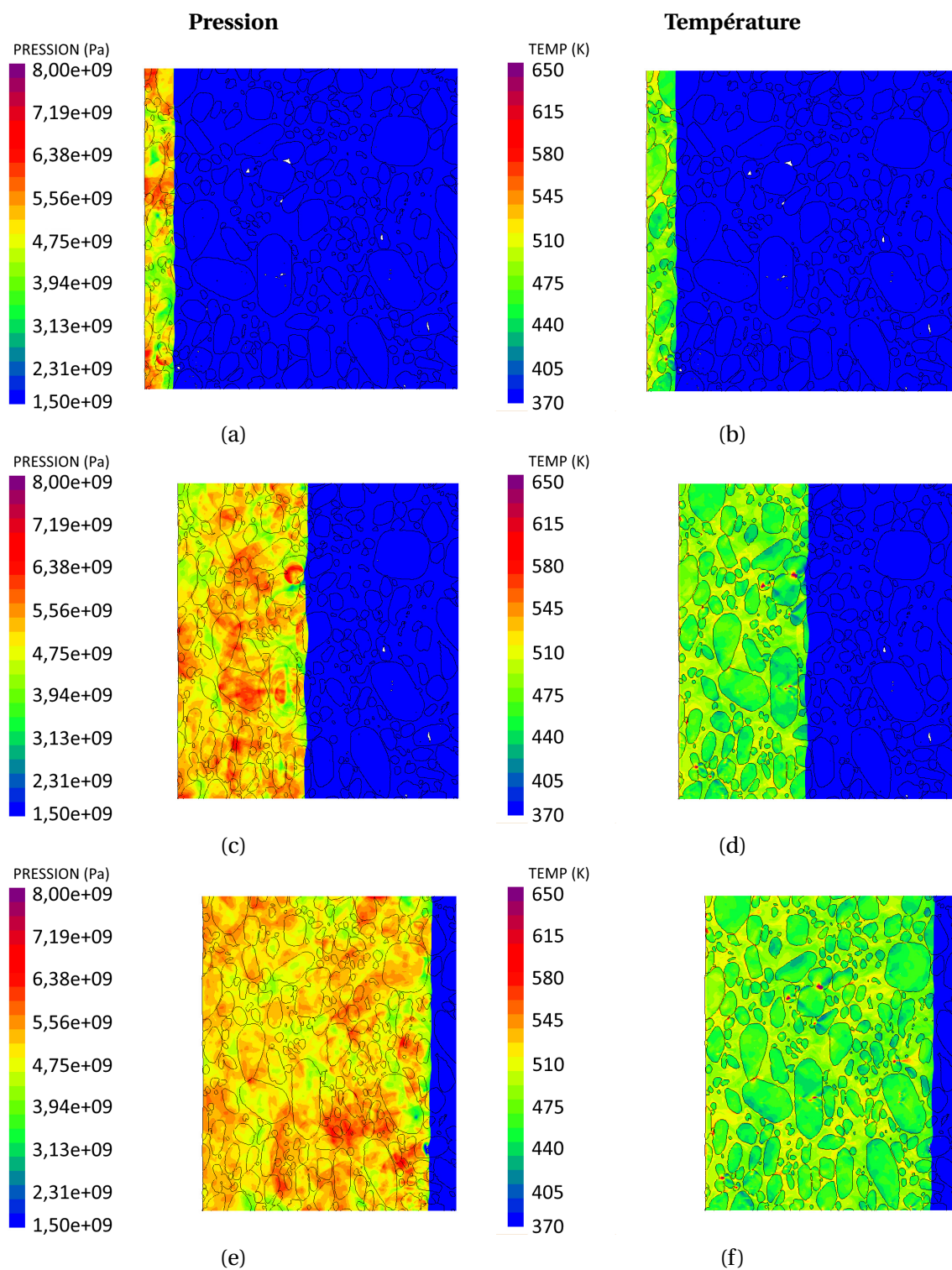


FIGURE 8.7 – Champs des pressions et des températures dans la coupe 911 (Fig. 8.3i) du matériau VI-RDX/cire à (a-b) 100 ns, (c-d) 450 ns et (e-f) 800 ns

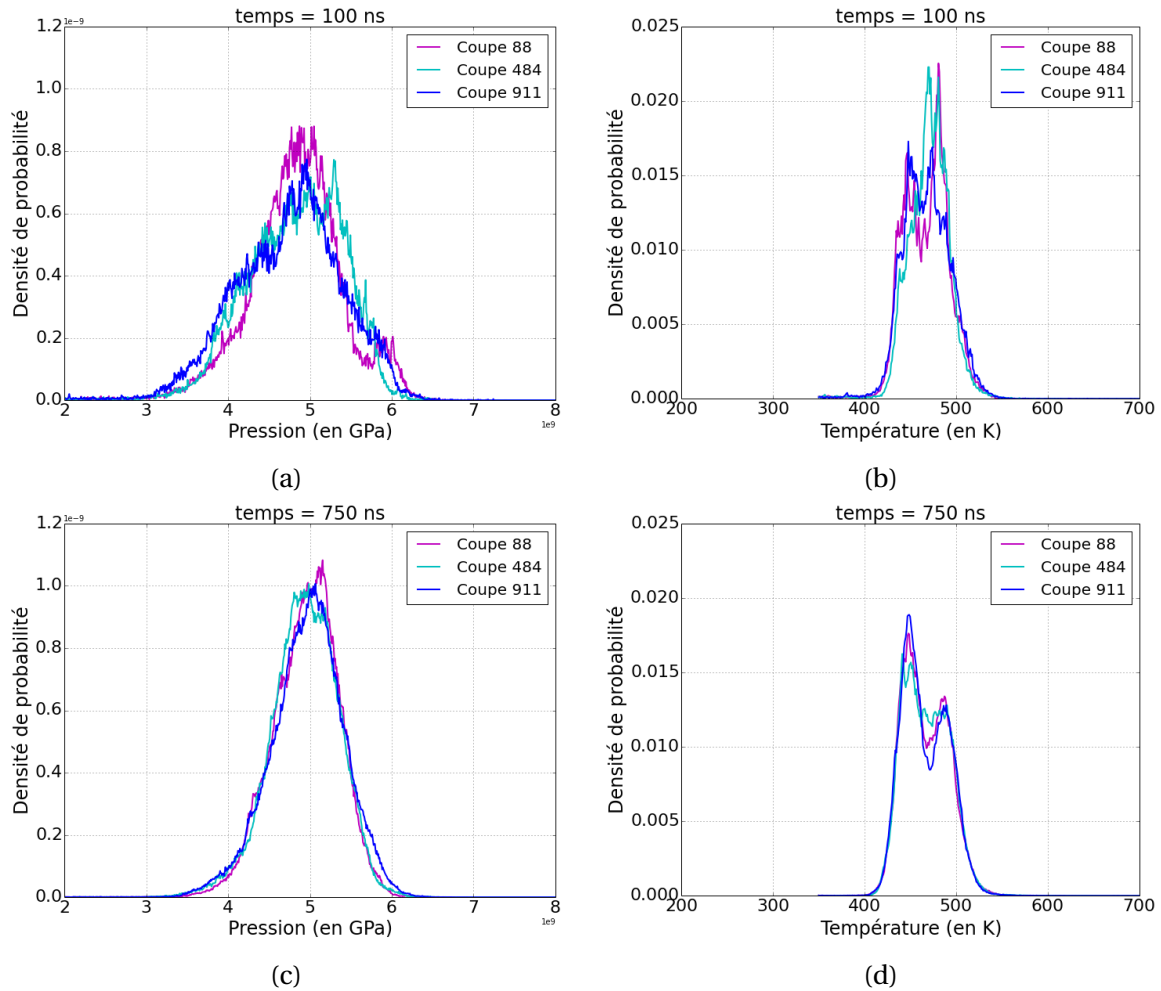


FIGURE 8.8 – Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de VI-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.

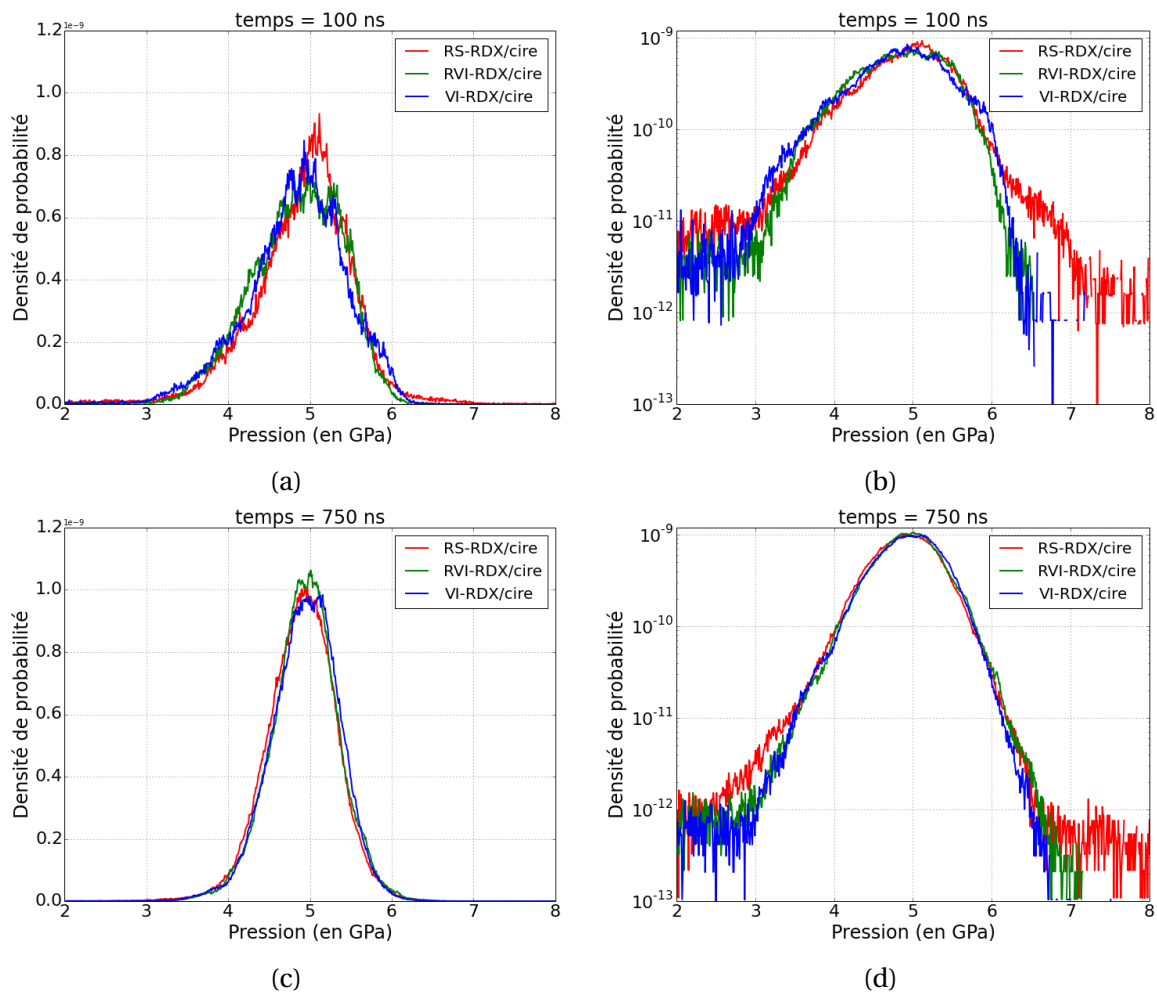


FIGURE 8.9 – Comparaison des distributions de pression dans les grains entre les trois matériaux sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 750 ns après le choc

le projectile, car le choc étant soutenu, ces grains subissent une pression continue et constante. Ce sont donc les grains les plus sollicités. D'autres points chauds apparaissent dans les porosités intra-granulaires et aux points de contact entre les grains. Les points de contact entre les grains correspondent également aux zones où les déformations plastiques sont les plus importantes.

Simulations sur des coupes extraites de microtomographies sans la porosité

La première étude a montré l'importance de la porosité intra-granulaire sur les champs de pression et de température. Les résultats sont donc fortement liés à la coupe choisie, et à la présence de défauts sur cette coupe. Nous choisissons cette fois-ci de travailler sur des coupes sans porosités intra-granulaires. La suppression de cette porosité nous permet d'estimer les variations qui peuvent être observées et qui, sans défauts intra-granulaires, sont uniquement liées à des différences de microstructures. Dans un deuxième temps, cette étude permet de mieux comparer les matériaux de RVI-RDX et de VI-RDX. Ces deux matériaux ont un nombre et un volume de défauts intra-granulaires similaires. Les différences de sensibilité au choc proviennent donc d'autres paramètres microstructuraux. La suppression de la porosité intra-granulaire offre la possibilité de s'intéresser à ces autres paramètres.

Huit coupes avec des fractions surfaciques de grains de 56 % sont sélectionnées pour chacun des trois matériaux. La porosité intra-granulaire a été retirée avec une opération *binary fill*

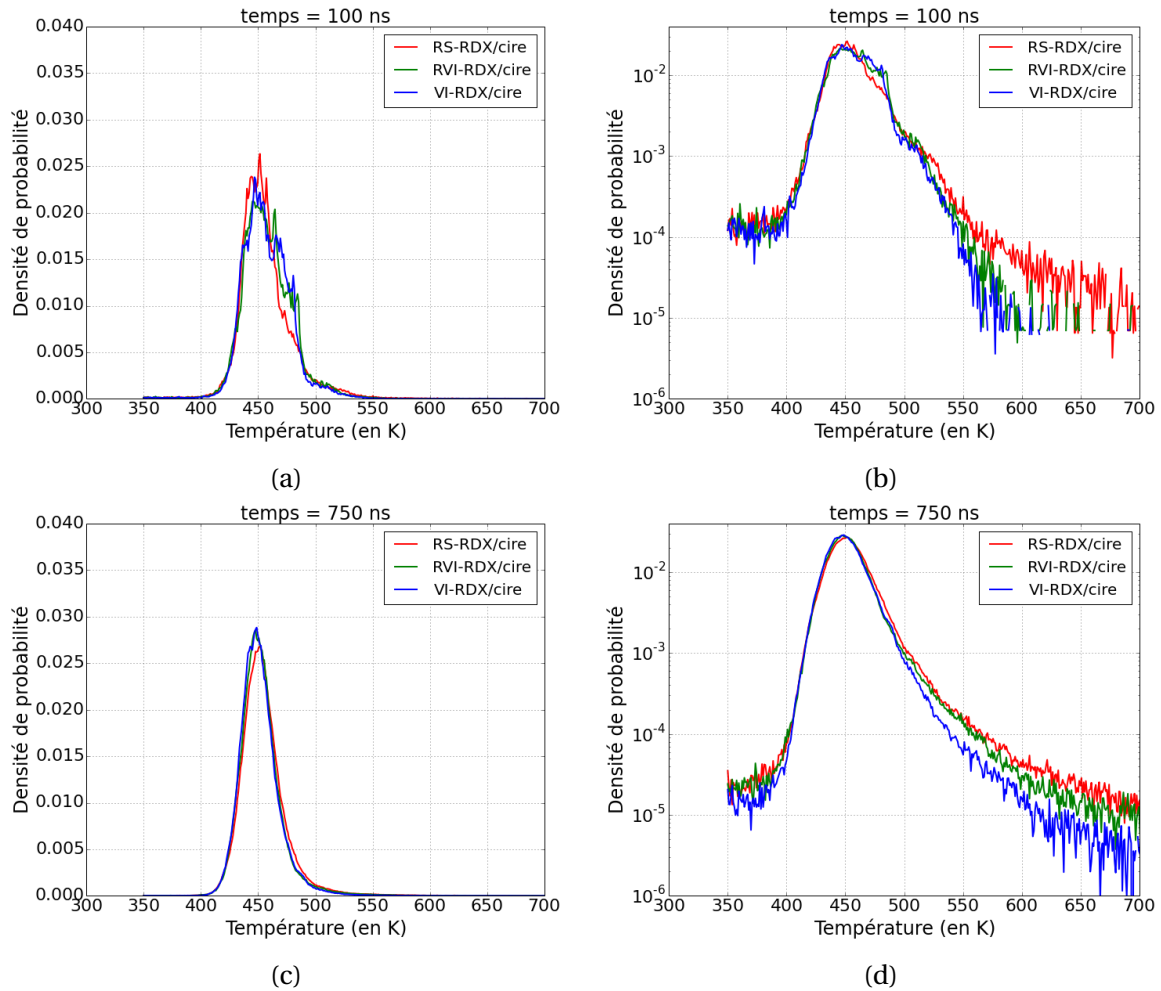


FIGURE 8.10 – Comparaison des distributions de température dans les grains entre les trois matériaux sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 750 ns après le choc

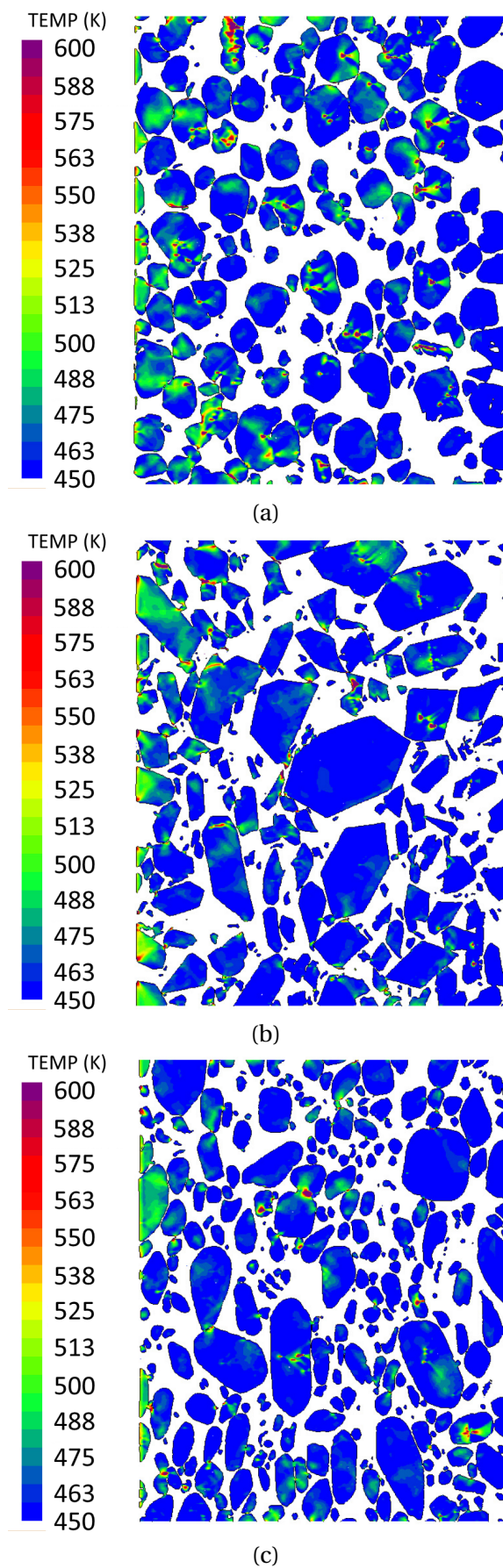


FIGURE 8.11 – Localisation des points chauds dans les grains de (a) RS-RDX, (b) RVI-RDX et (c) VI-RDX

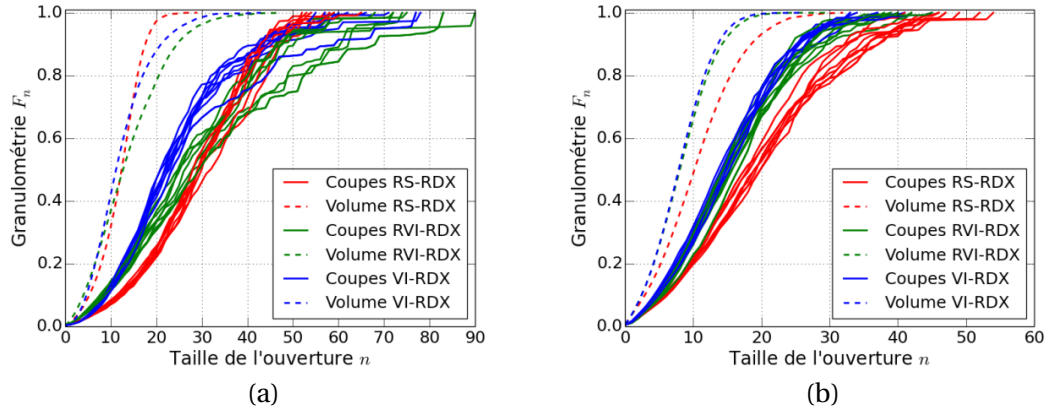


FIGURE 8.12 – Granulométrie par ouverture morphologique (a) des grains et (b) de la cire dans les huit coupes sélectionnées de chaque matériau

holes (Annexe A). Les différentes coupes sélectionnées sont présentées en annexe B (Fig. B.3).

Un contrôle de la distribution de taille des grains est effectué sur chacune des coupes sélectionnées en mesurant la granulométrie par ouverture (Fig. 8.12). La courbe granulométrique moyenne sur les quatre volumes segmentés de 1000^3 voxels de chaque matériau (Sec. 6.1.1) est également indiquée. Des différences sont observées entre les microstructures 2D et 3D (liées à l'utilisation d'un élément structurant 2D ou 3D) mais les tendances entre les trois matériaux restent identiques. Les tailles des grains et les tailles des zones de liant sont globalement homogènes d'une coupe à l'autre. Les écarts les plus importants sont observés sur les courbes granulométriques des grains de RVI-RDX. Nous rappelons que cette étude ne permet pas d'analyser l'influence de la forme des grains sur la formation des points chauds, étant donné que les distributions de taille des grains varient entre les trois matériaux. Pour cela, il faudrait travailler avec des modèles aux propriétés microstructurales contrôlées tels que générés dans le chapitre 7.

Pour quantifier les variations sur les distributions entre les différentes coupes, les enveloppes constituées des valeurs minimales et maximales des huit coupes sont tracées. Les distributions moyennes sur ces huit coupes sont également déterminées. Un exemple des distributions de pression sur huit coupes de RVI-RDX/cire à 100 ns, et de son enveloppe correspondante, est présenté sur la figure 8.13. Les enveloppes et distributions moyennes dans les grains de RDX sont relevées à 100 ns, 450 ns et 800 ns. La figure 8.14 présente les résultats pour le matériau VI-RDX/cire, les résultats pour les deux autres matériaux sont disponibles en annexe B (Fig. B.4 et Fig. B.5).

Comme dans la première étude, la variation, soit l'épaisseur de l'enveloppe, se réduit avec l'avancée de la simulation. Pour calculer l'épaisseur de l'enveloppe, une différence entre l'aire sous la courbe définissant la limite haute de l'enveloppe (A_{max}) et l'aire sous la courbe définissant la limite basse de l'enveloppe (A_{min}) est réalisée. Cette valeur est normée par A_{min} pour permettre la comparaison entre les trois matériaux. La figure 8.15 présente la variation des épaisseurs des enveloppes de pression et de température en fonction du temps.

Les variations, donc l'épaisseur des enveloppes, sont plus importantes en pression qu'en température. Derrière le front de choc, les distributions de pression pour les coupes du matériau RVI-RDX présentent les écarts les plus importants, tandis que le VI-RDX présente les écarts les plus faibles. Nous rappelons que c'est dans les coupes de RVI-RDX/cire que nous avons le plus de disparités en terme de granulométrie des grains, ce qui pourrait expliquer ces plus grandes variations. A partir de 450 ns, les épaisseurs des enveloppes ne varient plus et sont quasiment identiques. La distribution devient une mesure globale et ne permet plus de distinguer les spécificités des champs.

Nous comparons les distributions moyennes de pression et de température des trois matériaux

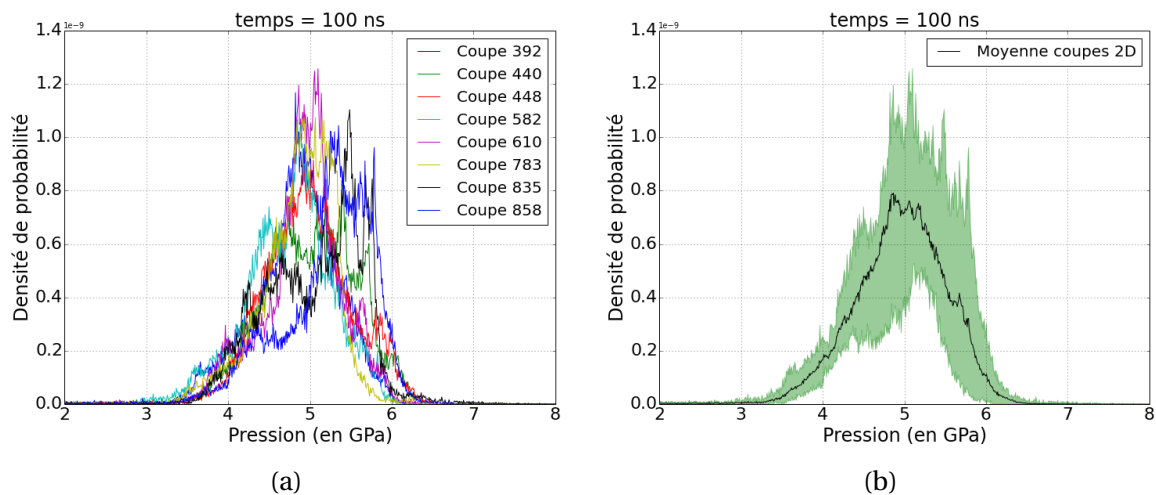


FIGURE 8.13 – Distribution de pression dans les grains de RVI-RDX à 100 ns : (a) distribution de huit coupes et (b) distribution moyenne et son enveloppe formée des valeurs minimales et maximales des distributions présentées sur la figure (a)

sur les figures 8.16 et 8.17. Dans l'étude précédente où la porosité était prise en compte, les grains de RS-RDX se démarquaient avec des niveaux de pression plus élevés que dans les deux autres types de grains à 100 ns et 750 ns. Cette fois-ci, ce sont les grains de RVI-RDX qui atteignent des niveaux de pression plus élevés à 100 ns. Mais cette particularité disparaît sur les distributions à 800 ns, ce qui semble indiquer que la différence en pression observée aux premiers instants de la simulation n'est probablement pas significative.

Précédemment, les points chauds étaient plus nombreux dans les grains de RS-RDX, et moins nombreux dans les grains de VI-RDX. Cette tendance disparaît dans les microstructures sans porosités, car les distributions de température des trois matériaux sont similaires. Les grains de RS-RDX sans porosités ne montrent pas plus de points chauds que les autres matériaux. L'absence de différences entre les queues de distribution des grains de RVI-RDX et de VI-RDX révèle que les différences observées précédemment étaient liées aux choix des coupes et à la présence des défauts intra-granulaires. Les distributions de température ne permettent pas de faire ressortir de différences en termes de points chauds entre ces deux types de grains. En effet, une distribution ne permet pas une étude locale des champs de température. Une nouvelle méthode d'exploitation des simulations mésoscopiques est proposée dans la conclusion de ce chapitre (Sec. 8.4).

8.3.2 Calculs en 3D

Des simulations numériques ont été réalisées sur un volume de 500^3 voxels pour chacun des trois matériaux, sans la porosité intra-granulaire. Les conditions aux limites et la modélisation des matériaux sont identiques au cas 2D.

Ces calculs 3D, sur des volumes de 500^3 voxels, font office de test. Ils permettent de vérifier, dans un premier temps :

- le temps de calcul et le niveau de parallélisation requis ;
- la taille des fichiers de sortie ;
- la faisabilité d'une visualisation avec l'interface graphique.

Les tailles des sorties et les temps de calcul (15 heures sur 1024 processeurs) restant raisonnables, des simulations sur des volumes de 1000^3 voxels ont été lancées. Elles n'ont pas pu être exploitées suffisamment tôt pour figurer dans ce mémoire. Dans un second temps, la comparaison des calculs 2D et 3D permet de vérifier s'il existe des différences notables qui justifieraient la nécessité

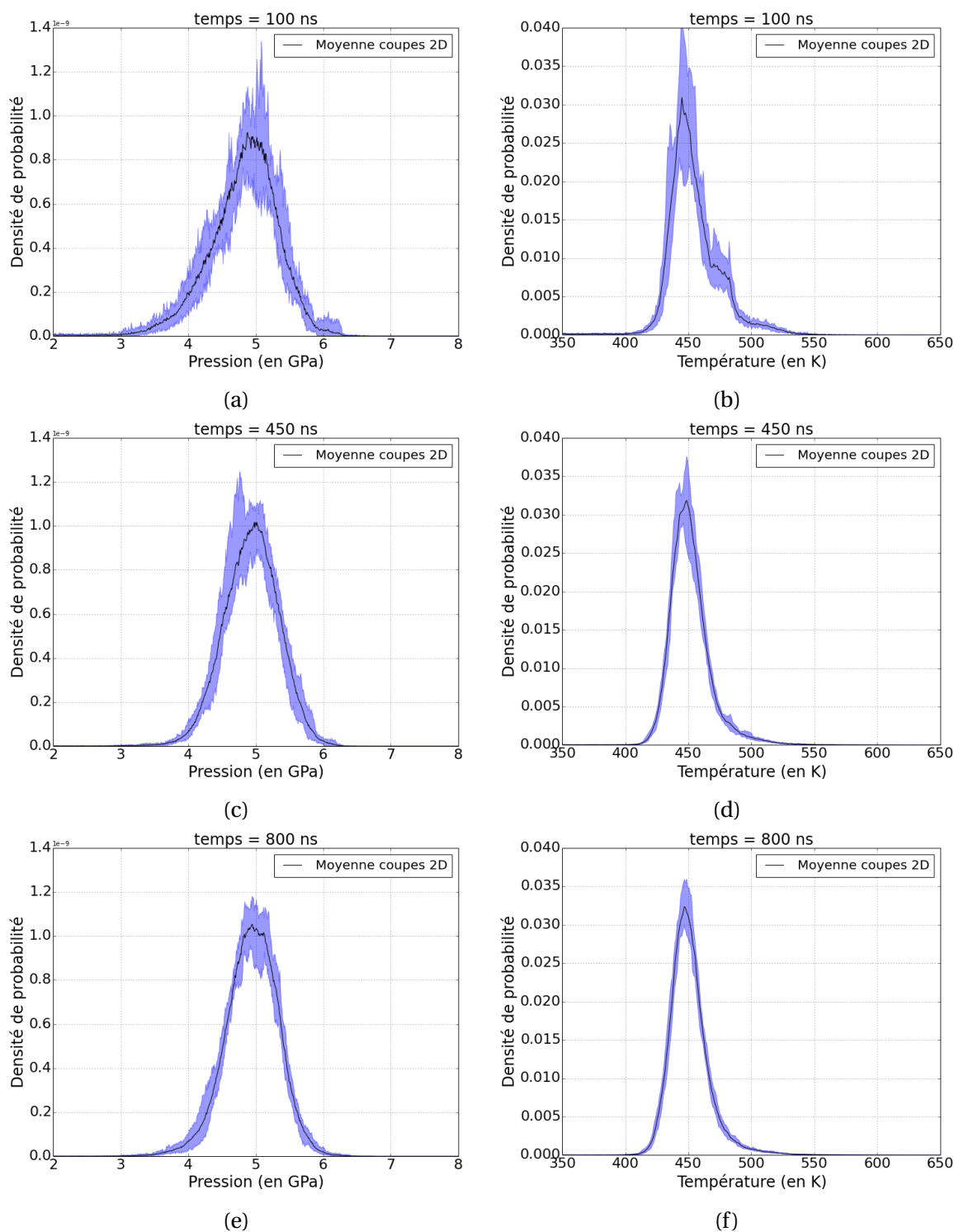


FIGURE 8.14 – Distributions de pression dans les grains derrière le front de choc pour le matériau à base de VI-RDX à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns

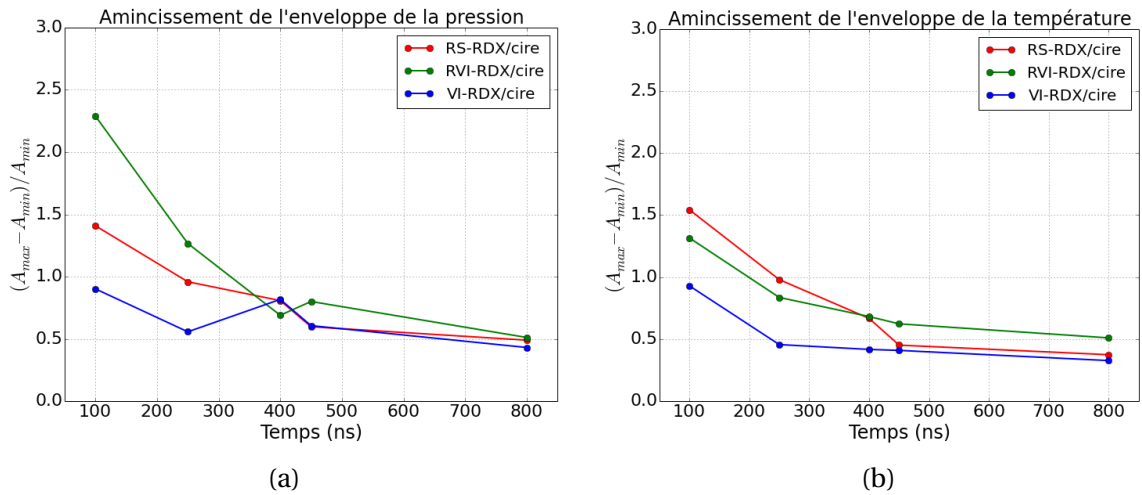


FIGURE 8.15 – Évolution de l'épaisseur de l'enveloppe en fonction du temps (a) des distributions de pression et (b) des distributions de température

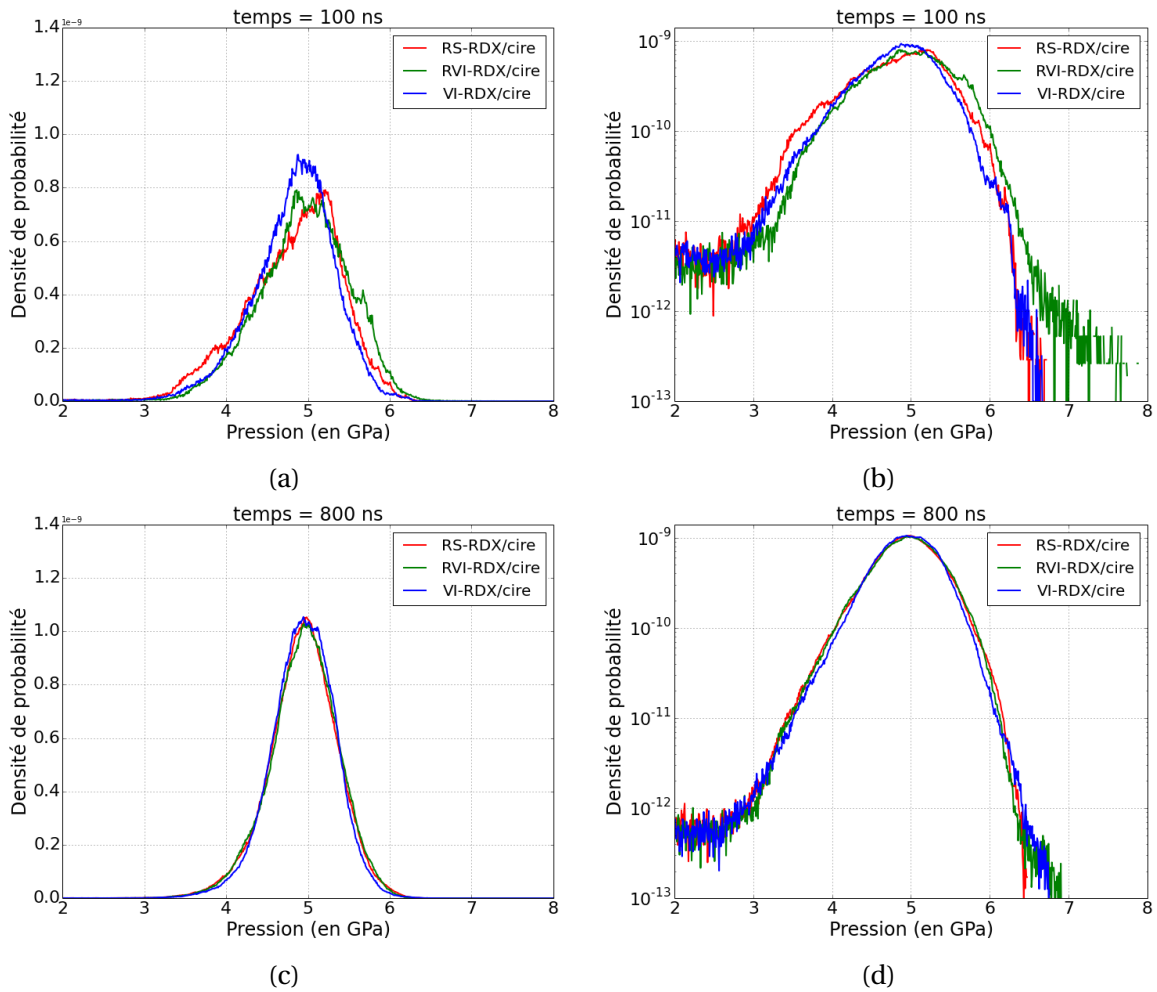


FIGURE 8.16 – Comparaison des distributions de pression dans les grains entre les trois matériaux sans porosités sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns et (c-d) 800 ns après le choc

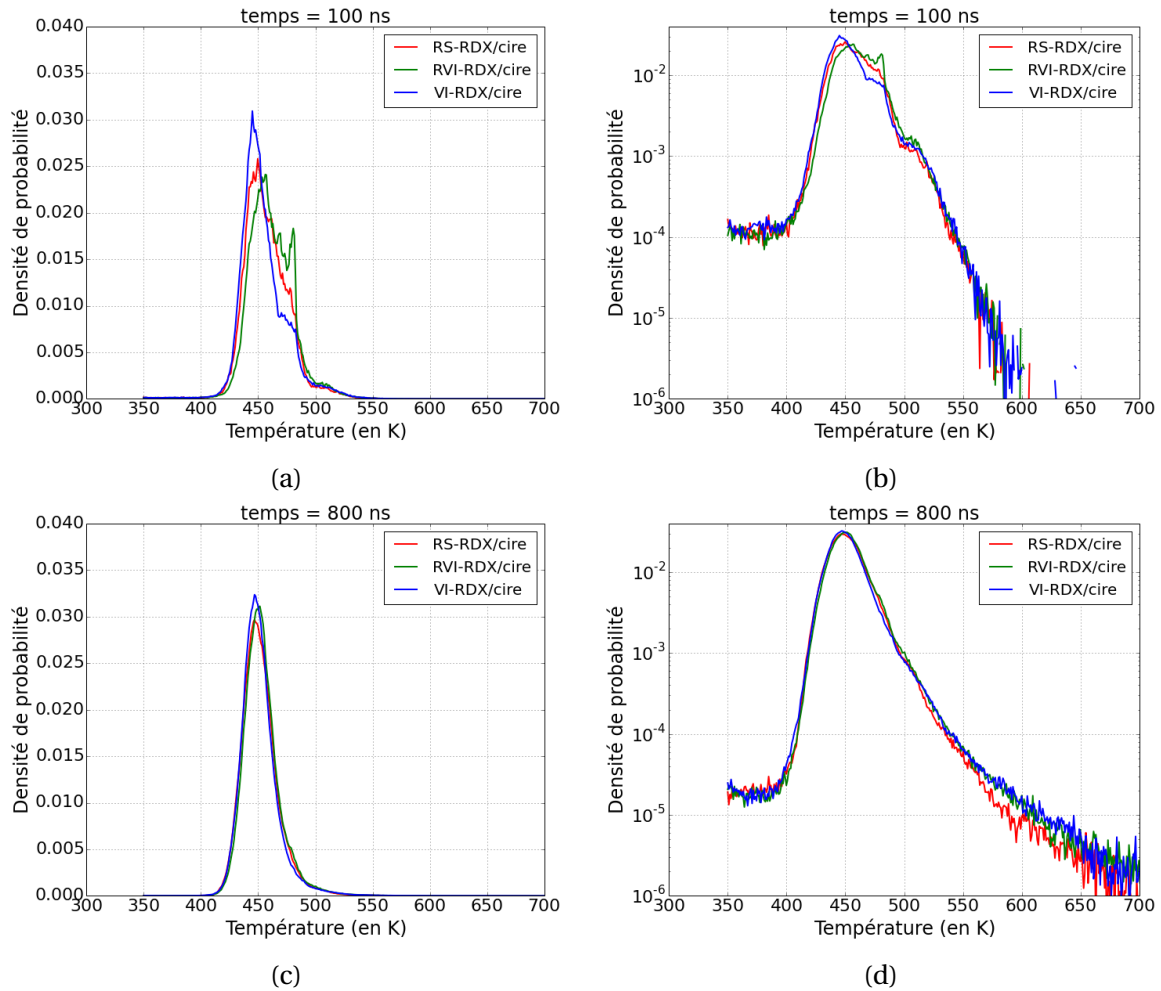


FIGURE 8.17 – Comparaison des distributions de température entre les trois matériaux sans porosités sur une échelle linéaire et logarithmique à (a-b) 100 ns, (c-d) 800 ns après le choc

des calculs 3D, bien plus coûteux que les calculs 2D.

Une comparaison des distributions de pression et de température dans les grains, entre les calculs 2D et les calculs 3D, est présentée sur les figures 8.18 et 8.19. Les distributions sont tracées à 100 ns et 400 ns après le choc. Des écarts importants sont observés sur les distributions de pression, particulièrement à 100 ns. Les distributions pour les calculs 3D ne se trouvent pas dans l'enveloppe définie par les huit calculs menés sur des coupes 2D. En effet, les distributions 3D sont plus étroites que celles en 2D. Cette même observation est effectuée pour les trois matériaux. Les différences sont moins marquées pour les distributions de température dans les grains. Même si des écarts entre la distribution moyenne sur les huit coupes 2D et la distribution 3D apparaissent, la courbe est contenue dans l'enveloppe. Cette étude montre que la température est moins sensible au changement de dimension que la pression, et souligne l'intérêt des calculs 3D. En effet, les différences entre les calculs 3D et 2D ne sont pas négligeables, alors même que nous travaillons sur des distributions. Il est probable que ces différences seraient plus marquées si les résultats étaient analysés avec une méthode locale.

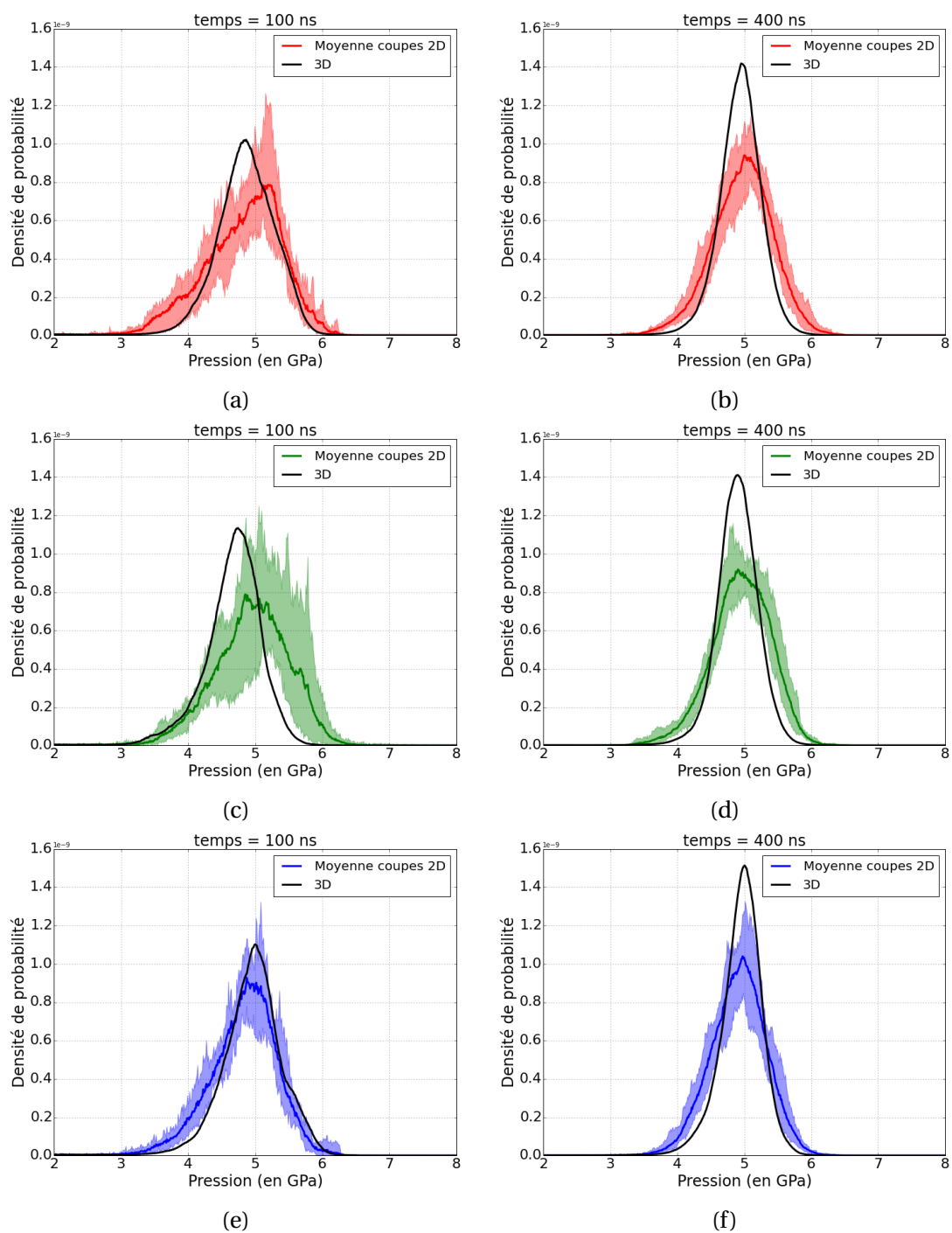


FIGURE 8.18 – Comparaison des distributions de pression derrière le front de choc entre le cas 2D et le cas 3D : dans les grains de RS-RDX à (a) 100 ns et (b) 400 ns, dans les grains de RVI-RDX à (c) 100 ns et (d) 400 ns, dans les grains de VI-RDX à (e) 100 ns et (f) 400 ns

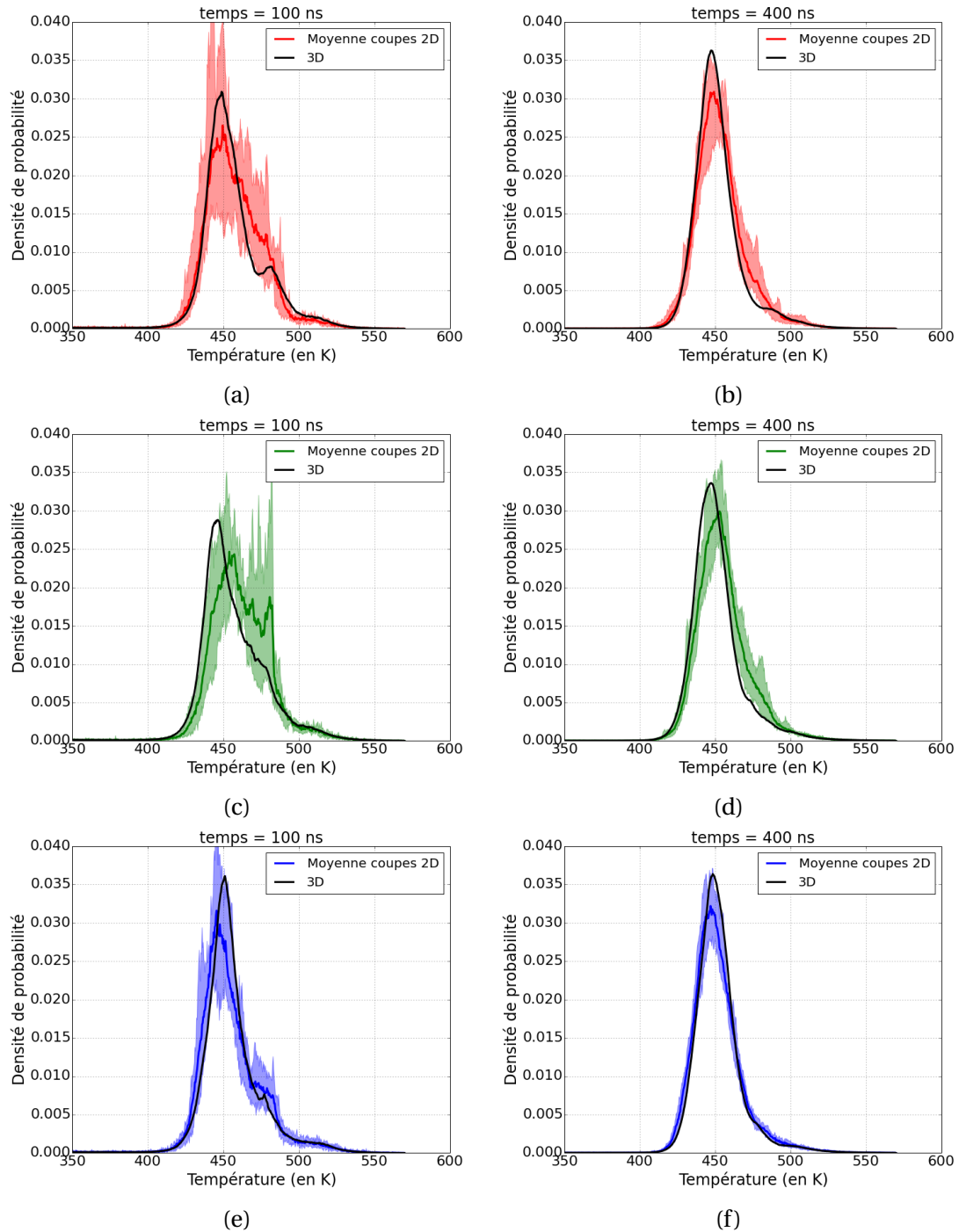


FIGURE 8.19 – Comparaison des distributions de température derrière le front de choc entre le cas 2D et le cas 3D : dans les grains de RS-RDX à (a) 100 ns et (b) 400 ns, dans les grains de RVI-RDX à (c) 100 ns et (d) 400 ns, dans les grains de VI-RDX à (e) 100 ns et (f) 400 ns

8.4 Conclusions et perspectives

Le premier objectif des simulations numériques était de retrouver les mêmes tendances de sensibilité au choc entre les trois matériaux que celles obtenues expérimentalement. Pour ce faire, les distributions de pression et de température derrière le front de choc sont calculées et comparées. Cette méthode de comparaison a permis de mettre en évidence une différence entre les matériaux à base de RS-RDX et les matériaux à base de RVI-RDX et de VI-RDX lorsque la porosité intra-granulaire est prise en compte. En effet, davantage de points chauds se forment dans les grains de RS-RDX à cause de sa plus grande porosité intra-granulaire. En revanche, aucune différence n'a été observée sur la formation de points chauds entre les grains de RVI-RDX et de VI-RDX.

Ces simulations numériques à l'échelle mésoscopique, sur des coupes extraites des microtomographies, ont permis de montrer que les points chauds sont situés préférentiellement au niveau :

- des défauts intra-granulaires ;
- des points de contact entre les grains ;
- des grains en contact avec le projectile.

Cette étude souligne également l'importance du choix de la coupe pour les calculs en 2 dimensions. En effet, lorsque la distribution est calculée juste derrière le front de choc, de fortes disparités entre les coupes apparaissent. Ces disparités sont liées au fait que les microstructures sont différentes, notamment en ce qui concerne la présence de défauts intra-granulaires.

Certaines différences entre les trois matériaux n'ont probablement pas pu être observées car elles ne sont pas assez importantes pour être visibles sur des distributions. Pour mieux étudier l'influence de la microstructure sur la formation des points chauds, il faut étudier les champs de température locaux. Il est envisagé de développer une nouvelle méthode d'exploitation des microstructures permettant un lien direct entre les champs de température ou de pression et la microstructure. Il serait alors possible d'identifier des corrélations entre les points chauds et certains paramètres microstructuraux. Par exemple, si un point chaud se forme dans un grain, cette méthode permettrait de remonter à la morphologie de ce grain (volume, sphéricité, angularité...), mais également à des informations spatiales comme sa position dans la microstructure par rapport à d'autres grains, son orientation, sa connexité... Une étude statistique sur les grains dans lesquels se forment préférentiellement les points chauds permettrait ensuite d'identifier des corrélations plus ou moins fortes entre la formation des points chauds et la microstructure. La difficulté principale pour mettre en œuvre cette méthode est qu'il faut être capable, après identification d'un point chaud à un temps donné, de revenir à sa position initiale dans la microstructure. Il faut donc disposer du champs des déformations à tout instant. Ce n'est pas un problème pour des simulations lagrangiennes, car le maillage est attaché aux objets. C'est plus complexe pour des simulations eulériennes car les objets se déforment et se déplacent sur une grille fixe. La solution envisagée actuellement est l'utilisation d'outils de recalage d'images qui permettent de recalculer le champs des déformations.

La marge de progression pour améliorer la représentativité des simulations numériques dynamiques à l'échelle mésoscopique est importante.

Pour commencer, la modélisation du comportement mécanique des matériaux peut être améliorée. Une étude réalisée par nano-indentation [215] a montré que le comportement mécanique des grains dépend de sa qualité, c'est à dire de sa quantité de défauts intra-granulaires. Les expériences de récupération sous choc réalisées au cours de cette thèse (chapitre 9) semblent également confirmer que le RS-RDX, contenant le plus de défauts intra-granulaires, est plus fragile que les deux autres matériaux. L'intégration de critères d'endommagement dans les simulations numériques est une première étape dans l'amélioration des simulations. A plus long terme, l'utilisation d'une loi de comportement visco-élastique pour modéliser la cire, et la prise en compte de

l'anisotropie des grains de RDX sera également nécessaire pour être plus proche de la réalité.

Le deuxième point d'amélioration porte sur les équations d'état. Le calcul de la température dans les simulations numériques dépend, en partie, de la capacité calorifique à volume constant c_v des matériaux. Actuellement, dans la majorité des cas (et dans OURANOS), ce coefficient est constant et égal à sa valeur à température ambiante. Utiliser un c_v constant conduit à une sous-estimation de la température réelle [286]. L'intégration d'équations d'état complexes dans des codes de simulations dynamiques, comme par exemple celle de Menikoff [287] avec un c_v dépendant de la température, n'est pas encore possible dans OURANOS. L'utilisation d'une équation d'état de Cochran-Chan (Sec. 2.2.1) avec un calcul des coefficients par la méthode développée par le CEA Gramat [41] est une première option pour une meilleure modélisation. En effet, cette méthode consiste à recalculer les coefficients de l'équation d'état pour se rapprocher au mieux de l'équation d'état de Menikoff. Le c_v reste constant mais est pris égal à la valeur moyenne sous choc dans le matériau.

Quatrième partie

Expérimental

Chapitre 9

Mise en place d'expériences de récupération

Des expériences de récupération ont été réalisées à l'Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis (ISL). Un échantillon de chaque matériau est impacté sans atteindre le seuil de réaction, puis récupéré sans endommagement supplémentaire. Les échantillons impactés sont ensuite transférés au CEA Gramat afin d'être microtomographiés. L'analyse des microtomographies permet d'observer les modes d'endommagement préférentiels et l'influence de la microstructure sur ces modes d'endommagement.

Dans un premier temps, une description des différents dispositifs envisagés est réalisée. Dans un deuxième temps, le dimensionnement du dispositif retenu, ainsi que la phase de réalisation des tirs à l'ISL sont présentés. Enfin, des premières observations visuelles sont réalisées sur les microtomographies des échantillons endommagés.

9.1 Dispositifs de récupération sous choc envisagés

La tour de chute du CEA Gramat a été adaptée, au cours de la thèse de P. Mateille [288], pour soumettre des échantillons de butalite (60 % en masse de perchlorate d'ammonium et 40 % de liant PBHT) à un impact de faible intensité. Pour notre étude, nous souhaitons atteindre des vitesses de déformation et des pressions de choc plus importantes, c'est pourquoi ce dispositif n'a pas été retenu.

Deux autres méthodes ont été envisagées pour récupérer des échantillons endommagés après un impact. La première méthode s'appuie sur la génération d'une onde de choc plane par relèvement de plaque [289–291]. Ce dispositif expérimental a été développé à l'ISL dans les années 1970. Une plaque est projetée par un explosif sur le matériau à tester. Pour avoir un impact plan, la plaque et son explosif de propulsion sont légèrement inclinés par rapport à la surface de l'échantillon à tester. La pression du choc est contrôlée par la vitesse de la plaque, la durée du choc par son épaisseur. Après impact, l'échantillon endommagé est récupéré grâce à un dispositif approprié (par exemple un bidon rempli de chiffons) et la plaque est stoppée pour éviter un nouveau choc (Fig 9.1a). Le relèvement de plaque est un dispositif expérimental classique mais non standardisé qui n'a pas été utilisé depuis quelques années à l'ISL.

La deuxième méthode consiste à générer une onde de choc dans l'échantillon avec un impacteur projeté par un lanceur. Le matériau d'étude se trouve dans un boîtier récupéré après l'impact. Cette méthode a été utilisée pour la récupération de céramiques [292], de métaux [293, 294], de roches [295] ou encore de matériaux énergétiques [296]. Le boîtier de récupération est principalement composé de trois éléments (Fig. 9.1b) :

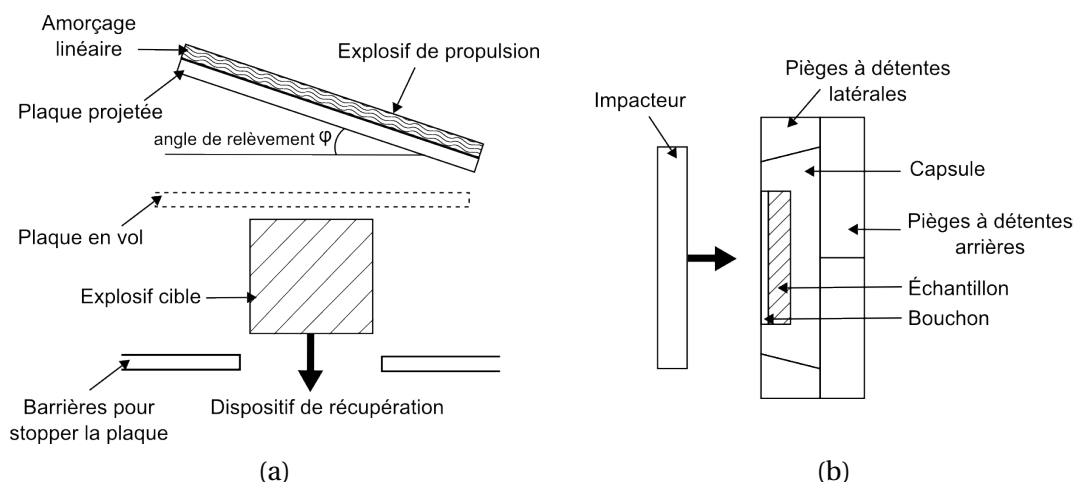


FIGURE 9.1 – Schéma (a) du dispositif de relèvement de plaque et (b) du boîtier de récupération

- une capsule qui contient l'explosif. La capsule est récupérée dans un dispositif de récupération (souvent un milieu rempli de chiffon/mousse/filasse ou bien d'eau pour amortir la capsule);
- des pièges à détentes latérales ayant pour but de les limiter le plus possible, afin de se rapprocher au maximum d'une sollicitation plane dans l'échantillon;
- des pièges à détentes arrière pour empêcher le retour de l'onde de choc dans l'explosif ce qui génère une sollicitation en traction et éventuellement de l'écaillage dans l'échantillon.

Les pièges à détentes arrière ainsi que les pièges à détentes latérales s'écartent pendant le vol ce qui permet de récupérer uniquement la capsule contenant l'échantillon dans le récupérateur.

Selon le matériau étudié, la vitesse de l'impacteur, les matériaux et les dimensions du boîtier varient. Les différences de conception du boîtier de récupération portent principalement sur les pièges à détentes latérales. Dans certaines études, deux niveaux de pièges à détentes sont utilisés [293–295], tandis que dans d'autres, seul un niveau de piège est présent [292, 296]. Les études numériques réalisées par Zinszner [292] et par Trumel [296] indiquent qu'un étage de pièges suffit pour limiter les détentes latérales. Les pièges à détentes latérales peuvent être coniques pour faciliter la séparation [294, 296], ou droits [292]. La génération d'une onde plane par projection de plaque sur un échantillon d'explosif placé dans un boîtier de récupération, est l'approche qui a été retenue pour réaliser nos essais.

9.2 Conceptions et réalisation des tirs

9.2.1 Choix des matériaux et de la géométrie

Nous avons choisi de partir d'un dispositif de récupération développé au CEA Gramat [292, 295, 296] et de l'adapter à nos besoins. Les études effectuées sur les céramiques [292] et les roches [295] sont réalisées avec un lanceur à gaz d'un diamètre de 110 mm. Le projectile et l'impacteur sont stoppés à l'entrée du récupérateur pour éviter les rechocs. En effet, l'ouverture du récupérateur est suffisamment petite pour bloquer l'impacteur, mais suffisamment grande pour laisser passer la capsule. Dans l'étude réalisée sur un explosif [296], le lanceur à gaz a un diamètre de 98 mm. Le boîtier de récupération est directement fixé à la bouche du canon. Le projectile et l'impacteur sont ralentis à la sortie du canon par un dispositif à écrasement d'un diamètre supérieur à celui de l'entrée du récupérateur.

L'ISL dispose d'un canon à poudre de calibre 20 mm pouvant tirer des projectiles plus ou moins denses à des vitesses comprises entre 600 et 1400 m/s. La principale difficulté dans le dimensionnement de l'expérience est l'obtention d'une onde plane dans l'échantillon. En effet, du fait des détentes latérales, le choc n'est plan que sur une certaine épaisseur de matière traversée. Compte

TABLEAU 9.1 – Coefficients c_0 et s de la polaire de choc $D = c_0 + su$ des différents matériaux utilisés dans les expériences de récupération

Matériau	Masse volumique (en kg/m ³)	c_0 (en m/s)	s -	Z (en kg/m ² s)	Source
RDX/cire	1445	2752	1,410	$3,98 \times 10^6$	section 4.3.2
Teflon	2153	1841	1,707	$3,96 \times 10^6$	[29]
Acier à blindage	7860	4582	1,466	$3,60 \times 10^7$	
Aluminium-6061-T6	2702	5350	1,34	$1,45 \cdot 10^7$	[297]

tenu des dimensions du projectile, nous avons peu de marge de manœuvre dans le dimensionnement du boîtier de récupération pour que l'onde reste plane dans l'échantillon.

Le sabot et le projectile doivent tous deux être arrêtés afin qu'ils ne réimpactent pas la capsule dans le récupérateur. Plutôt que d'arrêter ces deux éléments à l'entrée du récupérateur comme dans les études précédentes [292, 295, 296], nous choisissons d'utiliser une plaque de transfert qui sert également de plaque arrêtoir. Ce choix est lié au fait que les dimensions du projectile, du sabot et de la capsule contenant l'échantillon restent assez proches. La taille et la position de l'ouverture du récupérateur doivent donc être déterminées précisément pour permettre le passage de la capsule, et l'arrêt des autres éléments. La conception de l'ouverture est d'autant plus complexe que le boîtier doit parcourir une certaine distance avant d'atteindre le récupérateur pour permettre la séparation des pièges à détentes. De plus, de par les dimensions et le poids du boîtier, sa stabilité en vol et une trajectoire rectiligne ne sont pas assurées. Il y a un risque que la capsule ne parvienne pas à rentrer correctement dans le récupérateur. Grâce à l'utilisation d'une plaque arrêtoir, cette difficulté peut être écartée. Le boîtier de récupération est fixé derrière la plaque. La plaque arrêtoir doit être non seulement suffisamment fine pour que le choc reste plan dans une partie de l'échantillon, mais aussi suffisamment épaisse pour ne pas être perforée par le projectile.

La mise au point du dispositif expérimental passe par le choix :

- des matériaux des différents éléments (différentes parties du boîtier, projectile, plaque arrêtoir) ;
- des dimensions des différents éléments (différentes parties du boîtier, plaque arrêtoir).

Tous les éléments du boîtier doivent être constitués du même matériau, avec une impédance $Z = \rho_0 c_0$ la plus proche possible de celle de l'explosif à tester. Adapter les impédances permet de limiter les réflexions d'onde de choc. En effet, lorsqu'un objet est composé de plusieurs matériaux, une onde incidente se transmet et se réfléchit à chaque interface. Le matériau choisi pour le boîtier est le téflon. Les coefficients de la polaire de choc du téflon ainsi que son impédance sont détaillés dans le tableau 9.1.

Les dimensions de l'échantillon d'explosif sont fixées (diamètre de 8 mm et hauteur 8 mm) au même titre que les dimensions du projectile (diamètre de 20 mm et une hauteur de 10 mm) par les contraintes de fabrication d'échantillons et le lanceur de l'ISL. Ainsi, le choc exercé est soutenu et repose sur le diamètre du projectile plutôt que sur sa longueur, du fait des détentes latérales. Le matériau et la vitesse du projectile contrôlent le niveau de pression exercé sur l'échantillon. La pression de choc dans les trois échantillons RDX/cire doit être inférieure à la pression d'amorçage déterminée expérimentalement (Sec. 4.3.3) qui est environ égale à 6,2 GPa pour le RS-RDX/cire et le RVI-RDX/cire. Par mesure de sécurité, la pression maximale dans l'échantillon ne devra pas dépasser 3 GPa.

Le matériau du projectile et l'épaisseur des différents éléments (plaque et boîtier) sont prédimensionnés avec un code de calcul 1D développé par le LDT (Laboratoire de Détonique et Thermique) du CEA Gramat. Ce code permet d'obtenir une estimation des différents paramètres physiques dans chaque matériau après un impact. La détermination de la pression d'équilibre P , de

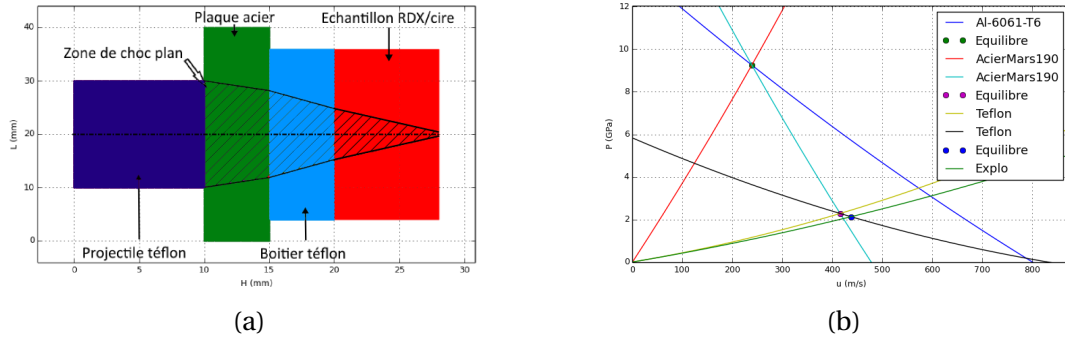


FIGURE 9.2 – (a) Schéma de la configuration testée : projectile en aluminium avec une vitesse de 800 m/s, plaque arrêteur d’une épaisseur de 5mm, épaisseur du boîtier de 5 mm. La pression dans l’explosif est déterminée par (b) croisement des polaires de choc pour la configuration (a).

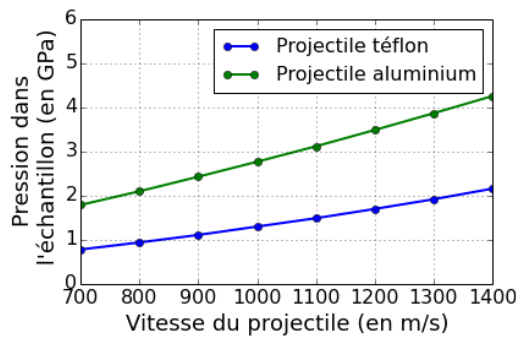


FIGURE 9.3 – Pression de choc théorique dans l’explosif en fonction du type de projectile et de sa vitesse

la vitesse matérielle u et de la vitesse du choc D dans chaque milieu est réalisée par méthode du croisement des polaires de choc (Fig. 9.2b). L’angle de détente théorique α dans chaque milieu est calculé avec l’équation (9.1).

$$\alpha = \arctan\left(\frac{\sqrt{c^2 - (D - u)^2}}{D}\right) \quad \text{avec} \quad r = \frac{\rho_0 D}{D - u} \quad \text{et} \quad c = \frac{\rho_0}{r(c_0 + 2su)} \quad (9.1)$$

Ce calcul permet de vérifier qu’une partie de l’onde de choc est toujours plane lorsqu’elle traverse l’échantillon (Fig. 9.2a).

Différentes épaisseurs de plaque et de boîtier ainsi que différents matériaux pour le projectile sont testés. Nous contrôlons que la pression de choc dans l’explosif reste inférieure à 3 GPa et que le choc soit plan dans une partie de l’échantillon. L’épaisseur de la plaque retenue est de 5 mm ou 7 mm. Si la plaque est plus épaisse, l’onde de choc n’est plus plane dans l’échantillon car l’angle de détente dans l’acier est important. L’épaisseur du boîtier est fixée à 5 mm. Un projectile en aluminium et un projectile en téflon sont sélectionnés pour atteindre des niveaux de pression dans l’explosif compris entre 0,7 GPa et 3,0 GPa (Fig. 9.3).

En parallèle de ces calculs 1D, des simulations numériques ont été réalisées avec le code OURANOS au CEA Gramat et avec le code AUTODYN à l’ISL pour déterminer la configuration du boîtier la plus adaptée. Les simulations réalisées avec OURANOS et AUTODYN sont des simulations lagrangiennes axisymétriques. Le projectile en téflon ou en aluminium, le boîtier en téflon et l’explosif RDX/cire sont modélisés avec des équations d’état de Mie-Grüneisen et des comportements élasto-plastiques parfaits. Dans les calculs OURANOS, la plaque arrêteur est en acier à blindage et est modélisée avec une équation d’état de Murnaghan et une loi de comportement de Johnson-Cook (équation (2.13), Tab. 9.2, Tab. 9.3). La plaque utilisée dans les calculs AUTODYN est une plaque en acier 304. Elle est modélisée avec une équation d’état de Mie-Grüneisen et une

TABLEAU 9.2 – Équations d'état utilisées pour les simulations numériques de dimensionnement d'expériences de récupération sous choc

	Acier 304/316	Acier à blindage	Aluminium	Téflon	RDX/cire
	Mie-Grüneisen	Murnaghan	Mie-Grüneisen	Mie-Grüneisen	Mie-Grüneisen
ρ_0 (kg/m ³)	7860	7860	2703	2153	1445
c_0 (m/s)	4610		5350	1841	2752
s	1,730		1,340	1,707	1,41
Γ_0	1,67	1,93	1,97	0,59	1,03
K_0 (GPa)		161			
K'_0		5,057			
c_v (J/kg.K)		450,90			

TABLEAU 9.3 – Lois de comportement utilisées pour les simulations numériques de dimensionnement d'expériences de récupération sous choc

	Acier 304/316	Acier à blindage	Aluminium	Téflon	RDX/cire
	Johnson-Cook	Johnson-Cook	élasto-plast. parfait	élasto-plast. parfait	élasto-plast. parfait
G (GPa)	73,0	73,0	26,9	2,33	4,00
Y (MPa)			290,0	50,0	50,0
A (MPa)	350	1540			
B (MPa)	275	477			
n	0,36	0,18			
C	0,022	0,012			
m	1	1			
T_f (K)	1811	1763			

loi de comportement de Johnson-Cook. Un critère d'endommagement est intégré pour tous les éléments : les mailles sont érodées (c'est-à-dire supprimées) dès lors que la déformation plastique dépasse 150 %. La plaque arrêtoir est fixée à ses extrémités pour les simulations AUTODYN et OURIANOS.

Les simulations réalisées par l'ISL cherchent à vérifier si une plaque arrêtoir en acier doux de 7 mm est perforée. Les résultats sont dépendants des modèles matériaux utilisés. Si une plaque en acier 304 n'est pas perforée avec un projectile en téflon à 700 m/s, la perforation est plus probable et dépend de la modélisation à 1400 m/s. En effet, la plaque résiste lorsque seul le critère d'érosion des mailles est appliqué. En revanche, la plaque est perforée si un critère de rupture de l'acier à 400 MPa est ajouté. Dans les deux cas, le boîtier de récupération placé derrière la plaque est fortement déformé. Avec un projectile en aluminium (6061-T6), la plaque résiste mais le boîtier est déjà fortement déformé pour une vitesse de 700 m/s (Fig. 9.4). La perforation de la plaque est certaine avec un projectile en aluminium à 1400 m/s. Ces calculs indiquent que, pour s'assurer de la non perforation de la plaque et de l'intégrité du boîtier, la vitesse du projectile en téflon doit être inférieure à 1400 m/s. L'utilisation du projectile en aluminium n'est peut-être pas non plus réalisable, même à une vitesse de 700 m/s, car il risque d'entraîner de trop grandes déformations du boîtier. A noter que dans les simulations, la plaque est fixée sur les bords. Cette condition aux limites est défavorable car les déformations sont plus importantes et la perforation de la plaque est donc plus probable. Pour les expériences, la plaque est seulement suspendue ce qui permet sa mise en mouvement et une absorption partielle de l'énergie cinétique du projectile. Les déformations dans la plaque sont réduites par rapport au cas où la plaque est maintenue à ses extrémités. Finalement, des tirs d'étalonnage sont effectués avec une plaque en acier à blindage, plus résistant que l'acier 304, d'une épaisseur de 5 mm (Sec. 9.2.2). Les tirs ont été effectués avec des projectiles en téflon

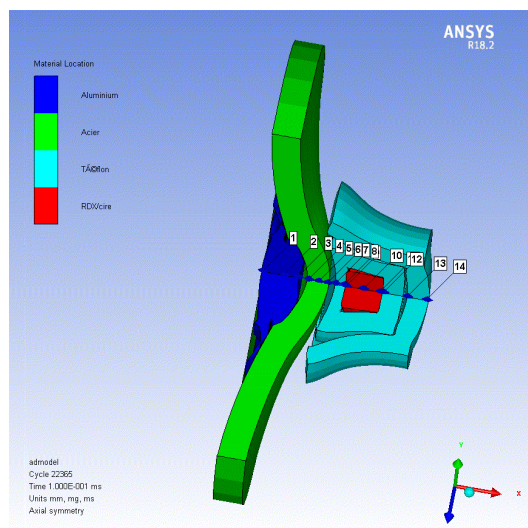


FIGURE 9.4 – Simulations AUTODYN réalisée par l'ISL pour contrôler la perforation d'une plaque en acier et la déformation du boîtier en téflon après l'impact d'un projectile en aluminium de 700 m/s

et en aluminium à des vitesses comprises entre 700 et 1000 m/s pour confirmer les vitesses maximales, déjà pressenties par simulations numériques, avec lesquelles l'endommagement du boîtier reste limité.

Les simulations OURANOS sont exploitées pour visualiser l'onde de choc que subit le matériau. Sur les résultats présentés à la figure 9.5, la vitesse du projectile en téflon est de 800 m/s et l'épaisseur de la plaque arrêtoir en acier est de 5 mm. La pression et les contraintes longitudinales sont relevées au cours du temps en trois points de l'explosif (Fig. 9.5a). On s'aperçoit que deux chocs successifs traversent l'échantillon (Fig. 9.5b). Le deuxième choc provient du retour de l'onde réfléchiée dans la plaque en acier. Pour les expérimentations, la plaque est suspendue et le boîtier est juste mis en contact avec la plaque, sans fixations, ce qui permet une séparation de la plaque et évite les rechargements. Les profils de pression, tracés en trois points de l'explosif, indiquent qu'il y a une atténuation de la pression de choc (Fig. 9.5c). Ce résultat n'est pas surprenant car nous travaillons avec un échantillon d'explosif de grande taille par rapport au diamètre du projectile. Il faudra être conscient lors de l'exploitation des microtomographies que l'ensemble de l'explosif ne subit pas la même contrainte. Nous remarquons également que la pression maximale dans l'explosif, égale à 0,72 GPa, est plus faible que celle prévue par les calculs 1D de 0,92 GPa du fait des ondes de détente et du comportement mécanique des matériaux. L'étude de la contrainte longitudinale en fonction du temps (Fig. 9.5d) indique que les pièges à détente arrière fonctionnent correctement, car l'explosif n'est quasiment pas sollicité en traction.

Finalement, la configuration retenue est la suivante : le boîtier est composé de trois pièges à détente latérales concentriques, de quatre pièges à détente arrière en quart de disque, d'un bouchon et d'une capsule de récupération conique (Fig. 9.6). À la suite des résultats des calculs 1D et des simulations numériques AUTODYN et OURANOS, nous avons choisi d'effectuer des tirs avec un projectile en téflon à 800 m/s pour obtenir une pression théorique de 0,92 GPa dans l'échantillon, et d'autres tirs avec un projectile en aluminium à 800 m/s pour obtenir une pression théorique de 2,13 GPa.

9.2.2 Réalisation des tirs à l'ISL

La réalisation des tirs par l'ISL a été organisée en deux temps. Les premiers tirs, effectués en octobre et novembre 2019 sont des tirs de calibrage permettant de :

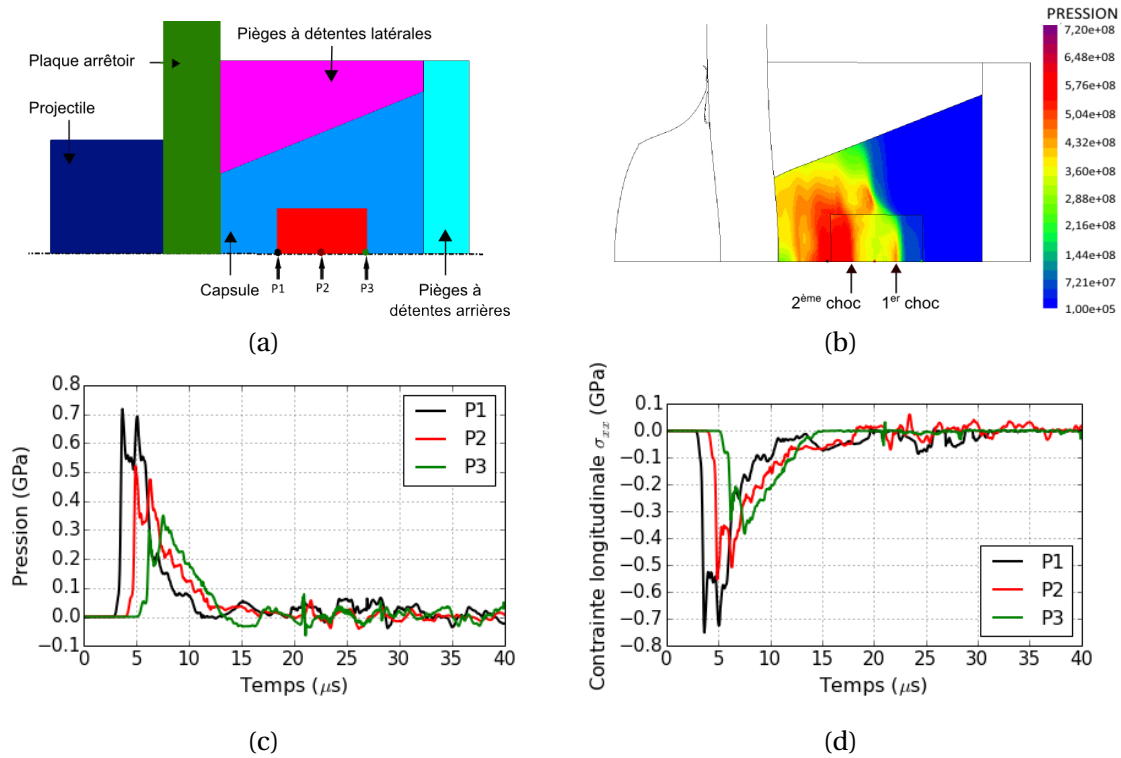


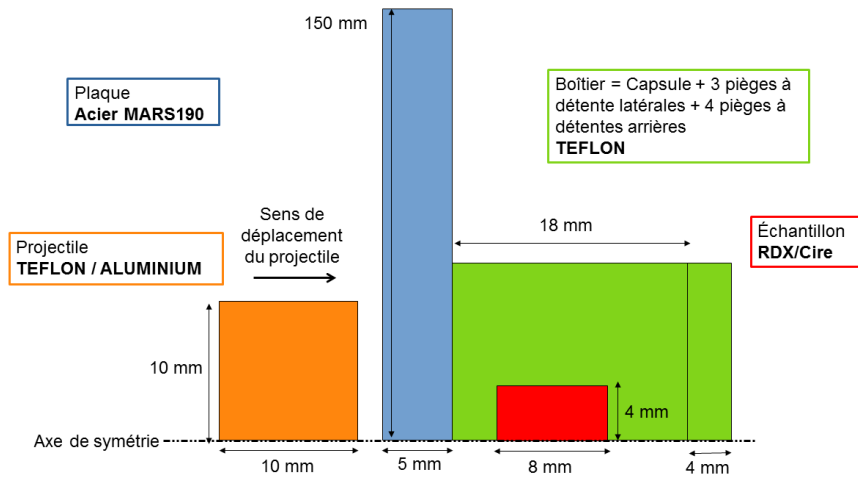
FIGURE 9.5 – Simulations numériques d'un essai de récupération à 800 m/s : (a) position des traceurs sur la géométrie, (b) visualisation de l'onde de choc se propageant dans le dispositif à 5,5 μm après l'impact, (c) pression dans l'explosif et (d) contrainte longitudinale dans l'explosif

- déterminer la quantité de poudre nécessaire pour avoir la bonne vitesse du projectile ;
- s'assurer de la stabilité du projectile en vol pour obtenir un choc plan ;
- s'assurer que le projectile ne perfore pas la plaque en acier, et donc que le projectile et le sabot soient bien stoppés ;
- s'assurer que les pièges à détentes s'écartent en vol ;
- s'assurer que le boîtier en téflon n'est pas endommagé.

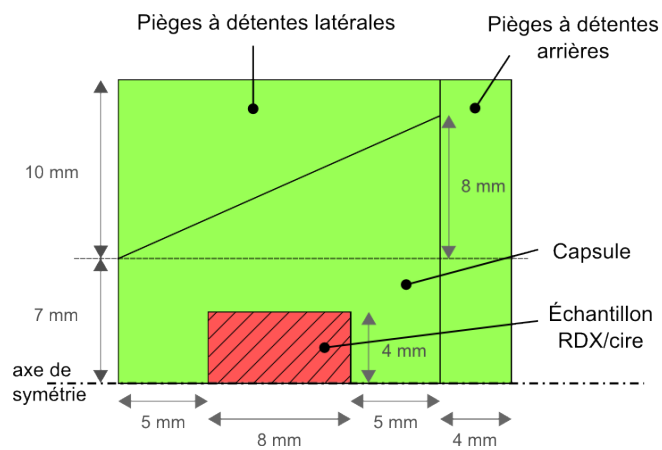
Ces tirs sont réalisés sur des échantillons inertes KCl/cire ayant une masse similaire à celle du matériau RDX/cire (70/30 en masse) (Fig. 9.9a). Le contrôle de la vitesse du projectile, et donc de la quantité de poudre, est réalisé avec deux radiographies. Le déclenchement se fait grâce à un capteur barrière à court-circuit pour détecter le passage du projectile (Fig. 9.7). Les deux prises de vues radiographiques sont ensuite réalisées avec des retards. L'une des radiographies est prise juste avant l'impact ; elle permet de vérifier la stabilité du projectile et la planéité de l'impact sur la plaque arrêtoir (Fig. 9.10). L'autre radiographie est prise un peu avant afin de mesurer la vitesse du projectile juste avant l'impact. La plaque en acier est maintenue avec un dispositif de suspension. Deux planches, placées entre la plaque et le récupérateur, stoppent le mouvement de la plaque après l'impact (Fig. 9.8). Un dispositif léger en mousse, sans résistance mécanique, est centré et collé derrière la plaque. Il permet le positionnement du boîtier de récupération. Les pièges à détentes latérales et arrières sont également maintenus avec la même mousse (Fig. 9.7). Les capsules contenant les échantillons endommagés sont récupérées dans un bidon rempli de filasse.

Quatre tirs avec un projectile en téflon à 765 m/s, 835 m/s, 963 m/s et 1063 m/s sont réalisés (Tab. 9.4). La plaque en acier à blindage n'est pas perforée, même à 1063 m/s. En revanche, le boîtier de récupération est fortement endommagé pour des vitesses de projectile de 963 m/s et 1063 m/s (Fig. 9.9b). De nouveaux essais ont été réalisés en remplaçant le téflon par du Delrin® pour des résultats similaires.

Ces premiers tirs ont permis de valider la stabilité du projectile en vol, la planéité de l'impact du projectile sur la plaque en acier, la non perforation de la plaque et l'écartement des pièges à dé-



(a)



(b)

FIGURE 9.6 – Schémas (a) du dispositif de récupération sous choc et (b) dimensions du boîtier

TABLEAU 9.4 – Résultats de tirs de calibrage

Vitesse du projectile (m/s)	Perforation de la plaque	État du boîtier
765	non	capsule intègre mais déformée
835	non	capsule intègre mais déformée
963	non	capsule éclatée et échantillon perdu
1063	non	capsule éclatée et échantillon présent

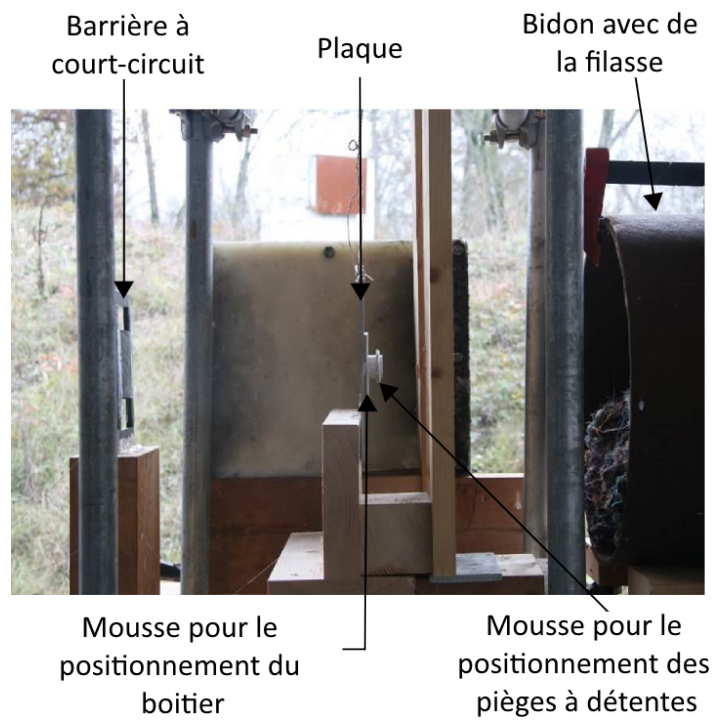


FIGURE 9.7 – Description du dispositif expérimental sur une vue latérale

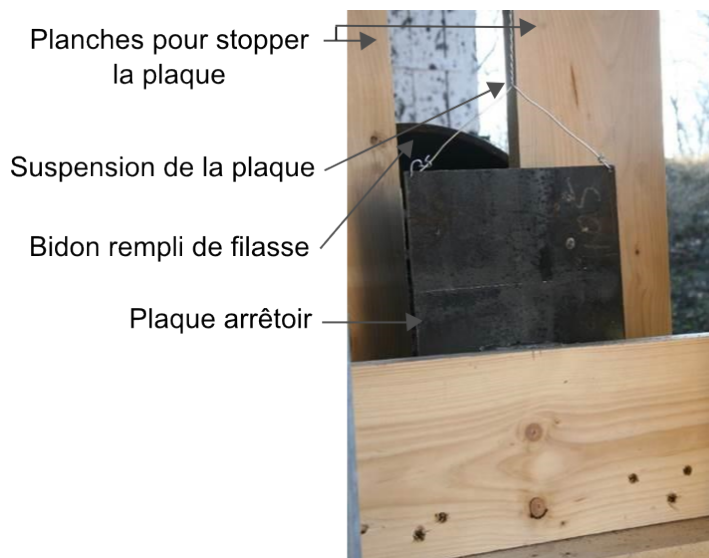


FIGURE 9.8 – Description du dispositif expérimental sur une vue axiale depuis la bouche du canon

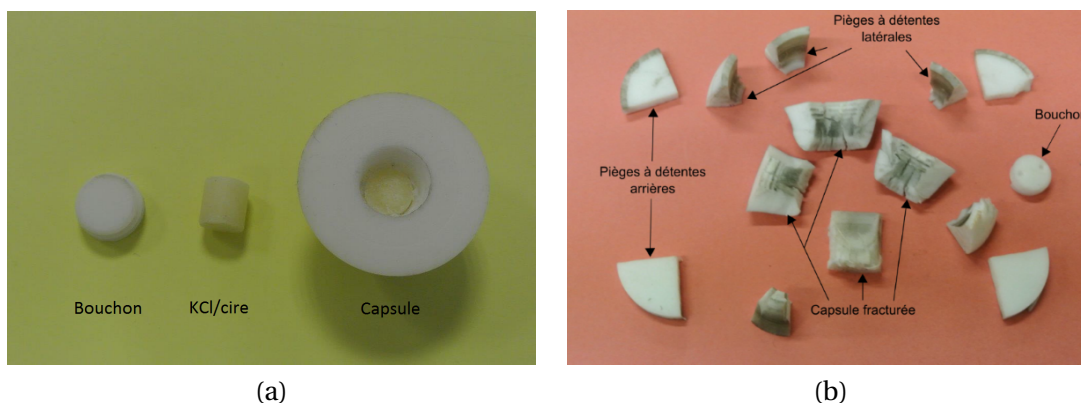


FIGURE 9.9 – Photos de (a) la capsule, du bouchon (téflon) et de l'échantillon (KCl/cire) avant impact, et (b) des éléments du boîtier récupérés après un impact avec un projectile en téflon à 1063 m/s

tentes. La vitesse limite du projectile en téflon garantissant l'intégrité de la capsule est identifiée à environ 900 m/s. L'utilisation d'un projectile en aluminium s'est révélée impossible car même à faible vitesse, la capsule ne résiste pas à la sollicitation. Nous choisissons finalement de réaliser sur les échantillons d'explosif, uniquement des tirs à 800 m/s avec un projectile et un boîtier en téflon. Ces tirs ont également permis d'effectuer certains remaniements sur l'architecture de la capsule, notamment sur le bouchon. Lors des premiers essais, le bouchon fileté était situé devant l'échantillon et ne résistait pas au choc. Ce bouchon a été déplacé pour se retrouver derrière l'explosif. Cette modification de la capsule a été testée et validée lors de plusieurs tirs.

La deuxième campagne de tir a été réalisée en janvier 2020 sur les échantillons d'explosifs. Trois ou quatre tirs ont été effectués sur chacun des trois matériaux RS-RDX/cire, RVI-RDX/cire et VI-RDX/cire (Tab. 9.5). Un échantillon endommagé de chaque matériau a été retenu pour être transmis au CEA Gramat. La sélection des échantillons endommagés s'effectue à partir des radiographies, en fonction de la qualité de l'impact du projectile sur la plaque et en fonction de la vitesse du projectile. Les trois échantillons sélectionnés ont des vitesses de projectile similaires pour permettre la comparaison entre les trois microstructures. Les radiographies ainsi que l'état de la plaque en acier à blindage pour ces trois tirs sont présentés sur les figures 9.11 et 9.12. Pour illustration, une analyse de la radiographie du tir numéro 10 est présentée sur la figure 9.10. Elle combine quatre radiographie prises à des instant différents, et se lit du bas vers le haut. La première vue montre le projectile et le sabot en vol, la deuxième prise de vue montre ces deux objets juste avant l'impact. Ces deux radiographies révèlent que le projectile est stable, et donc que l'impact sur la plaque en acier est plan. Les troisième et quatrième prises de vues sont réalisées après l'impact. Elles permettent de visualiser le début de l'écartement des pièges à détentes latérales et arrières. Nous remarquons également sur ces radiographies que la déformation de la plaque en acier n'est pas négligeable (voir aussi Fig. 9.12).

Un échantillon endommagé et un échantillon sain de chaque matériau dans la capsule en téflon ont été envoyés au CEA Gramat afin d'être microtomographiés. L'organisation du transfert entre les deux établissements a pris plus de temps que prévu. Après un premier report du transport pour cause de confinement (virus de la COVID) et un deuxième report suite à une panne du véhicule habilité, les échantillons sont finalement arrivés à Gramat au début du mois d'octobre 2020.

TABLEAU 9.5 – Matrice des tirs de récupération sous choc réalisés à l'ISL. L'échantillon endommagé de chaque matériau transmis au CEA Gramat est indiqué en gras.

Référence du tir	Échantillon	Vitesse du projectile (m/s)
1	RS-RDX	827
2		827
3		Pas de mesure
4		845
5	RVI-RDX	805
6		818
7		764
8	VI-RDX	745
9		854
10		827
11		796

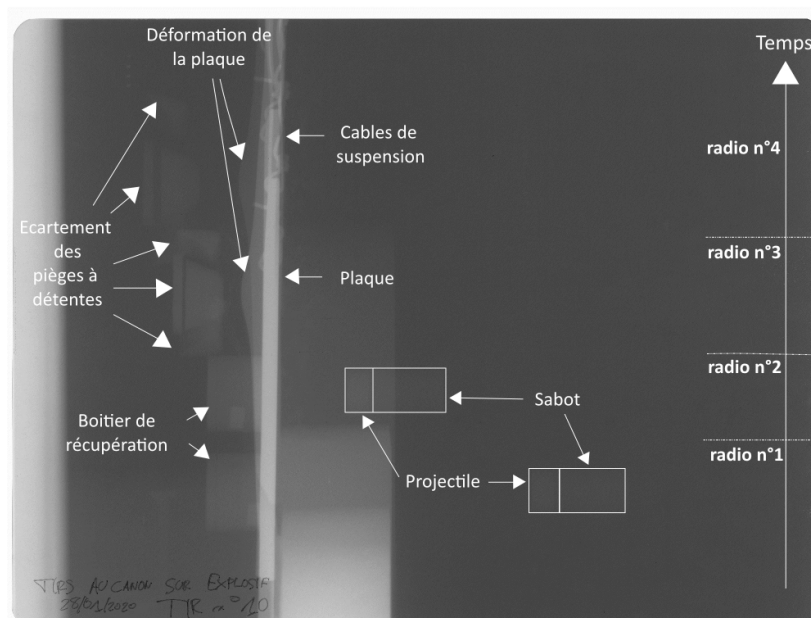
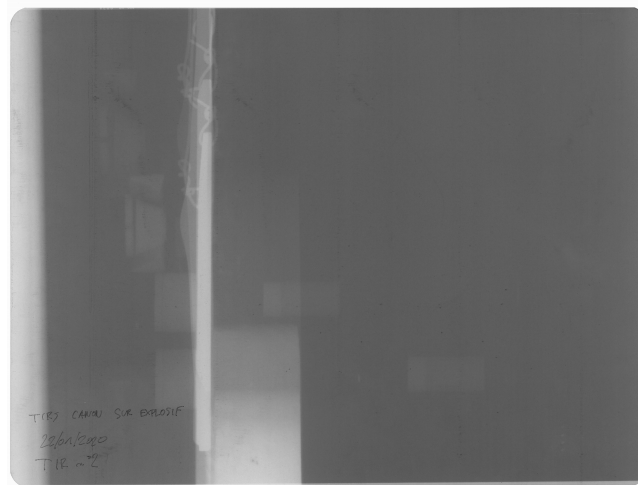
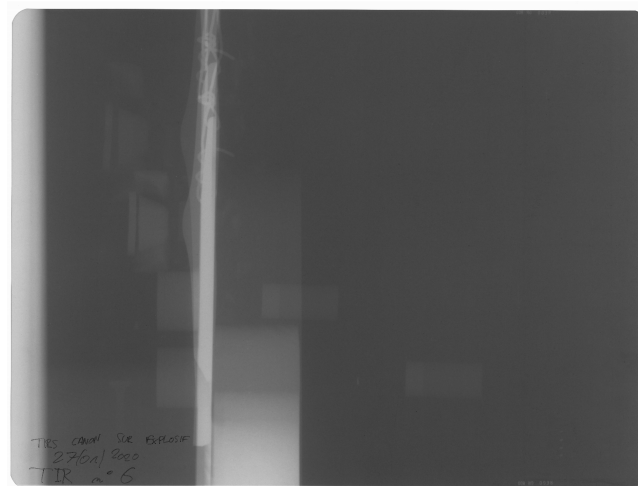


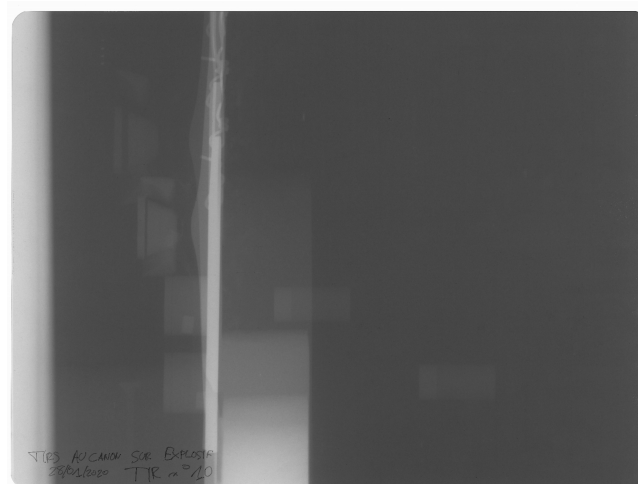
FIGURE 9.10 – Analyse de la radio du tir numéro 10



(a)



(b)



(c)

FIGURE 9.11 – Radiographies des tirs (a) numéro 2 sur l'échantillon RS-RDX/cire, (b) numéro 6 sur l'échantillon RVI-RDX/cire et (c) numéro 10 sur l'échantillon VI-RDX/cire

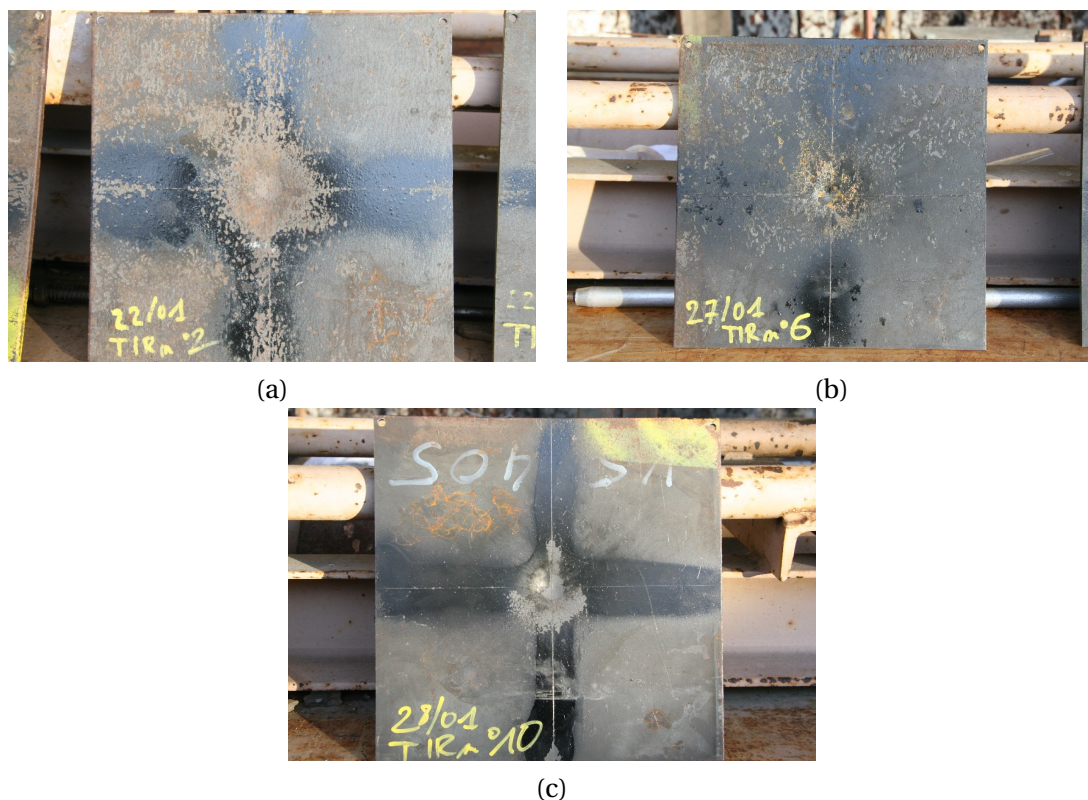


FIGURE 9.12 – Photos des plaques en acier après impact pour les tirs (a) numéro 2 sur l'échantillon RS-RDX/cire, (b) numéro 6 sur l'échantillon RVI-RDX/cire et (c) numéro 10 sur l'échantillon VI-RDX/cire

9.3 Visualisation des premiers résultats

Les six échantillons réceptionnés, un échantillon sain et un échantillon endommagé pour chacun des trois matériaux RDX/cire, sont microtomographiés. Le nouveau microtomographe Easy-Tom, décrit dans la section 5.1, est utilisé. Les échantillons d'explosifs se trouvent dans la capsule conique en téflon. Pour gagner en résolution, la capsule en téflon est polie pour supprimer une partie de la matière avec une polisseuse ROTOPOL-35 équipée d'une tête ROTOFORCE-3 de chez Struers. Le diamètre final de la partie la plus épaisse est égal à 20 mm après le polissage. Deux acquisitions sont réalisées sur chaque échantillon :

- la première avec le générateur micro foyer à tube scellé : l'ensemble du cylindre d'explosif est visualisé sur une image 3D d'environ $1500 \times 1500 \times 1350$ voxels avec une résolution de $6 \mu\text{m}/\text{voxel}$;
- la seconde avec le générateur nano foyer à tube ouvert : une zone située au centre de l'explosif, dans la zone où le choc est plan, de $1800 \times 1800 \times 1300$ voxels avec une résolution de $2 \mu\text{m}/\text{voxel}$ est visualisée.

Les microtomographies présentées dans ce chapitre sont également disponibles en annexe C en plus grande taille.

Le traitement d'images sur les microtomographies des matériaux endommagés est encore en cours. Nous n'effectuerons ici que des observations qualitatives.

Des coupes extraites des microtomographies des matériaux sains sont présentées sur les figures 9.14, 9.15 et 9.16. Les coupes sélectionnées se situent, dans le plan perpendiculaire à la direction du choc, à environ 3 mm de la face d'entrée du choc et, dans le plan parallèle au front de choc, à environ 3 mm du bord du cylindre (Fig. 9.13). Un filtre médian de taille 2 est appliqué sur

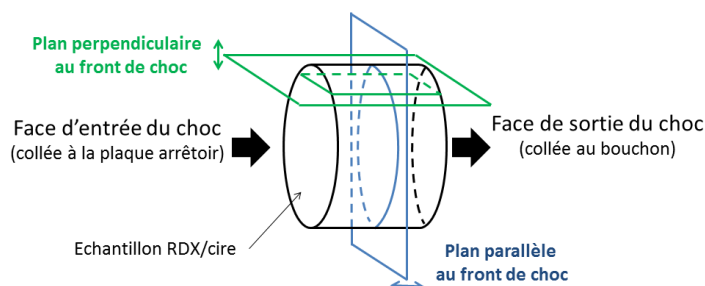


FIGURE 9.13 – Visualisation de l'orientation des plans de coupe

les coupes dont la résolution est de $6\ \mu\text{m}/\text{voxel}$ (Fig. 9.14 et Fig. 9.15) pour réduire le bruit. Un filtre médian de taille 3 est appliqué sur les coupes verticales dont la résolution est de $2\ \mu\text{m}/\text{voxel}$ (Fig. 9.16).

Étonnamment, l'analyse des microtomographies des échantillons sains révèle que quelques grains sont fissurés. Nous conseillons aux lecteurs de se référer à l'annexe C pour mieux visualiser ces fissures. Elles sont généralement verticales, c'est à dire dans la hauteur de l'échantillon, (Fig. 9.15) et se situent le plus souvent dans les grains proches des parois de la capsule. Nous remarquons également que les grains de RVI-RDX et VI-RDX endommagés ont souvent des formes allongées. Les fissures se forment alors dans des plans normaux au premier axe d'inertie du grain (axe de la longueur de la boîte minimale orientée). La microtomographie ne donne pas d'informations sur les orientations cristallines, mais les plans de fissuration sont probablement les plans de dislocation cristallographique privilégiés. Enfin, les fissures semblent plus nombreuses dans les grains de RS-RDX (Fig. C.7, et Fig. C.1) que dans les grains de RVI-RDX et de VI-RDX.

Ce type de fissure est quasiment inexistant dans les premiers échantillons étudiés dans les chapitres 5 et 6. Quatre hypothèses ont été émises pour expliquer leur présence dans ces échantillons sains. La première hypothèse est que l'endommagement des grains a lieu dès la fabrication de l'échantillon, lors de la mise en forme. L'ISL a prévu, dans les prochains mois, de contrôler des échantillons fabriqués de la même manière. La deuxième hypothèse est que l'endommagement des grains s'est produit lors de la mise en place de l'échantillon dans le boîtier. Ce dernier serait comprimé lors du vissage du bouchon. Cette hypothèse est peu probable étant donné que la force de serrage n'est pas très importante et que le téflon est un matériau plutôt « mou ». La troisième hypothèse est que l'endommagement est lié à la variation de température pendant les phases de stockage et de transport des échantillons. Le coefficient de dilatation thermique linéaire du téflon est égal à $124.10^{-6}\ \text{K}^{-1}$, tandis que les coefficients de dilatation de la cire et du RDX sont environ de $307.10^{-6}\ \text{K}^{-1}$ et de $50.10^{-6}\ \text{K}^{-1}$ à température ambiante. Une diminution de la température entraîne une contraction de la capsule en téflon, ce qui pourrait générer une surpression dans l'échantillon. Toutefois, la présence du liant, très souple, devrait permettre de limiter ce phénomène. La dernière supposition est que l'opération de polissage, avec une augmentation de température rapide, soit responsable de l'endommagement de l'échantillon.

Les coupes extraites des microtomographies des échantillons choqués sont disponibles sur les figures 9.17, 9.18 et 9.19. Les coupes dans le plan parallèle au front de choc sont sélectionnées se situent à environ 1,5 mm de la face d'entrée du choc, où il est encore plan (Fig. 9.17). Comme pour les échantillons sains, les coupes dans le plan perpendiculaire au front de choc se situent à environ 3 mm du bord du cylindre (Fig. 9.18). Un filtre médian de taille 1 est appliqué sur les coupes dont la résolution est de $6\ \mu\text{m}/\text{voxel}$ (Fig. 9.17 et Fig. 9.18). Un filtre médian de taille 2 est appliqué sur les coupes verticales dont la résolution est de $2\ \mu\text{m}/\text{voxel}$ (Fig. 9.19).

L'endommagement de la capsule en téflon est visible sur les figures 9.17 et 9.18. Des fissures apparaissent dans le téflon (anneau externe plus clair) sur les coupes horizontales (Fig. 9.17). Tou-

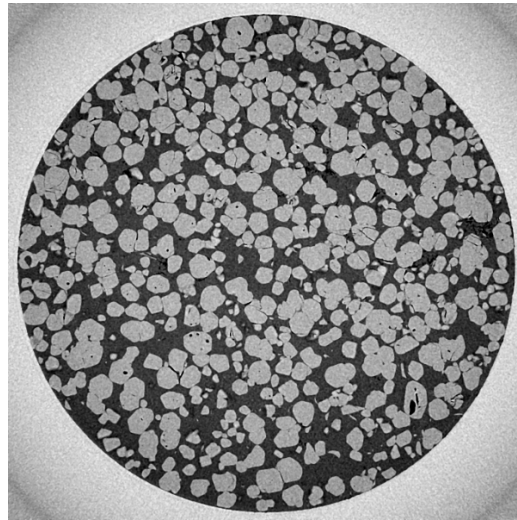
tefois, une incertitude demeure car ces fissures ont pu être causées par le choc ou par le polissage. La figure 9.18 montre la compression de la capsule et de l'échantillon. En mesurant le diamètre des échantillons sur les coupes horizontales et la hauteur des échantillons sur les coupes verticales, nous calculons les nouvelles dimensions de l'échantillon. Les échantillons passent d'une hauteur de 8 mm à environ 5,7 mm et d'un diamètre de 8 mm à environ 9,8 mm.

Nous remarquons ensuite sur la figure 9.18 que le liant et les grains se sont déplacés, suite au choc, pour se loger dans l'espace entre le filetage du bouchon et la capsule. Ce déplacement de matière entraîne la création de larges bandes de décohésion générant de la porosité extra-granulaire près du bouchon. Les interactions des ondes de choc dans l'échantillon, dans cette zone où le choc n'est probablement plus plan, peuvent également jouer un rôle. La bande de décohésion est observée sur les trois matériaux, ce qui indique que la sollicitation subie par les trois matériaux est similaire, et que les expériences de récupération sous choc sont reproductibles.

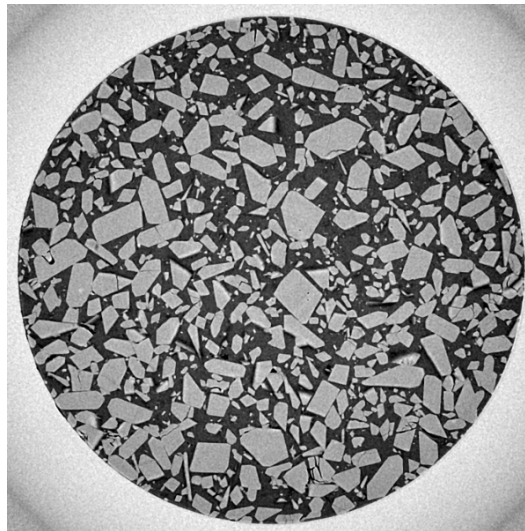
En s'intéressant sur la figure 9.18 à la zone derrière le bouchon et au centre de l'échantillon (zone où le choc est plan), nous remarquons que certains grains sont entièrement fracturés, tandis que d'autres restent intègres. Cette différence d'endommagement entre des grains adjacents pourrait être liée à la taille, à la forme ou encore à l'orientation des grains.

Les figures 9.18 et 9.19 semblent indiquer que les grains de RS-RDX sont plus fragiles que les grains de RVI-RDX et de VI-RDX, car plus endommagés par le passage de l'onde de choc. Quasi-tous les grains de RS-RDX sont fissurés alors que de nombreux grains de RVI-RDX et de VI-RDX restent intègres. Après une observation plus attentive de différentes microtomographies du RS-RDX/cire, nous remarquons que les fissures apparaissent souvent aux joints des macles. Dans les trois matériaux, aucune direction de fissuration privilégiée dans les grains ne se démarque. L'orientation des fissures semble plutôt liée à l'orientation des grains. Nous remarquons également qu'il est courant de trouver plusieurs fissures parallèles entre elles dans un même grain lié à l'orientation cristalline.

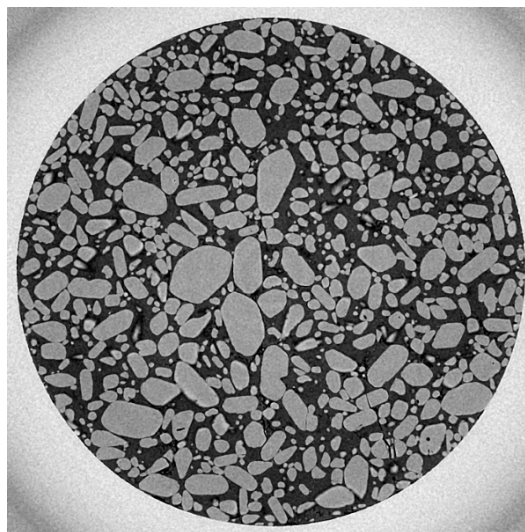
Enfin, la figure 9.19 souligne l'importance de la décohésion entre le liant et les grains. La porosité extra-granulaire est un paramètre qui a été identifié comme influençant la sensibilité au choc des matériaux énergétiques (Sec. 1.3.3), il serait donc intéressant de quantifier le volume de porosité extra-granulaire introduit par le passage d'une onde de choc.



(a)

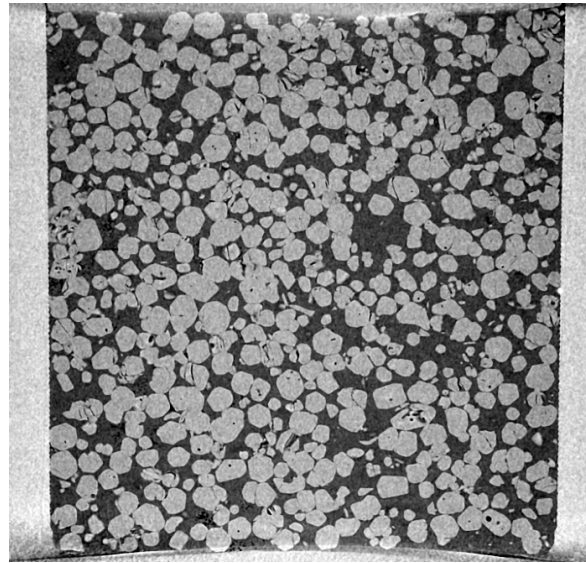


(b)

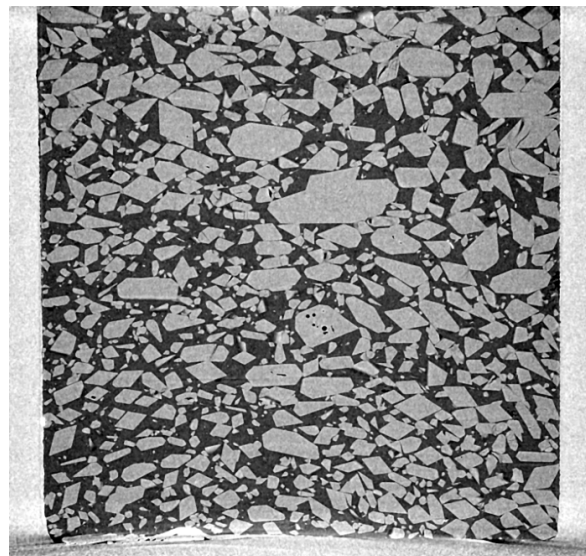


(c)

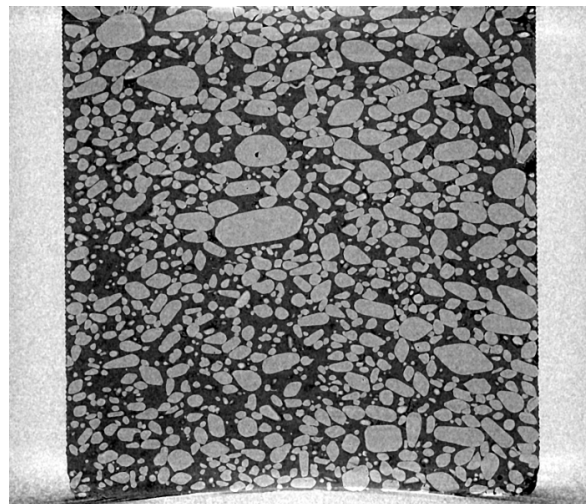
FIGURE 9.14 – Coupes horizontales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de $6\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons sains de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm de la face d'entrée du choc.



(a)

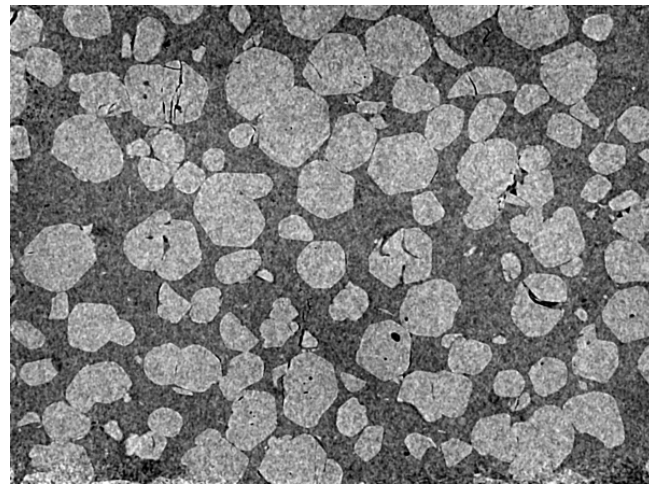


(b)



(c)

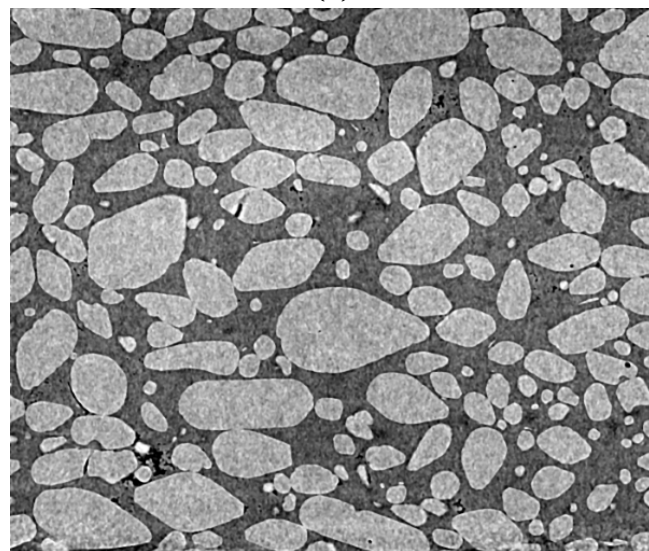
FIGURE 9.15 – Coupes verticales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de $6\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons sains de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm du bord de la capsule.



(a)

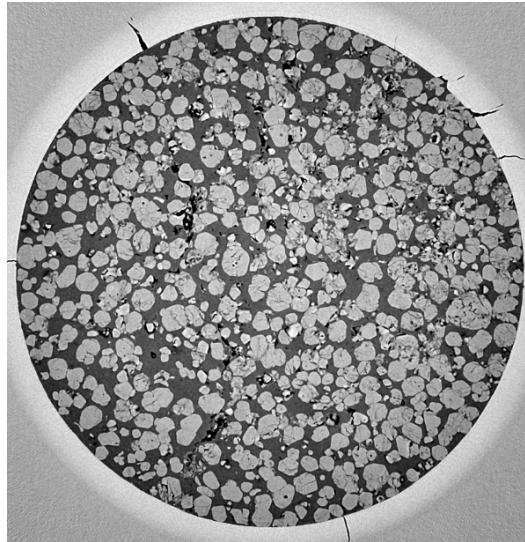


(b)

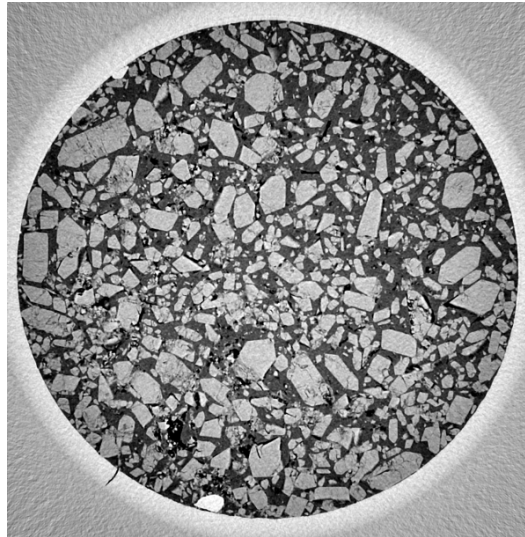


(c)

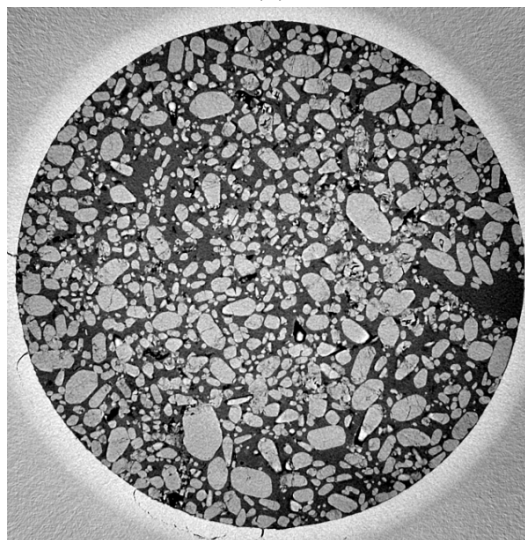
FIGURE 9.16 – Coupes verticales extraites des microtomographies en région d'intérêt (résolution de $2\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons sains des matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire



(a)

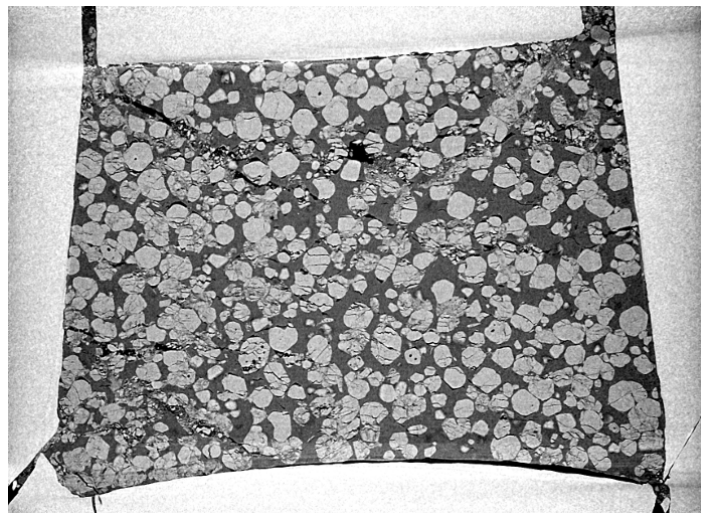


(b)

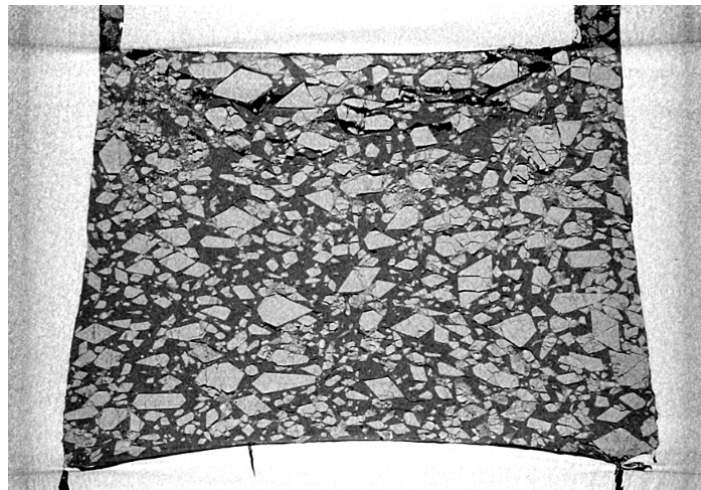


(c)

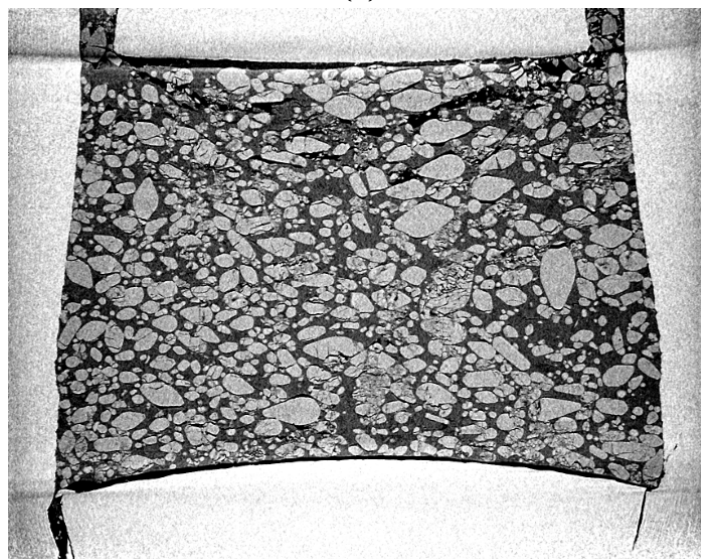
FIGURE 9.17 – Coupes horizontales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de $6\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons endommagés de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 1,5 mm de la face d'entrée du choc.



(a)

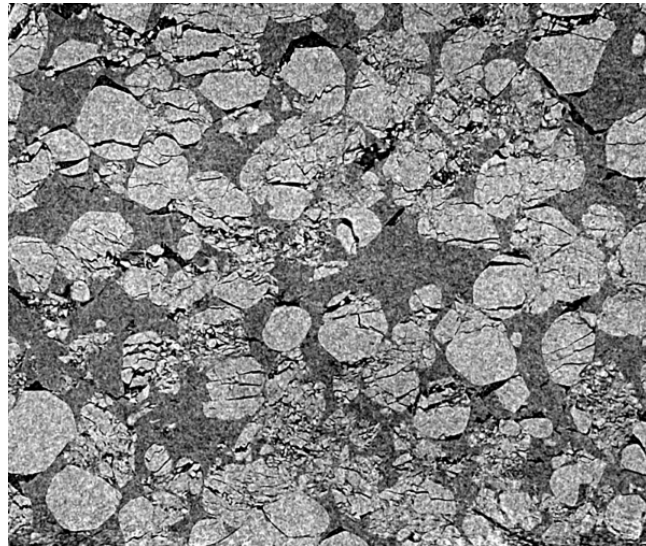


(b)

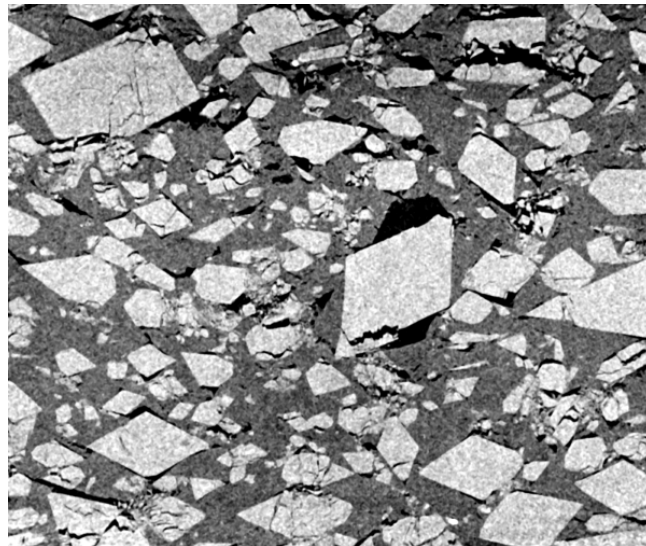


(c)

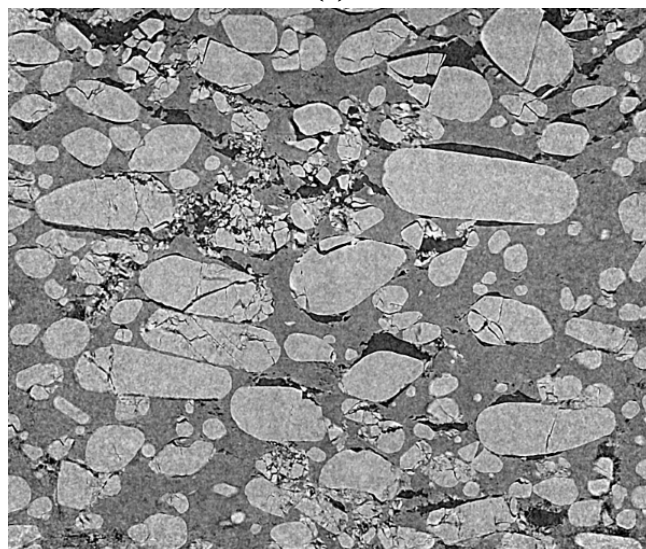
FIGURE 9.18 – Coupes verticales extraites des microtomographies en champ complet (résolution de $6\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons endommagés de (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire. Les coupes sont extraites à environ 3 mm du bord de la capsule



(a)



(c)



(e)

FIGURE 9.19 – Coupes verticales extraites des microtomographies en région d'intérêt (résolution de $2\mu\text{m}/\text{voxel}$) des échantillons endommagés des matériaux : (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire

9.4 Conclusions et perspectives

Des expériences de récupération sous choc ont été mises au point et réalisées à l'ISL. Ces expériences ont permis de récupérer avec succès un échantillon de chaque matériau, impacté sous le seuil d'amorçage à environ 1 GPa. Un échantillon sain et un échantillon endommagé ont été microtomographiés au CEA Gramat. Une première analyse visuelle des microtomographies a permis la mise en évidence :

- d'un léger endommagement inattendu des matériaux sains, avec des grains fissurés. Des analyses seront réalisées pour identifier l'origine de cet endommagement ;
- de l'importance de la fracturation des grains après le passage d'une onde de choc d'une pression inférieure à 1 GPa. Nous rappelons que la pression du choc conduisant à la détonation pour les matériaux à base de RS-RDX et de RVI-RDX est environ égale à 6,2 GPa, et que celle pour les matériaux à base de VI-RDX est environ égale à 7,2 GPa ;
- de l'importance de la décohérence entre le liant et les grains après le passage d'une onde de choc, ce qui introduit de la porosité extra-granulaire ;
- de la plus grande fragilité des grains de RS-RDX, qui apparaissent plus fissurés que les grains de RVI-RDX et de VI-RDX. Le maillage des grains de RS-RDX est certainement en partie responsable de cette plus grande fragilité.

Ces observations sont actuellement qualitatives. Une étude plus quantitative pourra être réalisée dès lors que les échantillons endommagés seront segmentés.

Les premiers résultats obtenus suite aux expériences de récupération sont très encourageants. Nous proposons quelques pistes d'amélioration pour des travaux futurs. Le premier point est l'identification de la cause de l'endommagement des grains dans les matériaux sains. Différentes pistes ont été proposées et seront vérifiées avant la réalisation de nouveaux tirs. Actuellement, nous ne connaissons pas précisément la sollicitation que subit un échantillon lors d'une expérience de récupération sous choc. Pour mieux connaître la sollicitation, de nouveaux outils d'instrumentation pourraient être mis en place pour mesurer les vitesses matérielles au passage de l'onde de choc (par interférométrie) ou la vitesse de l'onde de choc (capteurs de court-circuit, fibre de Bragg). La mise en place de nouveaux moyens de mesure est complexe et demande un effort important, mais elle permettra de mieux définir ce que subit l'échantillon au cours de l'expérience. Le dernier point d'amélioration porte sur les microtomographies. De nouvelles acquisitions devraient être réalisées afin d'améliorer la résolution et la qualité des images.

Une exploitation des microtomographies des matériaux endommagés, pour permettre une analyse quantitative doit être réalisée. Le code de segmentation SAMG permet d'identifier les différents fragments d'un grain fracturé et de leur affecter le même label. Cette option du logiciel permettra de constituer une bibliothèque de grains de RDX endommagés, et d'étudier l'influence de la microstructure sur la fissuration des grains en calculant la position, l'orientation ou encore le nombre de fissures. La méthodologie développée dans les chapitres 5 et 6 pourra être réutilisée pour caractériser les microstructures endommagées segmentées.

Conclusions

L'ISL a travaillé sur la cristallisation des grains de RDX pour réduire les défauts intra-granulaires. Le processus s'effectue à partir de grains de RS-RDX. Ces grains ont une forme arrondie, sont souvent maclés, et présentent de nombreux défauts intra-granulaires comme des pores, des inclusions de solvant ou encore des microfissures. Une recristallisation des grains de RS-RDX avec un procédé spécifique et dédié permet d'obtenir le RVI-RDX, avec quasiment aucun défaut intra-granulaire mais des formes anguleuses. Après une dernière étape de traitement de surface, les grains de VI-RDX [226], avec peu de défauts intra-granulaires et des formes arrondies sont obtenus. Pour quantifier la variation de sensibilité entre les trois types de RDX, des hexocires (70:30 en masse) ont été fabriquées avec chaque type de grains. Le taux élevé de cire permet de faciliter l'analyse en limitant les contacts entre les grains, ce qui rend la segmentation des microtomographies plus aisée. Des expériences d'impact par petits projectiles ont été réalisées à l'ISL, en amont de cette étude, sur les trois hexocires pour déterminer leur seuil d'amorçage en détonation. Les expériences ont révélé que les trois matériaux ont des seuils de détonation différents, et donc des sensibilités au choc différentes. Les matériaux à base de RS-RDX et de RVI-RDX détonent tous deux pour des pressions d'environ 6,2 GPa, tandis que le matériau à base de VI-RDX détone à une pression d'environ 7,2 GPa. Au cours du travail entrepris dans le cadre de cette thèse, nous avons cherché à mieux comprendre le rôle de certains paramètres microstructuraux sur la sensibilité au choc de ces matériaux énergétiques. Pour cela, nous avons dans un premier temps cherché à caractériser les microstructures à partir de microtomographies disponibles, en validant les résultats à l'aide de données expérimentales. Puis, dans un second temps, nous avons effectué des calculs par éléments finis à l'échelle mésoscopique pour déterminer la réponse des matériaux sous sollicitation dynamique.

La première étape pour atteindre cet objectif est la caractérisation détaillée des trois microstructures, afin d'identifier les paramètres morphologiques discriminants. Pour ce faire, des microtomographies de chaque matériau ont été réalisées au CEA Gramat. Pour chacun des trois matériaux, quatre volumes de 1000^3 voxels, soit d'environ $3,5^3 \text{ mm}^3$, sont extraits des microtomographies (Chap. 5). Le logiciel SAMG, développé lors d'une thèse au CMM par T. Chabardès [172] à la suite des travaux de G. Contesse [24], est utilisé pour filtrer et segmenter les différents volumes. Un premier contrôle des volumes segmentés a pour but de vérifier que ces derniers sont suffisamment grands pour être représentatifs de l'ensemble de la microstructure. Pour ce faire, nous calculons l'erreur relative sur la fraction volumique de grains. L'erreur relative maximale est de 1,50 %, ce qui est considéré comme acceptable pour notre étude. La taille des volumes segmentés est donc validée. Le deuxième contrôle estime la fiabilité des segmentations en comparant des mesures expérimentales avec des mesures effectuées sur les images segmentées. Nous comparons ainsi les distributions de diamètres et les distributions de densité des grains de RDX. Ces comparaisons sont toutes les deux satisfaisantes. L'étude des distributions de densité de grains est particulièrement intéressante, car elle permet de déterminer la fraction volumique des défauts intra-granulaires. La combinaison des données expérimentales et de l'analyse d'images fournit une meilleure estimation de ce volume. En effet, par analyse d'images, les plus petits défauts ne sont pas détectés car la résolution du microtomographe est insuffisante. La microtomographie permet, en revanche, d'accéder à la densité des grains contenant le plus de défauts intra-granulaires, ce qui n'est pas le cas du dispositif expérimental. De plus, la comparaison entre les distributions des densités obtenues

expérimentalement et par traitement d'images a permis de mettre en évidence le fait que les cavités dans les grains sont très probablement remplies d'un solvant saturé de RDX plutôt que d'air. Cette observation est cohérente avec des mesures expérimentales réalisées par Borne *et al.* [71].

Les volumes segmentés étant validés, ils sont ensuite caractérisés pour identifier les différences et les similarités entre les trois microstructures (Chap. 6). Cette caractérisation se fait à deux échelles. La première échelle est celle de la microstructure avec des mesures permettant de quantifier la répartition des grains dans le volume (avec la covariance spatiale et la connectivité), la taille des grains et des zones de liant (avec la granulométrie par ouverture des grains et du liant) et la réponse élastique à une compression hydrostatique (avec le calcul du module de compressibilité par simulations FFT). Ces mesures révèlent que les covariances spatiales des trois matériaux sont identiques. En revanche, des différences sont observées sur les granulométries, les modules de compressibilité et les connectivités. La deuxième échelle de caractérisation est celle du grain. Chaque grain labellisé est extrait et caractérisé avec une série de descripteurs (volume, surface, diamètre...) pour former une bibliothèque de grains. Un nouveau descripteur est développé pour décrire l'angularité des grains. Au total, 18 descripteurs sont déterminés pour chacun des grains de RDX. Une analyse statistique a permis d'identifier les 6 descripteurs les plus pertinents pour décrire et faire la distinction entre les trois types de grains : la longueur L de la boîte minimale englobante, les indices de sphéricité définis de quatre manières différentes, notre nouvel indice d'angularité et le nombre de défauts intra-granulaires dans chaque grain.

La caractérisation de la microstructure des trois matériaux a mis en évidence leur complexité, et la corrélation de nombreux paramètres microstructuraux. Il n'est, par exemple, pas possible d'étudier l'influence de la forme des grains directement sur les microtomographies, car en plus d'une différence de forme il existe une différence de taille entre les trois matériaux. Pour espérer identifier l'influence d'un paramètre microstructural précis, il faut donc travailler sur des microstructures idéales. Un code Fortran a donc été développé au cours de la thèse pour générer des modèles, représentatifs des matériaux réels, à partir de la bibliothèque de grains (Chap. 7). En sélectionnant les grains à implanter dans le modèle selon leurs descripteurs, il est possible de contrôler certains paramètres microstructuraux. La représentativité des modèles est vérifiée en calculant la covariance spatiale, la granulométrie par ouverture et la réponse élastique à une compression hydrostatique. Ces mesures sont ensuite comparées avec celles obtenues sur les matériaux réels. La covariance spatiale et les granulométries des matériaux réels sont correctement reproduites. Nous sommes également parvenus à reproduire, avec nos modèles, les distributions locales du champ des contraintes moyennes pour la réponse élastique à une compression hydrostatique en ajustant le nombre et les surfaces de contact entre les grains. Ce résultat a permis de confirmer le lien, déjà pressenti lors de la caractérisation des matériaux à l'échelle de la microstructure, entre la connectivité et les surfaces de contact entre les grains avec la rigidité d'un matériau à une compression hydrostatique. Plus le nombre de contacts et les surfaces de contact entre les grains sont importants, plus le matériau est rigide. Ce phénomène est certainement d'autant plus marqué sur des compositions classiques, avec des taux de liant compris entre 4 et 25 % donc des connectivités bien plus importante que dans nos matériaux d'étude.

Enfin des premières simulations numériques dynamiques sont réalisées à l'échelle mésoscopique (Chap. 8). Ces premières simulations cherchent à vérifier si, avec les outils actuels, nous sommes capables de retrouver les mêmes tendances de sensibilité au choc que celles obtenues expérimentalement par l'ISL. Les simulations indiquent que les points chauds se forment préférentiellement autour des porosités intra-granulaires et des points de contact entre les grains. Une différence en termes de points chauds est donc bien observée entre les matériaux à base de RS-RDX et de VI-RDX, car les grains de RS-RDX contiennent davantage de défauts intra-granulaires. En revanche, aucune différence significative n'est observée entre les grains de RVI-RDX et de VI-RDX. Deux explications sont proposées pour justifier ce phénomène. La première explication est que la méthode d'exploitation et de comparaison des simulations numériques, sur la base de distributions de pression et de température, n'est pas adaptée. Une distribution est une mesure globale qui ne permet pas de mesurer des variations locales de pression ou de température. Si le

matériau RVI-RDX/cire est plus sensible que le matériau VI-RDX/cire, il est probable que cette différence ne soit pas observable avec les distributions. La deuxième explication est que la modélisation des matériaux n'est, actuellement, pas suffisamment physique pour permettre de détecter des différences de sensibilité entre les trois matériaux. En effet, des limitations importantes sur la modélisation des matériaux (choix des équations d'état, choix des lois de comportement) et de certains phénomènes physiques (absence de friction, pas de décohésion entre les grains et le liant) persistent.

Une première option pour améliorer la représentativité des simulations numériques est l'intégration de critères d'endommagement des grains. Des expériences de récupération sous choc ont été mises au point et réalisées à l'ISL au cours de la thèse (Chap. 9). Elles ont permis de récupérer avec succès, pour chaque matériau, un échantillon endommagé par un choc plan, et d'en réaliser des microtomographies. Seules des observations visuelles qualitatives sur les microtomographies des matériaux endommagés ont pour l'instant été réalisées. Ces premières observations ont mis en évidence :

- l'importance de la fracturation des grains après le passage d'une onde de choc d'une pression inférieure à 1 GPa (largement inférieure à la pression d'amorçage de la détonation) ;
- l'importance de la décohésion entre le liant et les grains qui introduit une porosité extra-granulaire ;
- la plus grande fragilité des grains de RS-RDX qui apparaissent plus fissurés que les grains de RVI-RDX et de VI-RDX.

La problématique de la thèse était d'identifier et de quantifier l'influence des paramètres microstructuraux sur la formation des points chauds. La porosité intra-granulaire est identifiée comme le paramètre microstructural majeur influençant la sensibilité au choc d'un explosif. Ce résultat est conforme à des études expérimentales [73, 74] et à plusieurs études numériques [63, 135, 141]. Notre étude montre également que les points de contact, ou zones de proximité, entre les grains semblent également jouer un rôle dans la formation des points chauds.

Des outils fonctionnels ont été développés et mis en place pour étudier l'influence d'autres paramètres microstructuraux, comme par exemple la forme ou la distribution de taille des grains. Ces outils sont :

- le logiciel de segmentation SAMG [172] qui a été testé et validé en comparant des mesures expérimentales avec des mesures obtenues sur les images segmentées ;
- une bibliothèque de grains de RDX contenant plus de 60 000 grains. Chaque grain de cette bibliothèque est caractérisé avec une série de descripteurs géométriques dont un nouvel indice d'angularité développé au cours de cette thèse ;
- un code de génération de microstructures virtuelles qui permet, à partir d'une distribution de taille donnée et de la bibliothèque de grains de générer des modèles avec des propriétés microstructurales contrôlées. Ces modèles sont représentatifs des matériaux réels et, dès lors que la connectivité entre les grains est ajustée, ils reproduisent les distributions locales des contraintes du matériau réel sous une compression hydrostatique.

Des clés pour améliorer les simulations numériques sont également fournies, car des microtomographies d'échantillons endommagés par un choc plan sont disponibles pour les trois matériaux. L'étude quantitative de ces microtomographies devrait permettre d'identifier les modes d'endommagement préférentiels et l'influence de la microstructure sur ces modes d'endommagement.

Pour clôturer cette conclusion, les principaux résultats novateurs obtenus lors de la thèse sont :

- la détermination d'une distribution de densité apparente d'un lot de particules avec, pour la première fois, une autre méthode que la mesure expérimentale de flottation de l'ISL. La comparaison entre les expériences et les résultats du traitement d'images permet d'obtenir une estimation plus précise du volume de défauts intra-granulaires, ainsi que du contenu des cavités (solvant saturé de RDX) ;

- la démonstration de l'importance de la connectivité et des surfaces de contact entre les grains dans la réponse élastique à une compression hydrostatique d'un matériau;
- la construction d'un nouvel indice d'angularité;
- l'endommagement des grains de RS-RDX, suite à un choc, plus important que celui des grains de RVI-RDX et de VI-RDX.

Perspectives

Il est envisagé de poursuivre les travaux menés durant cette thèse suivant trois principaux axes.

Amélioration des outils existants

La première perspective consiste en l'amélioration et la généralisation des outils développés lors de la thèse. Le logiciel de segmentation a fait ses preuves sur nos matériaux fabriqués spécifiquement pour étudier l'influence de certains paramètres microstructuraux. Nos matériaux d'étude sont donc peu chargés en grains, et ont un contraste de phase important sur les microtomographies. Il serait intéressant de tester le logiciel de segmentation sur des matériaux réels plus complexes, avec moins de contraste et davantage de phases, et de contrôler les résultats en effectuant une comparaison avec des mesures expérimentales. Sur ces matériaux plus complexes, les nouvelles méthodes de segmentation s'appuyant sur l'apprentissage automatique seront certainement plus efficaces. Un réseau de neurones à convolution avec une architecture appelée *U-net* [298] a fait ses preuves sur des images biomédicales. Une architecture similaire pourrait être utilisée pour développer un nouvel outil de segmentation de milieux granulaires. La généralisation des outils de segmentation permettraient une exploitation quantitative plus systématique des microtomographies, qui, bien souvent ne se fait encore que visuellement. Enfin, la segmentation d'autres types de matériaux serait l'occasion d'alimenter la bibliothèque de grains avec d'autres types de matériaux.

Le deuxième outil qui peut être optimisé est le code Fortran permettant de générer de nouvelles microstructures. La génération de modèles avec des grains de formes concaves ou avec des distributions de taille de grains étroites est actuellement compliquée. Une suggestion pour améliorer ce code est l'introduction d'une rotation pour mettre les grains en contact (ou à une distance égale à la répulsion) en deux points. La rotation permettrait de réduire l'encombrement à l'ajout de chaque grain, et ainsi de libérer plus d'espace pour permettre le placement d'autres grains. Les temps de calcul étant encore très long, il serait également intéressant d'étudier les possibilités de parallélisation. Nous rappelons que le code est adapté pour générer des microstructures avec des fractions volumiques de grains maximales d'environ 65 %. Pour atteindre des fractions volumiques plus élevées, l'ajout d'une étape de permutations aléatoires (voir Sec. 2.2) comme dans les travaux de Kim *et al.* [52, 53] sera nécessaire.

Expériences de récupération sous choc

La deuxième perspective concerne les expériences de récupération sous choc. Pour l'instant, seules des observations visuelles ont été réalisées sur les microtomographies des matériaux endommagés. Pour obtenir des informations quantitatives sur l'endommagement des trois types de grains, les microtomographies doivent être segmentées. Une dépendance du logiciel SAMG permet d'identifier les différents fragments d'un grain fissuré et de leur affecter un label unique [22]. Cette option permettra de quantifier le nombre et l'orientation des fissures dans les grains.

Il serait également très intéressant de disposer des microtomographies du même matériau avant et après l'expérience de récupération sous choc. L'identification des grains avant et après le

choc permettrait de suivre leur déplacement et la réorganisation de la microstructure.

Nous souhaitions initialement, avec les expériences de récupération sous choc, solliciter le matériau à deux niveaux de pressions différents pour quantifier l'évolution de l'endommagement en fonction de la pression. La rupture du boîtier en téflon contenant l'explosif lorsque la pression de choc dans l'explosif dépasse 1 GPa ne nous l'a pas permis. Une nouvelle étude de conception d'expériences de récupération sous choc pourrait permettre d'atteindre cet objectif et, éventuellement, d'ajouter des instruments de mesure pour mieux connaître la sollicitation que subit l'échantillon d'explosif.

Simulations dynamiques

Enfin, les dernières perspectives concernent les simulations dynamiques à l'échelle mésoscopique. Dans un premier temps, des simulations pourraient être lancées sur les différents modèles, déjà disponibles, où seule la forme des grains (sphéricité ou convexité) varie.

Pour exploiter les résultats des simulations plus en détail (localement), nous suggérons de développer une méthode qui permet de lier les champs de température et de pression à la microstructure. Il serait alors possible d'identifier des corrélations entre la géométrie locale de la microstructure et les zones où se forment les points chauds. La principale difficulté de la mise en place de cette méthode réside dans le fait qu'il faut être capable, pour n'importe quel point de la microstructure (dans le liant ou dans les grains) et à n'importe quel temps, de retrouver sa position initiale. Il faut donc avoir accès aux champs des déformations. La solution envisagée actuellement est l'utilisation d'outils de recalage d'images qui calculent le champ des déformations entre plusieurs pas de temps.

L'objectif à plus long terme des simulations numériques mésoscopiques est l'intégration de la phase d'amorçage, contrôlée par les champs de température. Pour être prédictif, le calcul des champs de température doit donc être amélioré. Cette amélioration repose sur plusieurs aspects :

- l'utilisation d'équations d'état complexes prenant en compte la variation de la capacité calorifique à volume constant avec la température;
- l'utilisation de lois de comportement complexes prenant en compte la viscosité des liants, et l'anisotropie des grains d'explosifs;
- l'intégration de critères d'endommagement pour modéliser la fissuration des grains, la formation de bandes de cisaillement ou encore la décohésion entre les grains et le liant;
- une adaptation du coefficient de Taylor-Quinney pour chacun des matériaux.

L'introduction de ces améliorations dans un code de calcul et les caractérisations expérimentales nécessaires à la validation de ces modèles ne sont pas triviaux. Il faudra probablement ajouter de nouveaux domaines de recherche à ceux, déjà nombreux, abordés durant cette thèse

Annexe A

Détection des défauts intra-granulaires

La détection et/ou la suppression des défauts intra-granulaires est effectuée avec la fonction Python `fill_holes`. Cette méthode de détection de la porosité s'appuie sur l'opération morphologique géodésique de la dilatation. Une opération de dilatation ou d'érosion géodésique est contrainte à rester dans une certaine zone de l'image (la zone agit comme un masque). Prenons l'exemple de la figure A.1 d'un grain contenant trois cavités. Pour détecter ces trois cavités, des opérations de dilatation géodésiques successives, contraintes par la phase du liant, sont effectuées à partir des bords de l'image (Fig. A.2b-d). Lorsque la stabilité est atteinte (plus de changements dans l'image même après une nouvelle dilatation), les seules zones qui n'ont pas été atteintes par les opérations de dilatation géodésiques sont les cavités occluses (Fig. A.2d). Les cavités peuvent ensuite être labellisées (Fig. A.3).

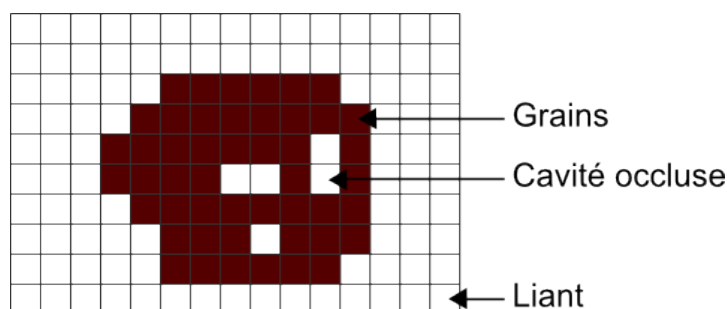


FIGURE A.1 – Exemple d'une image d'un grain contenant trois cavités

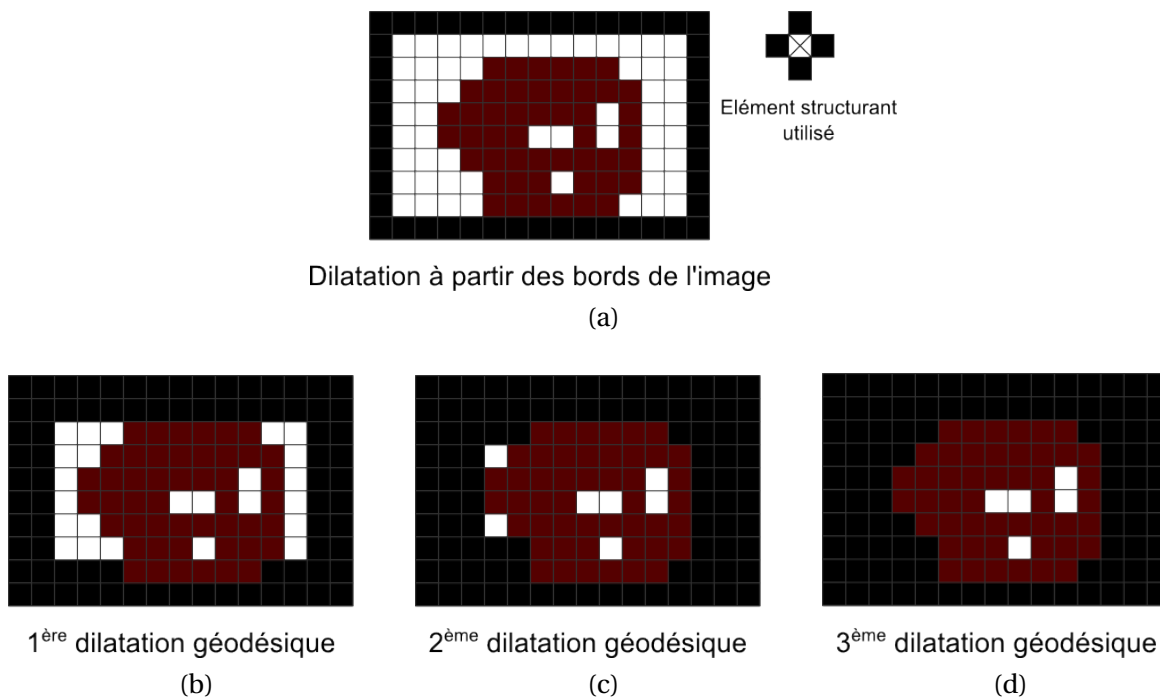


FIGURE A.2 – Étapes dans la détection des cavités avec l'opérateur `fill_holes`

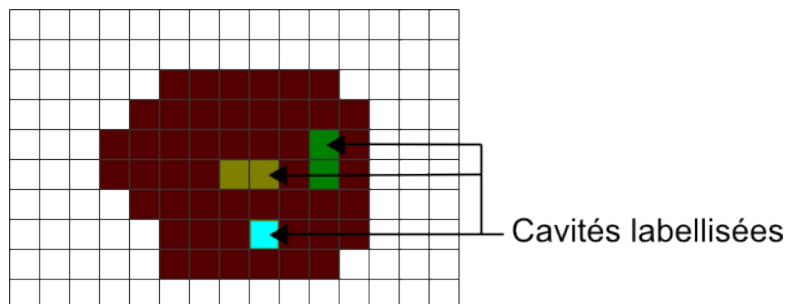


FIGURE A.3 – Identification et labélisation des cavités

Annexe B

Informations complémentaires du chapitre 8

On présente dans cette annexe des figures complémentaires au chapitre 8. Les distributions de pression et de température des matériaux à base de RS-RDX et de RVI-RDX de la section 8.3.1 sont disponibles sur les figures B.1 et B.2. Les coupes sur lesquelles sont réalisées les simulations présentées dans la section 8.3.1 sont disponibles sur la figure B.3. Les distributions de pression et de température obtenus sur les coupes de RS-RDX/cire et de RVI-RDX/cire sont présentées sur les figures B.4 et B.5.

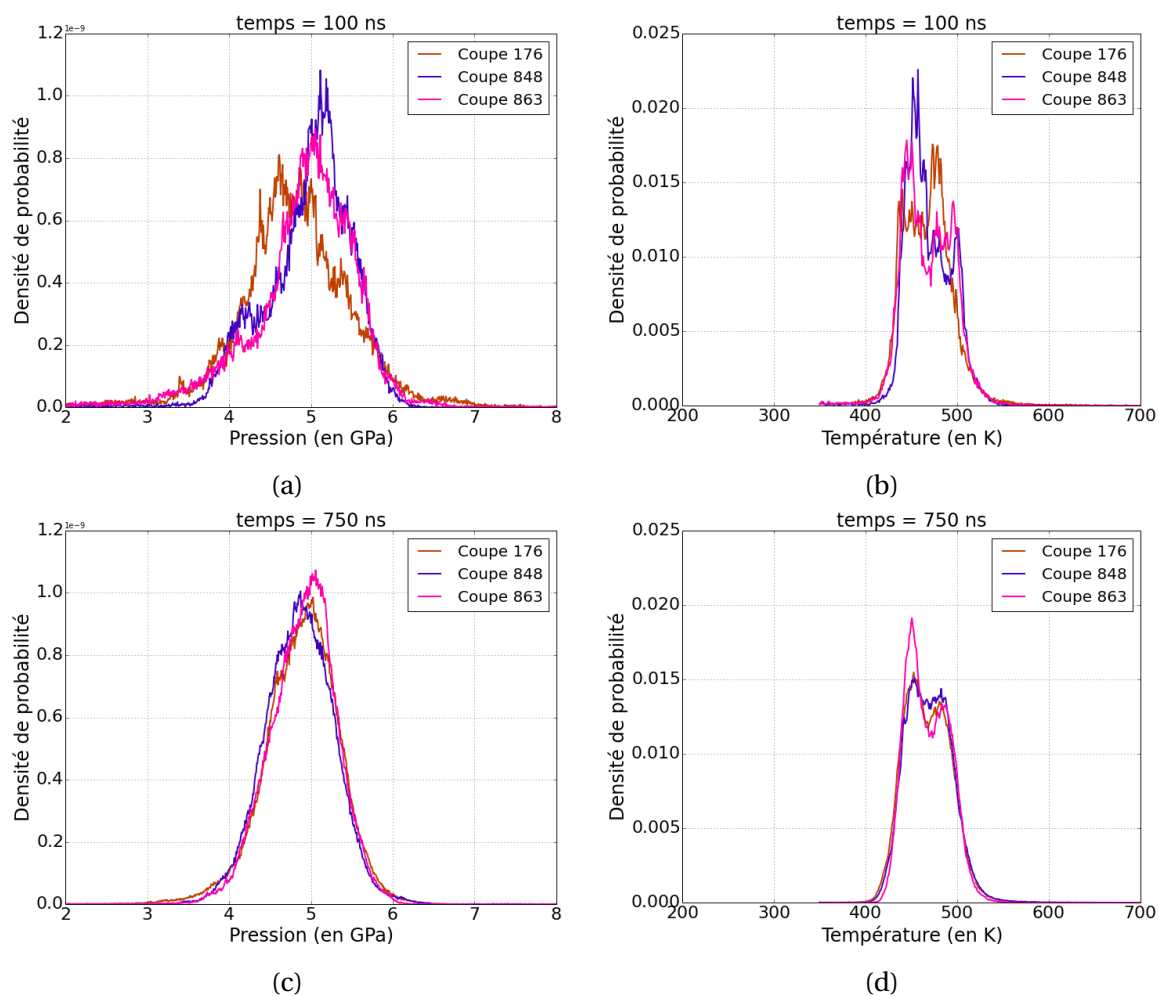


FIGURE B.1 – Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de RS-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.

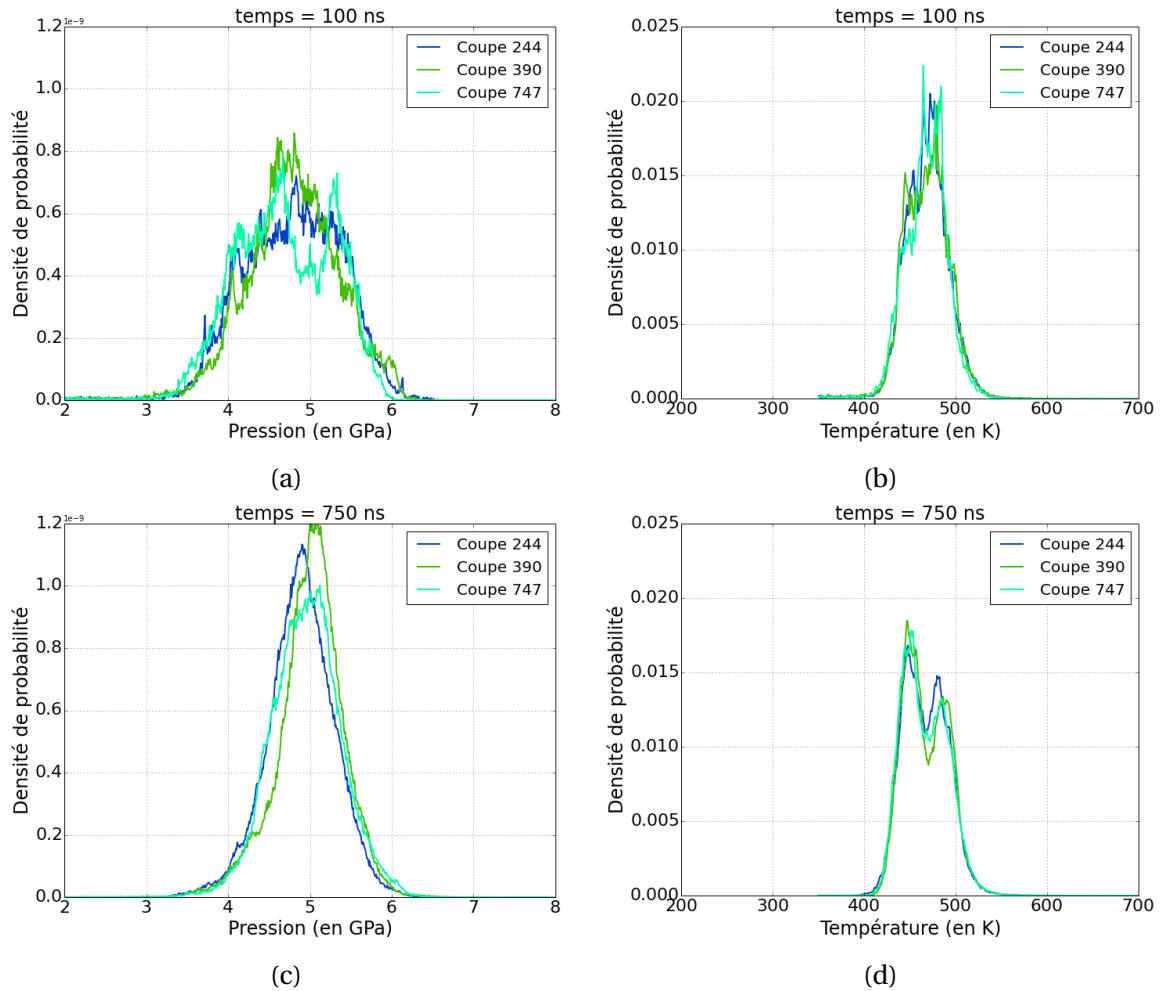


FIGURE B.2 – Distributions derrière le front de choc pour le matériau à base de RVI-RDX de la pression à (a) 100 ns et (c) 750 ns, et de la température à (b) 100 ns, (d) 750 ns.

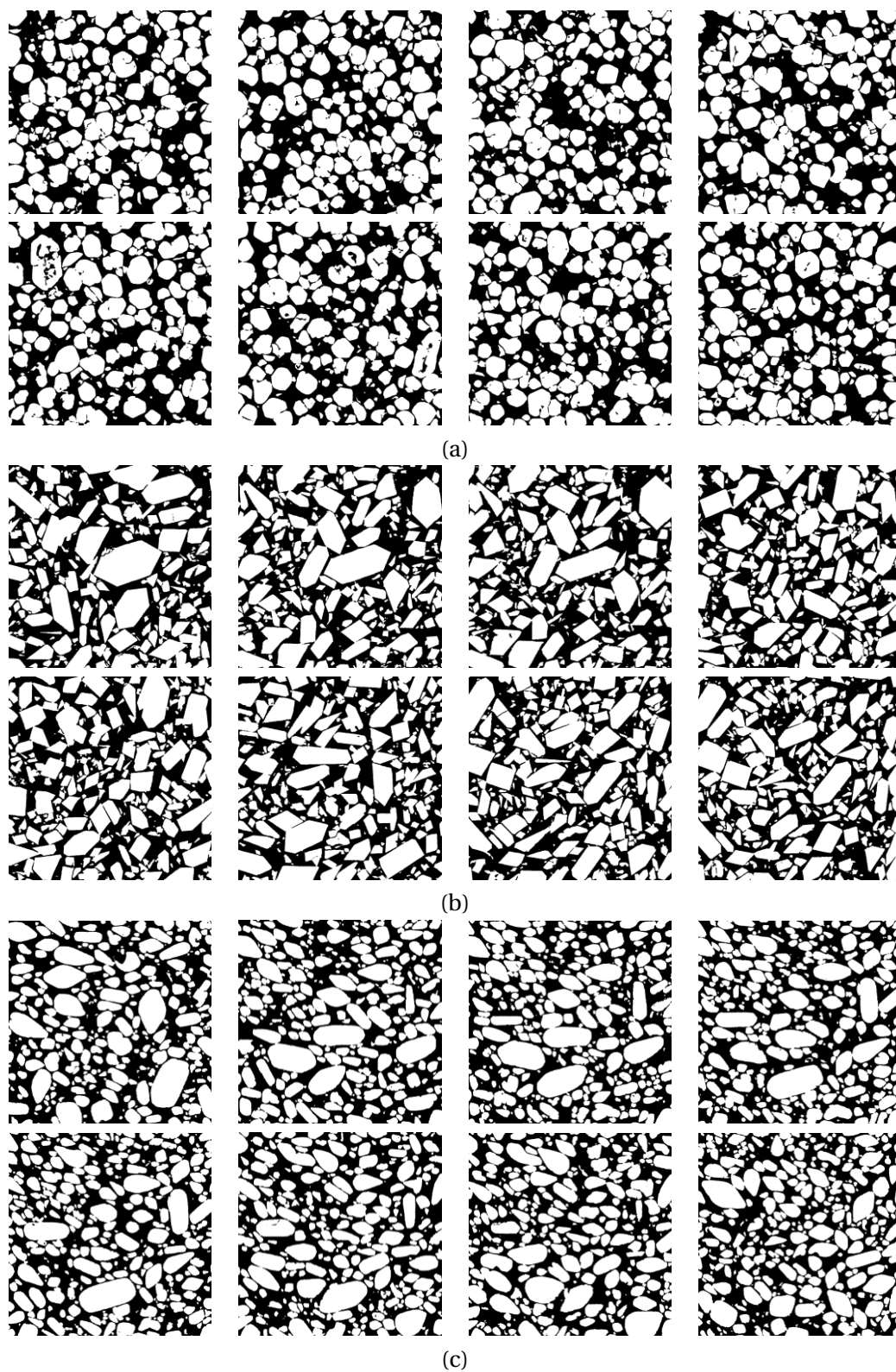


FIGURE B.3 – Huit coupes extraites des microtomographies des matériaux (a) RS-RDX/cire, (b) RVI-RDX/cire et (c) VI-RDX/cire avec une fraction surfacique de 56 %

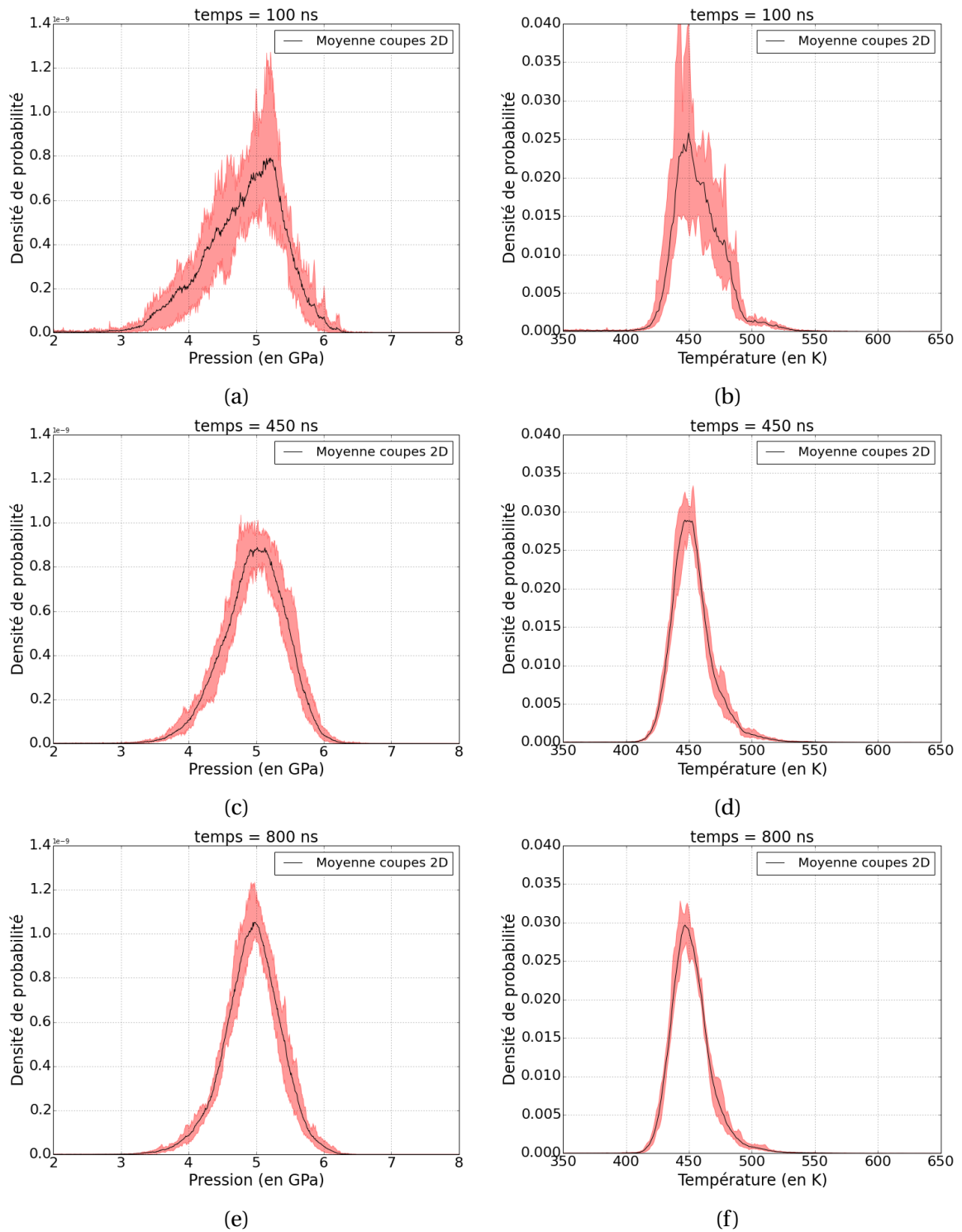


FIGURE B.4 – Enveloppe des distributions dans les grains pour le matériau à base de RS-RDX de la pression à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns

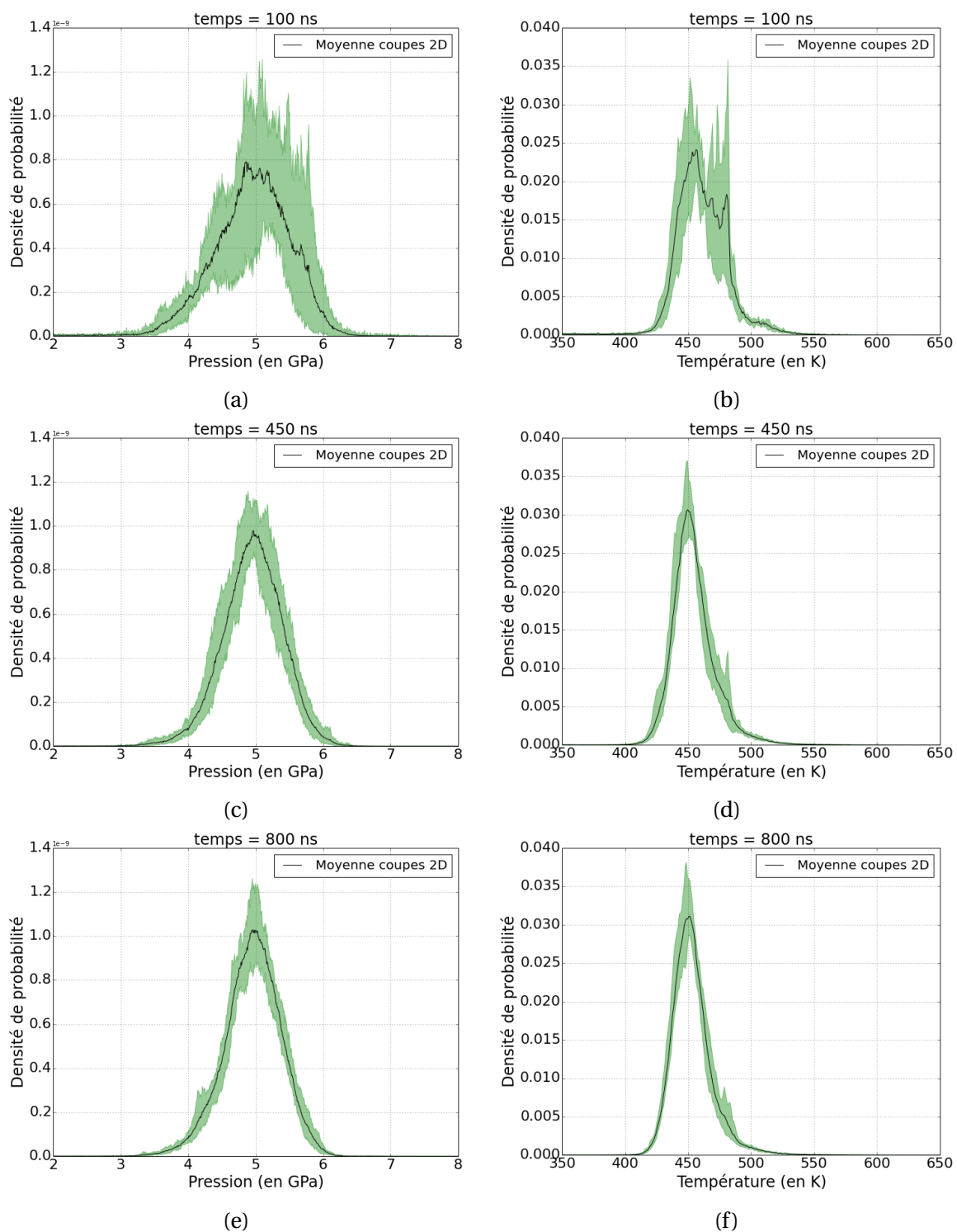


FIGURE B.5 – Enveloppe des distributions dans les grains pour le matériau à base de RVI-RDX de la pression à (a) 100 ns, (c) 450 ns et (e) 800 ns et de la température à (b) 100 ns, (d) 450 ns et (f) 800 ns

Annexe C

Microtomographies

Les microtomographies présentées dans le chapitre [9](#) sont disponible dans cette annexe en pleine page.

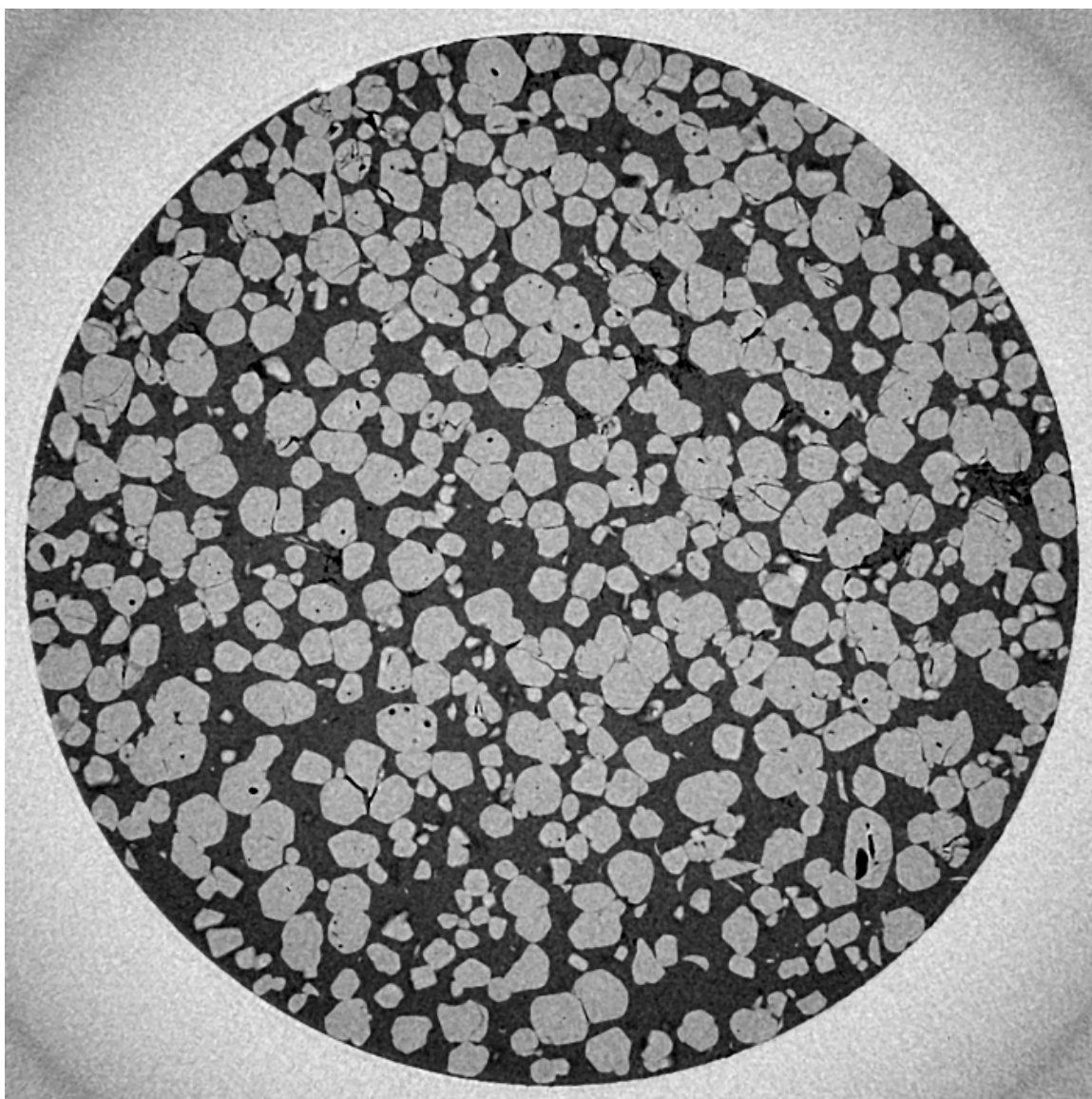


FIGURE C.1 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RS-RDX/cire sain

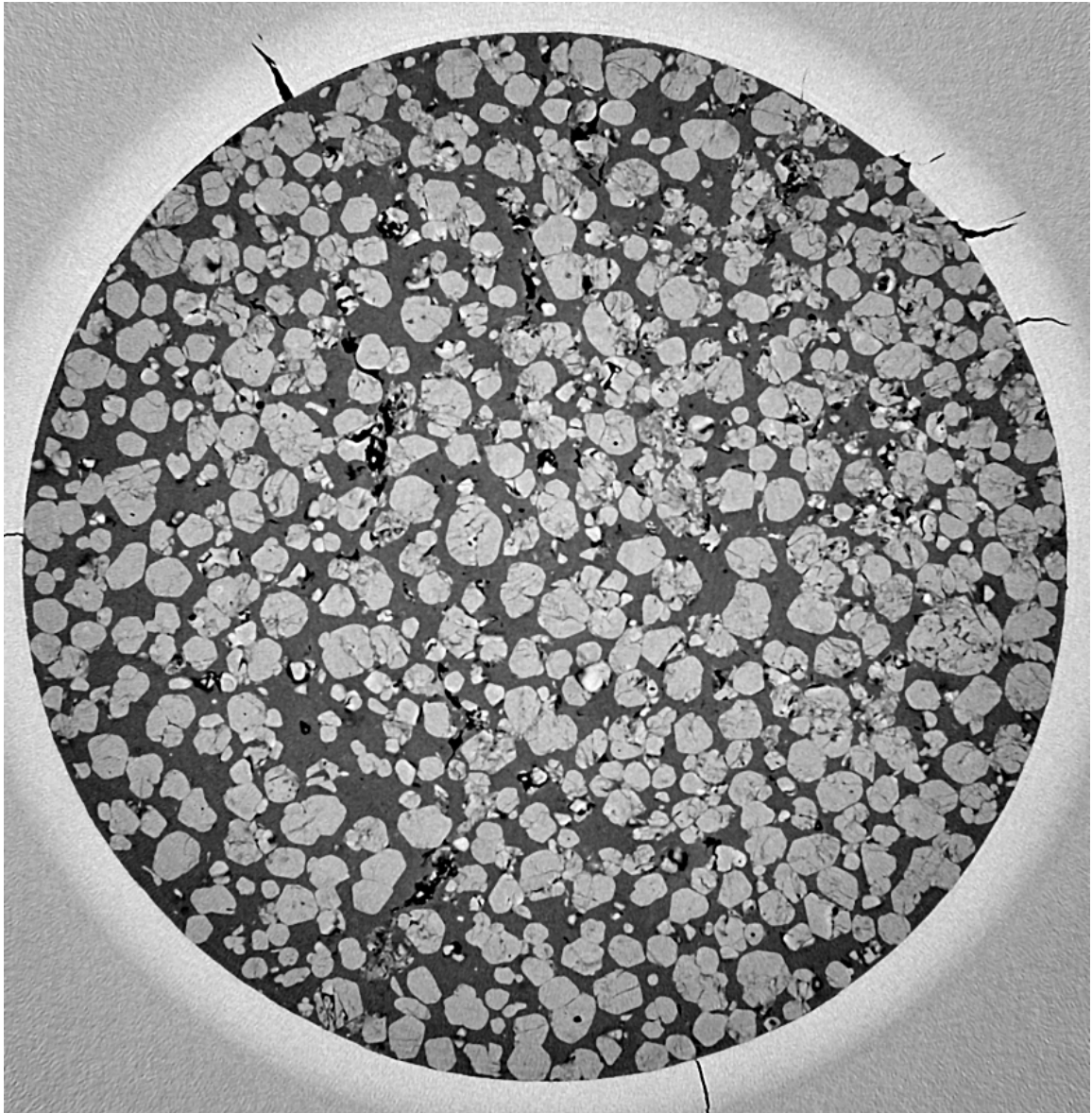


FIGURE C.2 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RS-RDX/cire endommagé

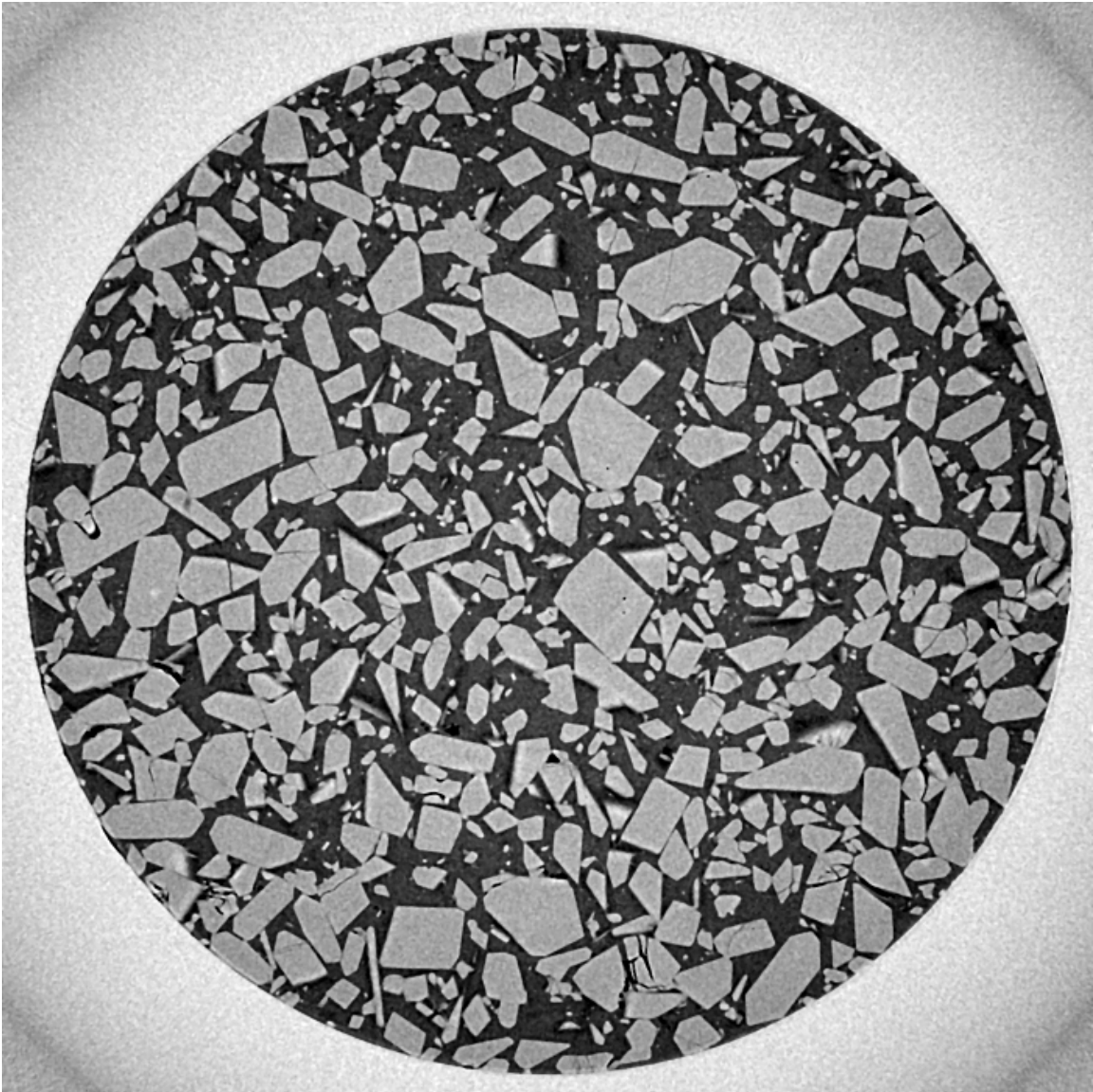


FIGURE C.3 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire sain

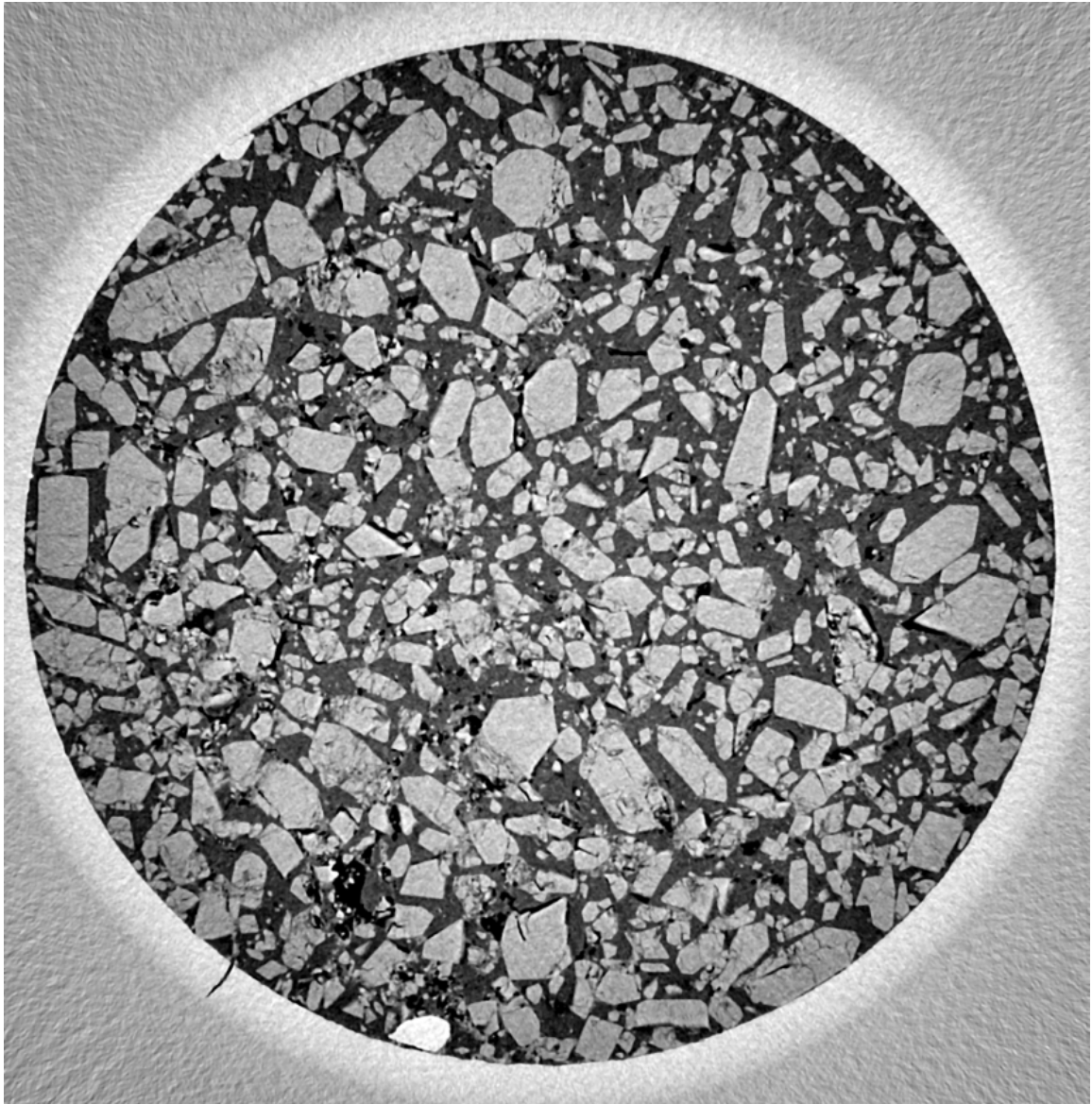


FIGURE C.4 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire endommagé

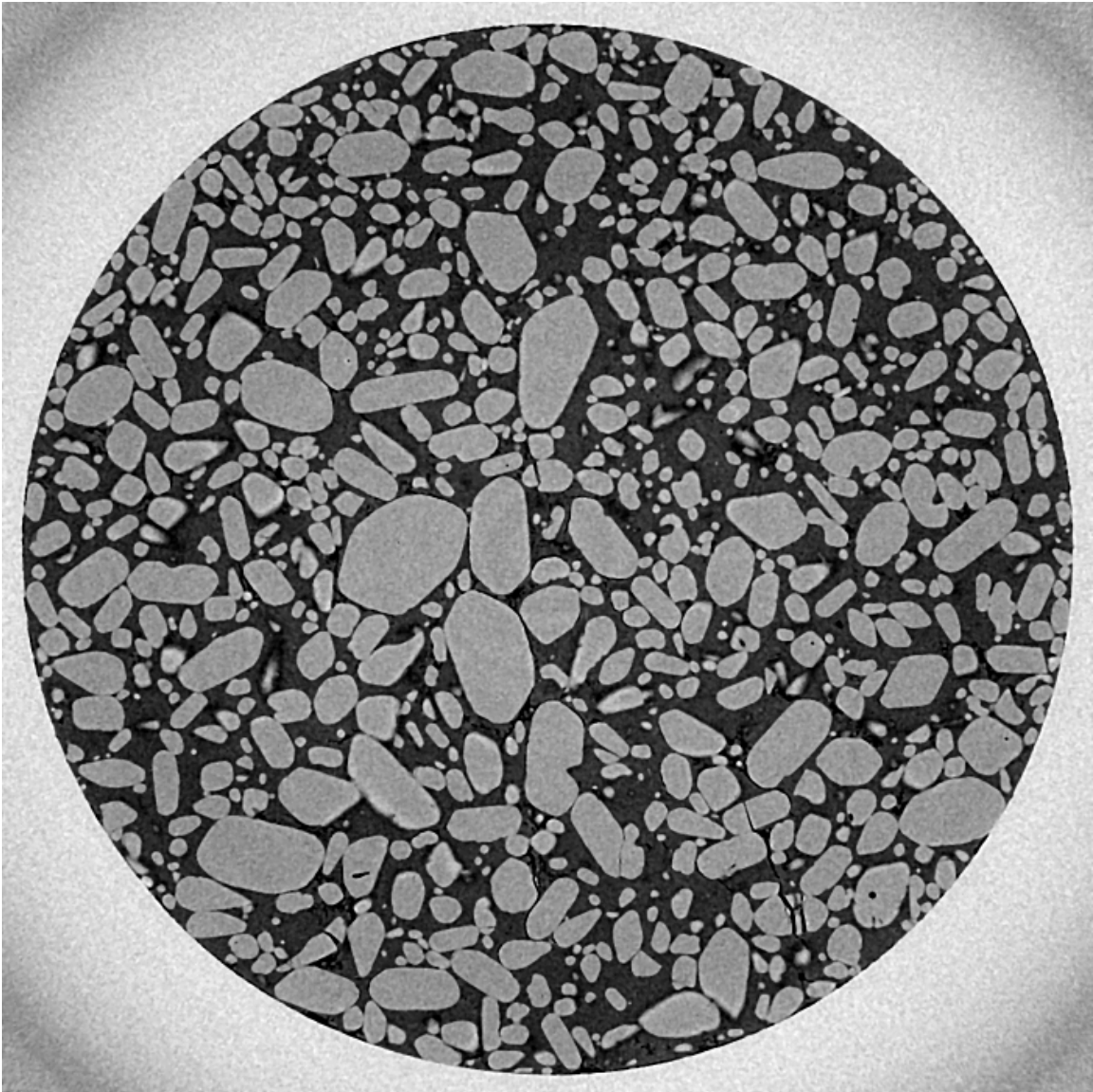


FIGURE C.5 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau VI-RDX/cire sain

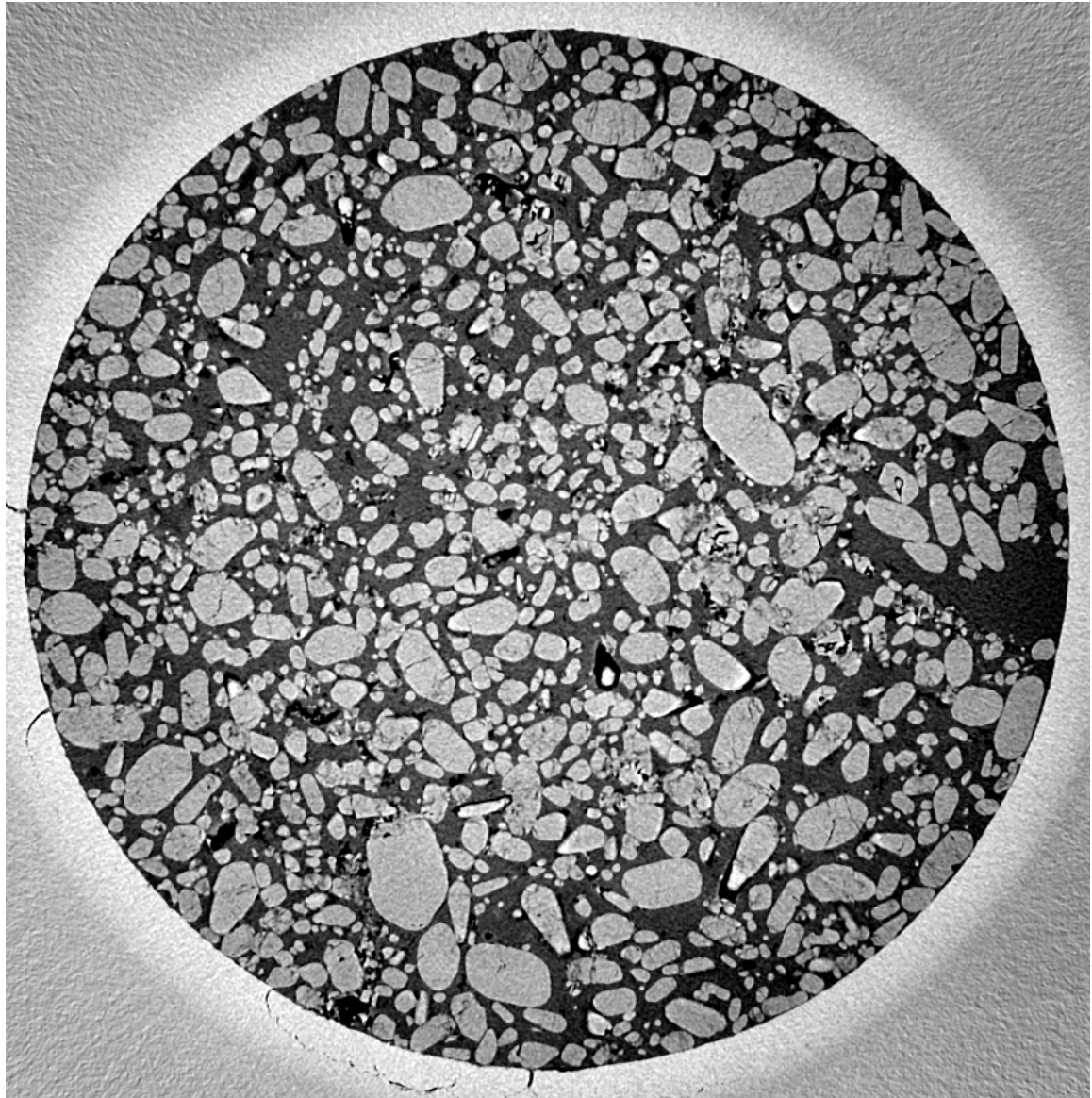


FIGURE C.6 – Microtomographie (coupe parallèle au front de choc) du matériau VI-RDX/cire endommagé

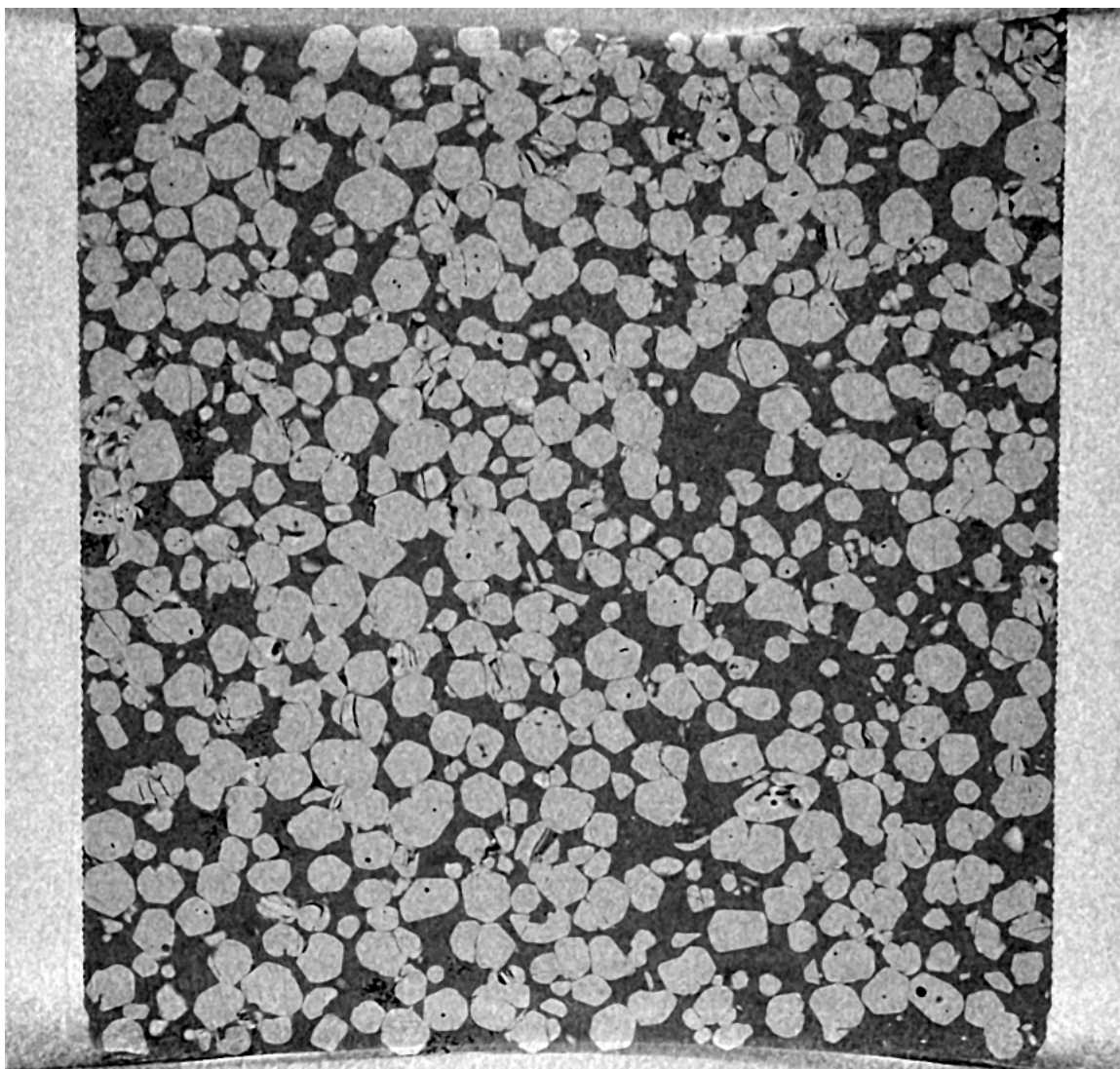


FIGURE C.7 – Microtomographie (coupe perpendiculaire front de au choc) du matériau RS-RDX/cire sain

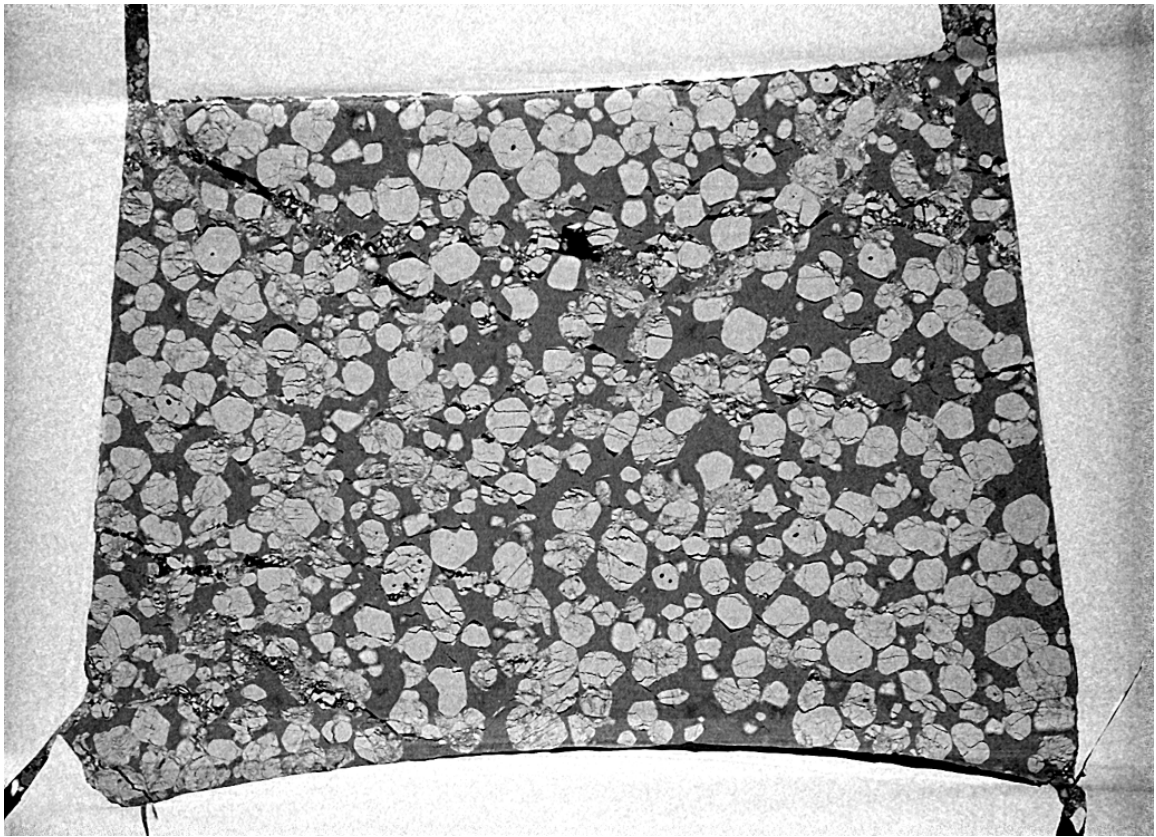


FIGURE C.8 – Microtomographie (coupe perpendiculaire front de au choc) du matériau RS-RDX/cire endommagé

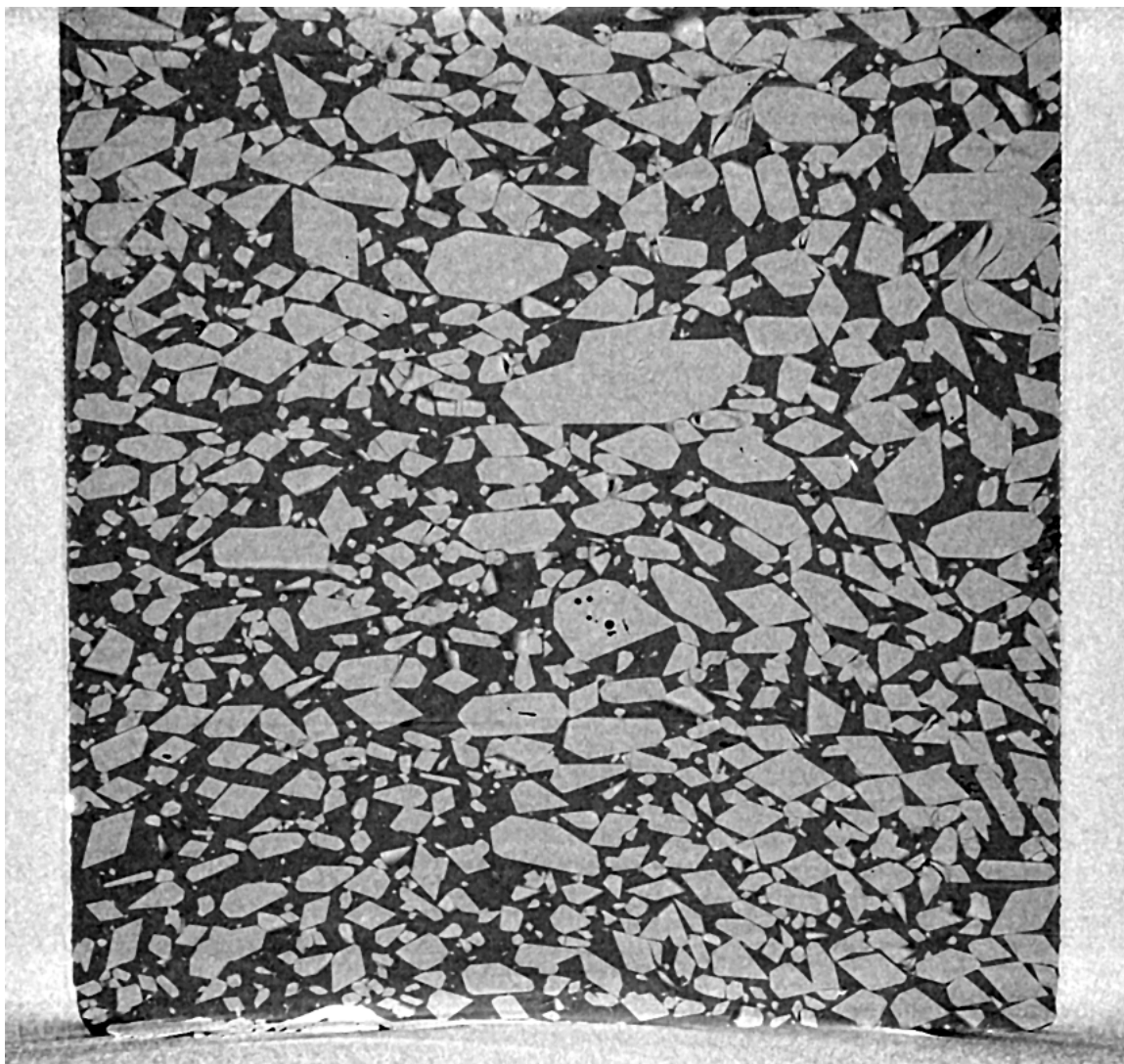


FIGURE C.9 – Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire sain

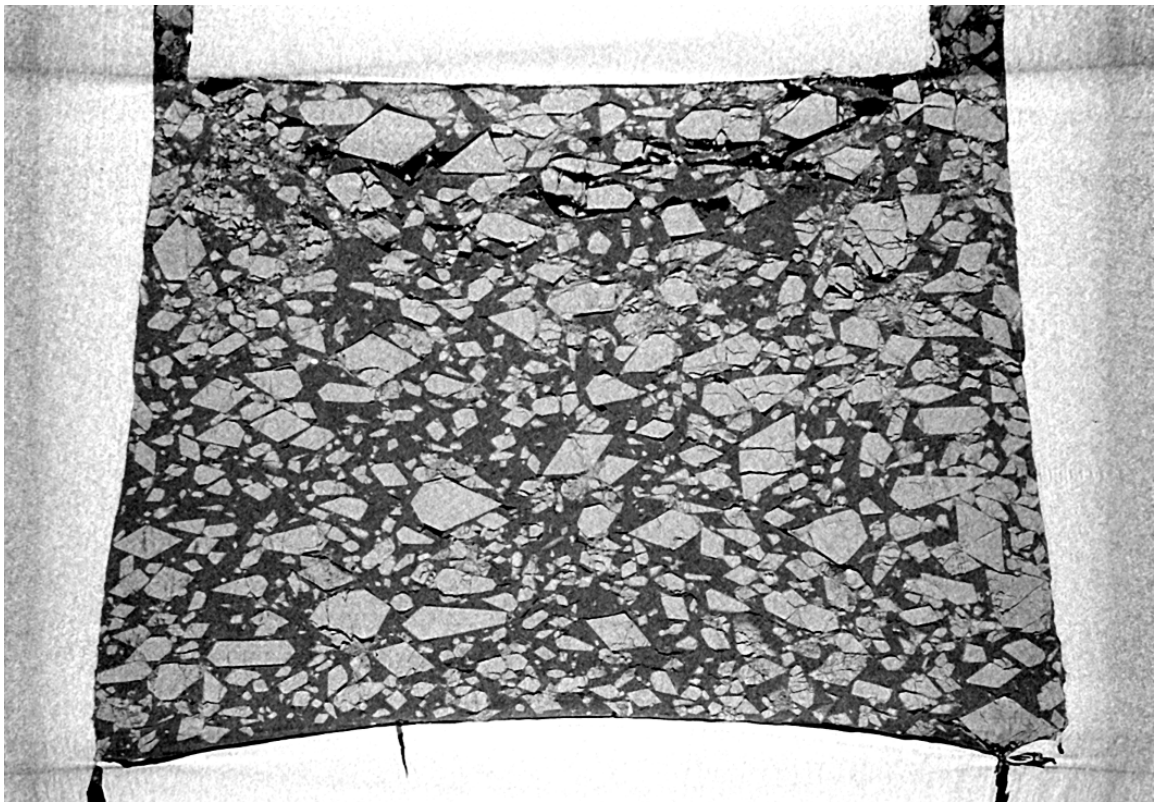


FIGURE C.10 – Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau RVI-RDX/cire endommagé

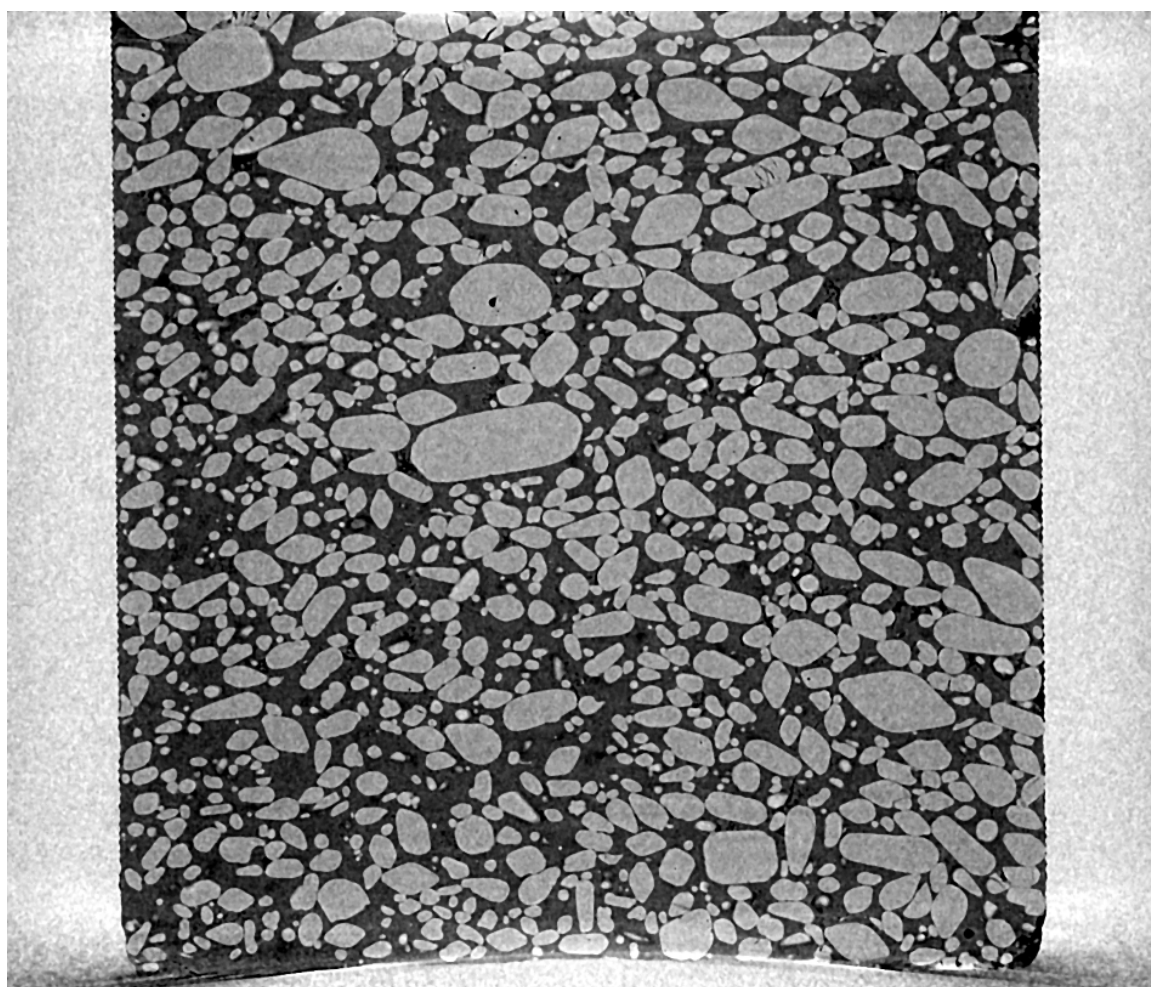


FIGURE C.11 – Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau VI-RDX/cire sain

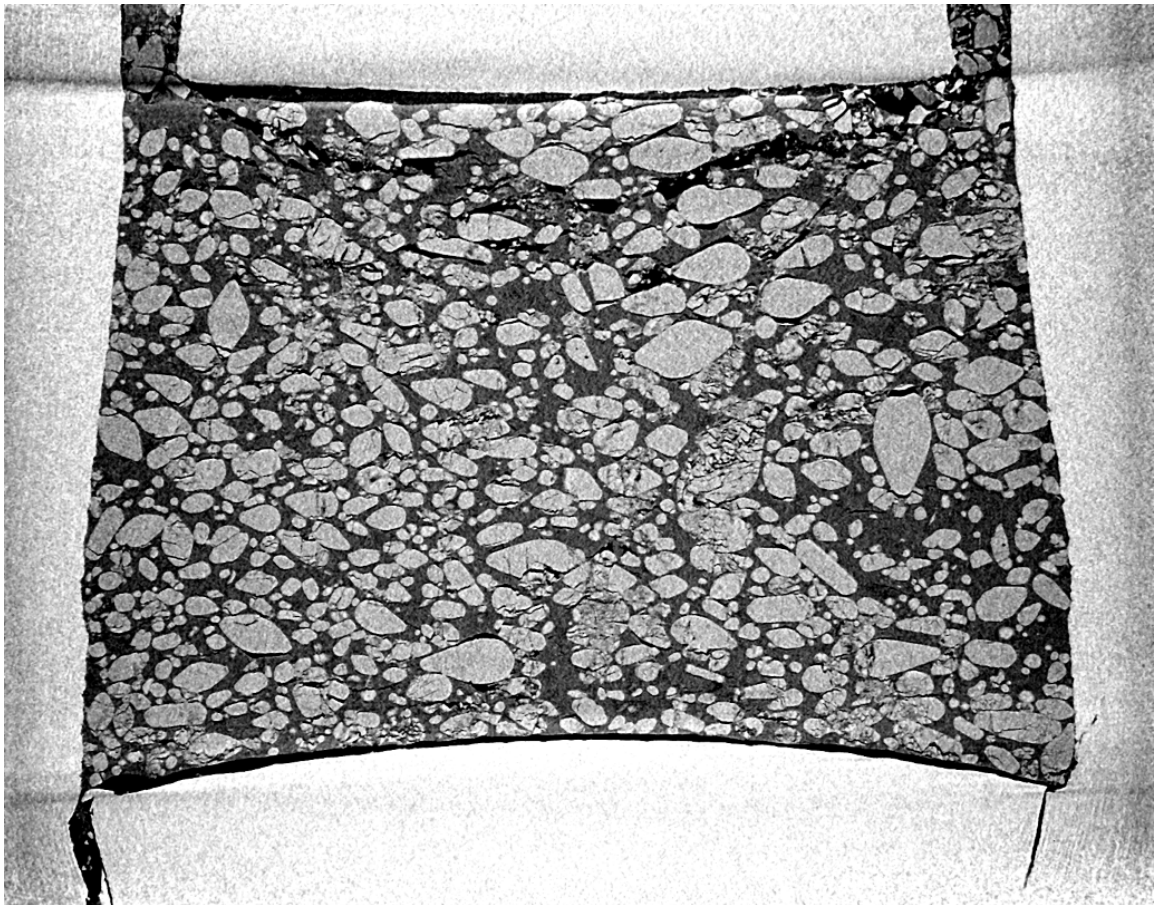


FIGURE C.12 – Microtomographie (coupe perpendiculaire au front de choc) du matériau VI-RDX/cire endommagé

Bibliographie

- [1] J. AKHAVAN : *The chemistry of explosives*. Royal Society of Chemistry, 2011. [vii](#), [16](#), [65](#)
- [2] J. B. RAMSAY et A. POPOLATO : Analysis of shock wave and initiation data for solid explosives. *In Fourth Symposium (International) on Detonation*, 1965. [vii](#), [16](#), [17](#)
- [3] A. W. CAMPBELL, W. C. DAVIS, J. B. RAMSAY et J. R. TRAVIS : Shock initiation of solid explosives. *The Physics of Fluids*, 4(4):511–521, 1961. [vii](#), [16](#), [17](#), [20](#), [21](#), [40](#)
- [4] H. ALTENDORF, F. LATOURTE, D. JEULIN, M. FAESSEL et L. SAINTOYANT : 3D reconstruction of a multiscale microstructure by anisotropic tessellation models. *Image Analysis and Stereology*, 33(2):121–130, 2014. [vii](#), [34](#), [35](#)
- [5] N. BOURNE : Energetic materials. *In Materials in mechanical extremes : Fundamentals and applications*, pages 413–450. Cambridge University Press, 2013. [vii](#), [9](#), [10](#), [11](#), [38](#)
- [6] N. K. RAI, M. J. SCHMIDT et H. S. UDAYKUMAR : High-resolution simulations of cylindrical void collapse in energetic materials : Effect of primary and secondary collapse on initiation thresholds. *Physical Review Fluids*, 2:043202, 2017. [vii](#), [36](#), [37](#), [38](#)
- [7] H. TRUMEL, F. RABETTE, F. WILLOT, R. BRENNER, E. ONGARI, M. BIESSY et D. PICART : Understanding the thermomechanical behavior of a TATB-based explosive via microstructure-level simulations. Part I : Microcracking and viscoelasticity. *In Europyro 44th International Pyrotechnics Seminar*, Tours, France, 2019. [vii](#), [38](#), [104](#)
- [8] I. D. H. OSWALD, D. I. A. MILLAR, A. J. DAVIDSON, D. J. FRANCIS, W. G. MARSHALL, C. R. PULHAM, A. CUMMING, A. R. LENNIE et J. E. WARREN : High-pressure structural studies of energetic compounds. *High Pressure Research*, 30(2):280–291, 2010. [viii](#), [64](#), [65](#), [66](#), [67](#), [159](#)
- [9] B. OLINGER, B. ROOF et H. H. CADY : The linear and volume compression of beta-HMX and RDX. *In Proceedings of the International Symposium on High Dynamic Pressure*, pages 3–8, 1978. [viii](#), [66](#), [67](#)
- [10] C. S. YOO, H. CYNN, W. M. HOWARD et N. HOLMES : Equations of state of unreacted high explosives at high pressures. Proceedings of the eleventh International Detonation Symposium,. *In Eleventh Symposium (International) on Detonation*, 1998. [viii](#), [66](#), [67](#)
- [11] A. J. DAVIDSON, I. D. H. OSWALD, D. J. FRANCIS, A. R. LENNIE, W. G. MARSHALL, D. I. A. MILLAR, C. R. PULHAM, J. E. WARREN et A. S. CUMMING : Explosives under pressure—the crystal structure of gamma-RDX as determined by high-pressure X-ray and neutron diffraction. *CrystEngComm*, 10(2):162–165, 2008. [viii](#), [63](#), [66](#), [67](#)
- [12] B. M. DOBRATZ : LLNL explosives handbook : properties of chemical explosives and explosive simulants. Rapport technique, Lawrence Livermore National Lab., CA (USA), 1981. [viii](#), [11](#), [63](#), [66](#), [67](#)
- [13] V. S. ILYUKHIN, P. F. POKHIL, O. K. ROZANOV et N. S. SHVEDOVA : RDX studies. *Transactions of the Soviet Academy of Sciences*, 131(4):793–796, 1960. [viii](#), [66](#), [67](#)
- [14] E. N. LANDIS et D. T. KEANE : X-ray microtomography. *Materials Characterization*, 61(12):1305–1316, 2010. [viii](#), [78](#)
- [15] H. WADELL : Sphericity and roundness of rock particles. *The Journal of Geology*, 41(3):310–331, 1933. [x](#), [114](#), [115](#), [116](#), [123](#), [125](#)

- [16] J. W. BULLARD et E. J. GARBOCZI : Defining shape measures for 3D star-shaped particles : Sphericity, roundness, and dimensions. *Powder Technology*, 249:241–252, 2013. x, 114, 115, 123, 125
- [17] K. A. ALSHIBLI, A. M. DRUCKREY, R. I. AL-RAOUSH, T. WEISKITTEL et N. V. LAVRIK : Quantifying morphology of sands using 3D imaging. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 27(10), 2015. x, 114, 115, 123, 125
- [18] F. DELLORO : *Méthodes morphologique et par éléments finis combinées pour une nouvelle approche de la modélisation 3D du dépôt par projection dynamique par gaz froid (" cold spray ")*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015. Disponible en ligne <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01216759/document>. x, 114, 115, 123, 125
- [19] B. SUKUMARAN et A. K. ASHMAWY : Quantitative characterisation of the geometry of discrete particles. *Géotechnique*, 51:619–627, 2001. x, 116, 117
- [20] C. S. CHOI et E. PRINCE : The crystal structure of cyclotrimethylenetrinitramine. *Acta Crystallographica Section B : Structural Crystallography and Crystal Chemistry*, 28(9):2857–2862, 1972. xv, 63
- [21] F. P. BOWDEN et A. D. YOFFE : *Initiation and growth of explosion in liquids and solids*. Cambridge University Press, 1952. 1, 18
- [22] T. CHABARDÈS, P. DOKLÁDAL, M. FAESSEL et M. BILODEAU : An affinity score for grains merging and touching grains separation. In *13th International Symposium on Mathematical Morphology*, volume 10225, pages 423–434, Fontainebleau, France, 2017. 2, 56, 211
- [23] A. FANGET : Bilan des approches multi-échelles pour la modélisation des matériaux énergétiques. Rapport technique, CEA Gramat, 2011. 2
- [24] G. CONTESSE et A. FANGET : Description d’une chaîne de construction de configurations numériques à partir de données microtomographique. Rapport technique, CEA Gramat, 2013. 2, 99, 207
- [25] M. THEVENIN : *Détonique théorique*. E.N.S.T.A., 1981. 9
- [26] J. H. S. LEE : *The detonation phenomenon*. Cambridge University Press, 2008. 9
- [27] Groupe de travail de pyrotechnie spatiale (GTPS) : *Dictionnaire de pyrotechnie*. AF3P, Signes, 7 édition, 2016. 9
- [28] H. H. KRAUSE : New energetic materials. In *Energetic Materials*, pages 1–25. John Wiley & Sons, Ltd, 2005. 10
- [29] J. R. ASAY et M. SHAHINPOOR, éditeurs. *High-Pressure Shock Compression of Solids*. Shock wave and high pressure phenomena, high-pressure shock compression. Springer-Verlag, New York, 1993. 12, 187
- [30] J. W. FORBES : *Shock wave compression of condensed matter*. Shock Wave and High Pressure Phenomena. Springer, Berlin, Heidelberg, 2012. 12
- [31] T. ELIA : *Etude théorique et expérimentale de l’amorçage par choc et de la détonation de compositions énergétiques intégrant des additifs oxydants et métalliques réactifs*. thesis, Institut polytechnique de Paris, 2019. Disponible en ligne <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-02503759>. 12, 22, 156
- [32] D. L. CHAPMAN : On the rate of explosion in gases. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 47(284):90–104, 1899. 13
- [33] E. JOUGUET : Sur l’onde explosive. *Comptes rendus de l’Académie des Sciences de Paris*, 139:121–124, 1904. 13
- [34] J. B. ZELDOVICH : Sur la théorie de la propagation de la détonation dans les systèmes gazeux. *Zhurnal Experimentanoi i Teoritiskeskoi Fiziki*, 10(5):542–565, 1940. 14

- [35] J. V. VON NEUMANN : Theory of stationary detonation waves. *National Defense Research Committee of the Office Scientific Research and Development*, 238, 1942. 14
- [36] W. DÖRING : Über den Detonationsvorgang in Gasen. *Annalen der Physik*, 435:421–436, 1943. 14
- [37] H. EYRING, R. E. POWELL, G. H. DUFFY et R. B. PARLIN : The stability of detonation. *Chemical Reviews*, 45(1):69–181, 1949. 14
- [38] J. B. BDZIL et D. S. STEWART : Modeling two-dimensional detonations with detonation shock dynamics. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 1(7):1261–1267, 1989. 14
- [39] A. DREMIN, V. Y. KLIMENKO et K. MICHAILJUK : On decomposition reaction kinetics in shock wave front. *In Seventh Symposium (International) on Detonation*, 1981. 15
- [40] C. M. TARVER : Chemical energy release in self-sustaining detonation waves in condensed explosives. *Combustion and Flame*, 46:157–176, 1982. 15
- [41] V. P. CHUZEVILLE : *Amorçage en détonation des explosifs hétérogènes de type coulé fondu : Établissement de corrélations entre microstructure et réactivité*. Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay (ComUE), 2016. Disponible en ligne <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01474379>. 15, 22, 32, 65, 66, 67, 73, 160, 181
- [42] P. R. LEE : Hazard assessment of explosives and propellants. *In Explosive Effects and Applications, High-Pressure Shock Compression of Condensed Matter*, pages 259–339. Springer, New York, NY, 1998. 16
- [43] T. ELIA, V. CHUZEVILLE, G. BAUDIN, M. GENETIER, A. LEFRANÇOIS, A. OSMONT et R. BOULANGER : Review of the wedge test and single curve initiation principle applied to aluminized high explosives. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 45(10):1541–1553, 2020. 17
- [44] D. A. FRANK-KAMENETSKII : *Diffusion and heat exchange in chemical kinetics*. Princeton University Press, 2015. 18
- [45] A. G. MERZHANOV : On critical conditions for thermal explosion of a hot spot. *Combustion and Flame*, 10(4):341–348, 1966. 19
- [46] T. BODDINGTON : The growth and decay of hot spots and the relation between structure and stability. *In Ninth Symposium (International) on Combustion*, pages 287–293. Academic Press, 1963. 19
- [47] H. J. BRUCKMAN JR. et J. E. GUILLET : Theoretical calculations of hot-spot initiation in explosives. *Canadian Journal of Chemistry*, 46(3221-3228), 1968. 19
- [48] C. M. TARVER, S. K. CHIDESTER et III NICHOLS : Critical conditions for impact- and shock-induced hot spots in solid explosives. *Journal of Physical Chemistry*, 100(14):5794–5799, 1996. 19
- [49] G. A. LEVESQUE, P. VITELLO et W. M. HOWARD : Hot-spot contributions in shocked high explosives from mesoscale ignition models. *Journal of Applied Physics*, 113(23):233513, 2013. 19, 31, 36
- [50] C. A. HANDLEY : Critical hotspots and flame propagation in HMX-based explosives. *AIP Conference Proceedings*, 1426(1):283–286, 2012. 19
- [51] A. BARUA, S. KIM, Y. HORIE et M. ZHOU : Prediction of probabilistic ignition behavior of polymer-bonded explosives from microstructural stochasticity. *Journal of Applied Physics*, 113(18):184907, 2013. 19, 38, 39
- [52] S. KIM, A. BARUA, Y. HORIE et M. ZHOU : Ignition probability of polymer-bonded explosives accounting for multiple sources of material stochasticity. *Journal of Applied Physics*, 115(17):174902, 2014. 19, 28, 33, 34, 35, 38, 39, 211
- [53] S. KIM, Y. HORIE et M. ZHOU : Ignition desensitization of PBX via aluminization. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 46(10):4578–4586, 2015. 19, 31, 35, 38, 211

- [54] S. KIM, C. MILLER, Y. HORIE, C. MOLEK, E. WELLE et M. ZHOU : Computational prediction of probabilistic ignition threshold of pressed granular octahydro-1,3,5,7-tetranitro-1,2,3,5-tetrazocine (HMX) under shock loading. *Journal of Applied Physics*, 120(11):115902, 2016. [19](#), [31](#), [34](#), [38](#), [39](#)
- [55] C. A. HANDLEY, B. D. LAMBOURN, N. J. WHITWORTH, H. R. JAMES et W. J. BELFIELD : Understanding the shock and detonation response of high explosives at the continuum and meso scales. *Applied Physics Reviews*, 5(1):011303, 2018. [19](#), [22](#)
- [56] W. P. BASSETT et D. D. DLOTT : Shock initiation of explosives : Temperature spikes and growth spurts. *Applied Physics Letters*, 109(9), 2016. [20](#)
- [57] W. P. BASSETT, B. P. JOHNSON, L. SALVATI, E. J. NISSEN, M. BHOWMICK et D. D. DLOTT : Shock initiation microscopy with high time and space resolution. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 45(2):223–235, 2020. [20](#)
- [58] H. MOULARD, A. DELCLOS et J. W. KURY : The effects of RDX particle size on the shock sensitivity of cast PBX formulations. In *Eight Symposium (International) on Detonation*, 1985. [20](#)
- [59] H. MOULARD : Particular aspect of the explosive particle size effect on shock sensitivity of cast PBX formulations. In *Ninth Symposium (International) on Detonation*, 1989. [20](#), [39](#)
- [60] R. L. SIMPSON, F. H. HELM, P. C. CRAWFORD et J. W. KURY : Particles size effects in the initiation of explosives containing reactive and non reactive continuous phases. In *Ninth Symposium (International) on Detonation*, 1989. [20](#)
- [61] B. A. KHASAINOV, B. S. ERMOLAEV, H. N. PRESLES et P. VIDAL : On the effect of grain size on shock sensitivity of heterogeneous high explosives. *Shock Waves*, 7(2):89–105, 1997. [20](#)
- [62] X. SONG et F. LI : Dependence of particle size and size distribution on mechanical sensitivity and thermal stability of hexahydro-1, 3, 5-trinitro-1, 3, 5-triazine. *Defence Science Journal*, 59, 2009. [20](#)
- [63] J. ZHANG et T. L. JACKSON : Effect of microstructure on the detonation initiation in energetic materials. *Shock Waves*, 29(2):327–338, 2017. [20](#), [35](#), [39](#), [209](#)
- [64] A. C. van der STEEN, H. J. VERBEEK et J. J. MEULENBRUGGE : Influence of RDX crystal shape on the shock sensitivity of PBXs. In *Ninth Symposium (International) on Detonation*, volume 1, 1989. [20](#)
- [65] I. E. LINDSTROM : Planar shock initiation of porous tetryl. *Journal of Applied Physics*, 41(1):337–350, 1970. [21](#)
- [66] D. STIRPE, J. O. JOHNSON et J. WACKERLE : Shock initiation of XTX-8003 and pressed PETN. *Journal of Applied Physics*, 41(9):3884–3893, 1970. [21](#)
- [67] L. BORNE et A. BEAUCAMP : Quantitative characterization of particle internal defects in particle lots. *Measurement Science and Technology*, 16:925–930, 2005. [21](#), [92](#)
- [68] L. BORNE et J.-L. PATEDOYE : Device for measuring the density of particles by flotation, 2009. Institut Franco-Allemand de Recherches de Saint-Louis. [21](#), [92](#)
- [69] J. MANG, C. SKIDMORE, R. HJELM et P. M. HOWE : Quantification of microstructural features in HMX using small angle neutron scattering techniques. In *21th international ICT conference*, 1998. [21](#)
- [70] L. MING, H. MING, K. BIN, W. MAOPING, L. HONGZHEN et X. RONG : Quality evaluation of RDX crystalline particles by confined quasi-static compression method. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 32(5):401–405, 2007. [21](#)
- [71] L. BORNE, J.-C. PATEDOYE et C. SPYCKERELLE : Quantitative characterization of internal defects in RDX crystals. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 24(4):255–259, 1999. tex.copyright : © 1999 WILEY-VCH Verlag GmbH, Weinheim, Fed. Rep. of Germany. [21](#), [92](#), [94](#), [208](#)

- [72] L. BORNE : Influence of intra-granular cavities of RDX particles batches on the sensitivity of cast wax bonded explosives. *In Tenth Symposium (International) on Detonation*, 1993. 21
- [73] L. BORNE et A. BEAUCAMP : Effects of explosive crystal internal defects on projectile impact initiation. *In Twelfth Symposium (International) on Detonation*, 2002. 21, 209
- [74] L. BORNE : Explosive crystal microstructure and shock-sensitivity of cast formulations. *In Eleventh Symposium (International) on Detonation*, 1998. 21, 209
- [75] L. BORNE et H. RITTER : HMX as an impurity in RDX particles : Effect on the shock sensitivity of formulations based on RDX. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 31(6):482–489, 2006. 22
- [76] R. M. DOHERTY et D. S. WATT : Relationship between RDX properties and sensitivity. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 33(1):4–13, 2008. 22
- [77] F. E. WALKER et R. J. WASLEY : Critical energy for the shock initiation of heterogeneous explosives. *Explosivstoff*, 1969. 22
- [78] H. R. JAMES : Critical energy criterion for the shock initiation of explosives by projectile impact. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 13(2):35–41, 1988. 22
- [79] F. E. WALKER : Derivation of the P2T detonation criterion. *In Eight Symposium (International) on Detonation*, pages 1119–1125, 1985. 22
- [80] H. R. JAMES : An extension to the critical energy criterion used to predict shock initiation thresholds. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 21(1):8–13, février 1996. 22
- [81] H. W. HUBBARD et M. H. JOHNSON : Initiation of detonations. *Journal of Applied Physics*, 30(5):765–769, 1959. 22
- [82] C. L. MADER et C. A. FOREST : Two-dimensional homogeneous and heterogeneous detonation wave propagation. *NASA STI/Recon Technical Report N*, 77, 1976. 23
- [83] C. M. TARVER, J. O. HALLQUIST et L. M. ERIKSON : Modelling short pulse duration shock initiation of solid explosives. *In Eighth Symposium (International) on Detonation*, 1985. 23
- [84] B. L. WESCOTT, D. S. STEWART et W. C. DAVIS : Equation of state and reaction rate for condensed-phase explosives. *Journal of Applied Physics*, 98(5):040034, 2005. 23
- [85] B. D. LAMBOURN, N. J. WHITWORTH, C. A. HANDLEY et H. R. JAMES : A finite strain, non-reacted EOS for PBX9502. *AIP Conference Proceedings*, 955(1):137–140, 2007. 23
- [86] C. A. HANDLEY : The CREST reactive burn model. *AIP Conference Proceedings*, 955(1):373–376, 2007. 23
- [87] R. MENIKOFF et M. S. SHAW : Reactive burn models and ignition & growth concept. *EPJ Web of Conferences*, 10:00003, 2010. 23, 39
- [88] G. DAMAMME : *Contribution à la théorie hydrodynamique de l'onde de détonation dans les explosifs condensés*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers, 1987. 23
- [89] G. BAUDIN, M. ROUDOT, M. GENETIER, P. MATEILLE et A. LEFRANÇOIS : Shock-to-detonation transition of RDX, HMX and NTO based composite high explosives : experiments and modelling. *Journal of Physics Conference Series*, 500:052004, 2014. 23
- [90] J. N. JOHNSON, P. K. TANG et C. A. FOREST : Shock-wave initiation of heterogeneous reactive solids. *Journal of Applied Physics*, 57(9):4323–4334, 1985. 23
- [91] P. K. TANG : A study of the role of homogeneous process in heterogeneous high explosives. *In Tenth International Detonation Symposium*, 1993. 24
- [92] D. BERGUES, G. BAUDIN et H. TRUMEL : A shock to detonation model for high-energy rocket propellant applied to predict jet initiation threshold. *In Tenth International Detonation Symposium*, 1993. 24
- [93] G. BAUDIN et D. BERGUES : A reaction model for aluminized PBX applied to underwater explosion calculations. *In In Tenth International Detonation Symposium*, 1993. 24

- [94] N. DESBIENS, C. MATIGNON et R. SORIN : Temperature-based model for condensed-phase explosive detonation. *Journal of Physics : Conference Series*, 500:152004, 2014. [24](#)
- [95] M. COOK, P. J. HASKINS et C. STENNETT : Development and implementation of an ignition and growth model for homogeneous and heterogeneous explosives. In *Eleventh International Detonation Symposium*, 1998. [24](#)
- [96] J. BELMAS, J. P. PLOTARD et C. BIANCHI : A physical model of shock to detonation transition in heterogeneous explosives. In *Tenth International Detonation Symposium*, pages 724–730, 1993. [24](#)
- [97] J. MASSONI, R. SAUREL, G. BAUDIN et G. DEMOL : A mechanistic model for shock initiation of solid explosives. *Physics of Fluids*, 11:710–736, mars 1999. [24](#)
- [98] J. K. DIENES, Q. H. ZUO et J. D. KERSHNER : Impact initiation of explosives and propellants via statistical crack mechanics. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 54(6):1237–1275, 2006. [25](#)
- [99] D. PICART, J. ERMISSE, M. BIESSY, E. BOUTON et H. TRUMEL : Modeling and simulation of plastic-bonded explosive mechanical initiation. *International Journal of Energetic Materials and Chemical Propulsion*, 12(6):487–509, 2013. [25](#), [29](#)
- [100] G. DUVAUT : *Mécanique des milieux continus*. Librairie Eyrolles, 2001. [27](#)
- [101] S. FOREST et M. AMESTOY : Cours de mécanique des milieux continus. Rapport technique, Ecole des Mines de Paris. [27](#)
- [102] G. BAUDIN : COOC Mécanique du solide. Rapport technique, CEA Gramat, 2021. [27](#)
- [103] M. A. MEYERS : Differential Form of Conservation Equations and Numerical Solutions to More Complex Problems. In *Dynamic Behavior of Materials*, pages 152–178. John Wiley & Sons, Ltd, 1994. [27](#)
- [104] B. E. CLEMENTS et E. M. MAS : Modeling high explosives with the method of cells and Mori-Tanaka effective medium theories. *AIP Conference Proceedings*, 620(1):427–430, 2002. [28](#)
- [105] Z. P. TANG et W. W. WANG : Discrete element modeling for shock processes of heterogeneous materials. *AIP Conference Proceedings*, 620(1):679–684, 2002. [28](#)
- [106] K. OLNEY, D. BENSON et V. NESTERENKO : An overview of mesoscale material modeling with Eulerian hydrocodes. *Journal of Physics : Conference Series*, 500:152002, 2014. [28](#)
- [107] A. BARUA et M. ZHOU : A lagrangian framework for analyzing microstructural level response of polymer-bonded explosives. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 19(5):055001, 2011. [28](#), [31](#), [33](#), [34](#), [38](#), [39](#), [40](#)
- [108] A. BARUA et M. ZHOU : A framework for analyzing the microstructure level thermomechanical response polymer bonded explosives. *Materials Science Forum*, 673:21–33, 2011. [28](#), [31](#), [34](#), [38](#), [39](#), [40](#)
- [109] R. PANCHADHAR et K. A. GONTHIER : Meso-scale heating predictions for weak impact of granular energetic solids. *AIP Conference Proceedings*, 1195(1):1377–1380, 2009. [28](#), [33](#), [34](#)
- [110] A. de BRAUER, N. K. RAI, M. E. NIXON et H. S. UDAYKUMAR : Modeling impact-induced damage and debonding using level sets in a sharp interface Eulerian framework. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 115(9):1108–1137, 2018. [28](#)
- [111] R. A. AUSTIN, N. R. BARTON, J. E. REAUGH et L. E. FRIED : Direct numerical simulation of shear localization and decomposition reactions in shock-loaded HMX crystal. *Journal of Applied Physics*, 117(18):185902, 2015. [28](#), [31](#), [33](#), [36](#), [37](#)
- [112] H. K. SPRINGER, C. M. TARVER, J. E. REAUGH et C. M. MAY : Investigating short-pulse shock initiation in HMX-based explosives with reactive meso-scale simulations. *Journal of Physics : Conference Series*, 500(5):052041, 2014. [28](#), [31](#)
- [113] M. R. BAER : Computational modeling of heterogeneous reactive materials at the mesoscale. *AIP Conference Proceedings*, 505(1):27–34, 2000. [29](#), [31](#), [35](#)

- [114] M. R. BAER : Modeling heterogeneous energetic materials at the mesoscale. *Thermochimica Acta*, 384(1):351–367, 2002. 29, 34, 35
- [115] D. B. HARDIN, J. J. RIMOLI et M. ZHOU : Analysis of thermomechanical response of polycrystalline HMX under impact loading through mesoscale simulations. *AIP Advances*, 4(9):097136, 2014. 29, 33, 34, 35
- [116] A. KEYHANI, S. KIM, Y. HORIE et M. ZHOU : Energy dissipation in polymer-bonded explosives with various levels of constituent plasticity and internal friction. *Computational Materials Science*, 159:136–149, 2019. 29, 33, 34, 38
- [117] C. A. HANDLEY : *Numerical modelling of two HMX-based plastic-bonded explosives at the mesoscale*. Thesis, University of St Andrews, 2011. Disponible en ligne <https://research-repository.st-andrews.ac.uk/handle/10023/1709>. 29, 157
- [118] I. PLAKSIN, L. RODRIGUES, S. PLAKSIN, J. CAMPOS, R. MENDES, J. RIBEIRO et J. GOIS : Radiation-induced precursors in crystalline energetic composites. *AIP Conference Proceedings*, 1195(1):137, 2010. 29
- [119] B. HOPKINSON : A method of measuring the pressure produced in the detonation of high explosives or by the impact of bullets. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 89(612):411–413, 1914. 29
- [120] C. GRUAU, D. PICART, R. BELMAS, E. BOUTON, F. DELMAIRE-SIZES, J. SABATIER et H. TRUMEL : Ignition of a confined high explosive under low velocity impact. *International Journal of Impact Engineering*, 36:537–550, 2009. 29
- [121] C. MEREDITH, D. CASEM, C. LIU, B. MORROW, C. CADY et K. RAMOS : Overview of the first SHPB experiments on oriented single crystal explosives. In L. E. LAMBERSON, éditeur : *Dynamic Behavior of Materials, Volume 1*, Conference Proceedings of the Society for Experimental Mechanics Series, pages 143–148. Springer International Publishing, 2020. 29
- [122] R. MENIKOFF : Compaction wave profiles in granular HMX. *AIP Conference Proceedings*, 620(1):979–982, 2002. 31, 34
- [123] A. KAPAHI et H. S. UDAYKUMAR : Dynamics of void collapse in shocked energetic materials : physics of void–void interactions. *Shock Waves*, 23(6):537–558, 2013. 31, 36, 38
- [124] A. L. BRUNDAGE, R. R. WIXOM, A. S. TAPPAN et G. T. LONG : Mesoscale simulations of shock initiation in energetic materials characterized by three-dimensional nanotomography. *AIP Conference Proceedings*, 1195(1):315–318, 2009. 31, 33
- [125] L. TRAN et H. S. UDAYKUMAR : Simulation of void collapse in an energetic material, Part I : Inert case. *Journal of Propulsion and Power*, 22(5), 2006. 31, 36, 37
- [126] H. K. SPRINGER, S. BASTEA, A. L. NICHOLS, C. M. TARVER et J. E. REAUGH : Modeling the effects of shock pressure and pore morphology on hot spot mechanisms in HMX. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 43(8):805–817, 2018. 31, 33, 37, 38
- [127] P. DEBYE : Zur Theorie der spezifischen Wärmen. *Annalen der Physik*, 344(14):789–839, 1912. tex.copyright : Copyright © 1912 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim. 31
- [128] S. G. COCHRAN et J. CHAN : Shock initiation and detonation models in one and two dimensions. [PBX-9404, RX-03-BB]. Rapport technique UCID-18024, California Univ., Livermore (USA). Lawrence Livermore Lab., 1979. 32, 73, 160
- [129] R. MENIKOFF : Pore collapse and hot spots in HMX. In *AIP Conference Proceedings*, volume 706, pages 393–396, 2004. 33, 36
- [130] A. BARUA et M. ZHOU : Computational analysis of temperature rises in microstructures of HMX-Estane PBXs. *Computational Mechanics*, 52(1):151–159, 2013. 33, 38
- [131] S. G. BARDENHAGEN, A. D. BRYDON, T. O. WILLIAMS et C. COLLET : Coupling grain scale and bulk mechanical response for PBXs using numerical simulations of real microstructures. *AIP Conference Proceedings*, 845(1):479–482, 2006. 33

- [132] B. LAMBOURN et C. HANDLEY : A two-temperature model for shocked porous explosive. *AIP Conference Proceedings*, 1793(1):120025, 2017. [33](#)
- [133] S. A. McDONALD, J. C. F. MILLETT, N. K. BOURNE, K. BENNETT, A. M. MILNE et P. J. WITHERS : The shock response, simulation and microstructural determination of a model composite material. *Journal of Materials Science*, 42(23):9671–9678, 2007. [33](#)
- [134] N. K. BOURNE : Impact on alumina. I. Response at the mesoscale. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 462(2074):3061–3080, 2006. [33](#)
- [135] N. K. RAI et H. S. UDAYKUMAR : Mesoscale simulation of reactive pressed energetic materials under shock loading. *Journal of Applied Physics*, 118(24):245905, 2015. [33](#), [209](#)
- [136] S. CHAKRAVARTHY et K. GONTHIER : Analysis of microstructure-dependent shock dissipation and hot-spot formation in granular metalized explosive. *Journal of Applied Physics*, 120:024901, 2016. [34](#), [36](#), [39](#), [40](#)
- [137] R. MENIKOFF et E. KOBER : Compaction waves in granular HMX. *AIP Conference Proceedings*, 505(1):397–400, 2000. [34](#)
- [138] D. J. BENSON et W. J. NELLIS : Dynamic compaction of copper powder : Computation and experiment. *Applied Physics Letters*, 65(4):418–420, 1994. [34](#)
- [139] M. R. BAER, M. E. KIPP et F. SWOL : Micromechanical modeling of heterogeneous energetic materials. In *Eleventh Symposium (International) on Detonation*, pages 788–797, 1998. [34](#)
- [140] M. BAER, R. A. GRAHAM, M. U. ANDERSON, S. A. SHEFFIELD et R. L. GUSTAVSEN : Experimental and theoretical investigations of shock-induced flow of reactive porous media. In *JANNAF combustion subcommittee and propulsion systems : hazards subcommittee joint meeting*, 1996. [34](#)
- [141] T. L. JACKSON, A. JOST, J. ZHANG, P. SRIDHARAN et G. AMADIO : Multi-dimensional mesoscale simulations of detonation initiation in energetic materials with density-based kinetics. *Combustion Theory and Modelling*, 22:1–25, 2017. [34](#), [35](#), [40](#), [209](#)
- [142] J.-B. GASNIER, F. WILLOT, H. TRUMEL, B. FIGLIUZZI, D. JEULIN et M. BIESSY : A Fourier-based numerical homogenization tool for an explosive material. *Matériaux & Techniques*, 103(3):308, 2015. [34](#)
- [143] E. N. GILBERT : Random subdivisions of space into crystals. *Annals of Mathematical Statistics*, 33(3):958–972, 1962. tex.mrnumber : MR144253 tex.zmnumber : 0242.60009. [34](#)
- [144] D. JEULIN : Random tessellations generated by Boolean random functions. *Pattern Recognition Letters*, 47:139–146, 2014. [34](#)
- [145] J. J. RIMOLI et M. ORTIZ : A duality-based method for generating geometric representations of polycrystals. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 86(9):1069–1081, 2011. [34](#)
- [146] B. D. LUBACHEVSKY et F. H. STILLINGER : Geometric properties of random disk packings. *Journal of Statistical Physics*, 60(5):561–583, 1990. [35](#), [139](#)
- [147] F. MAGGI, S. STAFFORD, T. L. JACKSON et J. BUCKMASTER : Nature of packs used in propellant modeling. *Physical Review E*, 77(4):046107, 2008. [35](#)
- [148] G. M. KNOTT, T. L. JACKSON et J. BUCKMASTER : Random packing of heterogeneous propellants. *AIAA Journal*, 39(4):678–686, 2001. [35](#)
- [149] D. S. STAFFORD et T. L. JACKSON : Using level sets for creating virtual random packs of non-spherical convex shapes. *Journal of Computational Physics*, 229(9):3295–3315, 2010. [35](#)
- [150] T. L. JACKSON, D. E. HOOKS et J. BUCKMASTER : Modeling the microstructure of energetic materials with realistic constituent morphology. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 36(3):252–258, 2011. [35](#)
- [151] G. AMADIO et T. L. JACKSON : A new packing code for creating microstructures of propellants and explosives. In *51st AIAA/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference*, AIAA Propulsion and Energy Forum. American Institute of Aeronautics and Astronautics, 2015. [35](#)

- [152] T. L. JACKSON et J. ZHANG : Density-based kinetics for mesoscale simulations of detonation initiation in energetic materials. *Combustion Theory and Modelling*, 21(4):749–769, 2017. [35](#)
- [153] N. K. RAI et H. S. UDAYKUMAR : Three-dimensional simulations of void collapse in energetic materials. *Physical Review Fluids*, 3(3):033201, 2018. [36](#)
- [154] A. KAPAHYI et H. S. UDAYKUMAR : Three-dimensional simulations of dynamics of void collapse in energetic materials. *Shock Waves*, 25(2):177–187, 2015. [36](#), [38](#)
- [155] M. R. BAER et W. M. TROTT : Theoretical and experimental mesoscale studies of impact-loaded granular explosive and simulant materials. In *Twelfth Symposium (International) on Detonation*, volume 2, pages 939–950, 2002. [36](#)
- [156] M. M. CARROLL et A. C. HOLT : Static and dynamic pore-collapse relations for ductile porous materials. *Journal of Applied Physics*, 43:1626–1636, 1972. [36](#)
- [157] J. KANG, P. B. BUTLER et M. R. BAER : A thermomechanical analysis of hot spot formation in condensed-phase energetic materials. *Combustion and Flame*, 89(2):117–139, 1992. [36](#), [37](#)
- [158] N. K. RAI, M. J. SCHMIDT et H. S. UDAYKUMAR : Collapse of elongated voids in porous energetic materials : Effects of void orientation and aspect ratio on initiation. *Physical Review Fluids*, 2:043201, 2017. [36](#), [37](#)
- [159] S. R. COOPER, D. J. BENSON et V. F. NESTERENKO : A numerical exploration of the role of void geometry on void collapse and hot spot formation in ductile materials. *International Journal of Plasticity*, 16(5):525–540, 2000. [36](#), [37](#)
- [160] A. B. SWANTEK et J. M. AUSTIN : Collapse of void arrays under stress wave loading. *Journal of Fluid Mechanics*, 649:399–427, 2010. [36](#), [38](#)
- [161] G. A. LEVESQUE et P. VITELLO : The effect of pore morphology on hot spot temperature. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 40(2):303–308, 2015. [36](#), [37](#)
- [162] H. TAN, C. LIU, Y. HUANG et P. H. GEUBELLE : The cohesive law for the particle/matrix interfaces in high explosives. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 53(8):1892–1917, 2005. [38](#)
- [163] A. BARUA, S. KIM, Y. HORIE et M. ZHOU : Ignition criterion for heterogeneous energetic materials based on hotspot size-temperature threshold. *Journal of Applied Physics*, 113(6):064906, 2013. [38](#)
- [164] J. SERRA : *Image analysis and mathematical morphology*. Academic Press, Inc., Orlando, FL, USA, 1983. [43](#), [54](#)
- [165] G. MATHERON : *Random sets and integral geometry*. Wiley, New-York, 1975. [47](#)
- [166] M. SEZGIN et B. SANKUR : Survey over image thresholding techniques and quantitative performance evaluation. *Journal of Electronic Imaging*, 13(1):146–165, 2004. [48](#), [50](#)
- [167] P. IASSONOV, T. GEBRENEGUS et M. TULLER : Segmentation of X-ray computed tomography images of porous materials : A crucial step for characterization and quantitative analysis of pore structures. *Water Resources Research*, 45(9), 2009. [48](#), [50](#), [52](#)
- [168] R. NOCK et F. NIELSEN : Statistical region merging. In *IEEE transactions on pattern analysis and machine intelligence*, volume 26, pages 1452–1458, 2004. ISSN : 1939-3539 tex.-number : 11. [48](#)
- [169] J. FAN, G. ZENG, M. BODY et M.-S. HACID : Seeded region growing : an extensive and comparative study. *Pattern Recognition Letters*, 26(8):1139–1156, 2005. [48](#)
- [170] S. BEUCHER et C. LANTUÉJOU : Use of watersheds in contour detection. In *International Workshop on Image Processing : Real-time Edge and Motion detection/estimation*, Fontainebleau, 1979. ENSMP. [48](#)
- [171] F. MEYER : Topographic distance and watershed lines. *Signal Processing*, 38:113–125, 1994. [48](#)

- [172] T. CHABARDÈS : *Segmentation automatique de matériaux granulaires*. Thèse de doctorat, Mines Paristech, Fontainebleau, 2018. Disponible en ligne <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01900940>. 49, 50, 53, 55, 99, 207, 209
- [173] S. SCHLÜTER, A. SHEPPARD, K. BROWN et D. WILDENSCHILD : Image processing of multi-phase images obtained via X-ray microtomography : A review. *Water Resources Research*, 50(4):3615–3639, 2014. 49
- [174] C. TOMASI et R. MANDUCHI : Bilateral filtering for gray and color images. In *IEEE International Conference on Computer Vision*, pages 839–846, 1998. 49, 50, 54
- [175] C. THIERY : Tomographie à rayons X. Rapport technique, Techniques de l'Ingénieur, 2013. 49, 77, 78
- [176] A. CHAMBOLLE : An algorithm for total variation minimization and applications. *Journal of Mathematical Imaging and Vision*, 20(1):89–97, 2004. 49, 50
- [177] P. PERONA et J. MALIK : Scale-space and edge detection using anisotropic diffusion. In *IEEE transactions on pattern analysis and machine intelligence*, volume 12, pages 629–639, 1990. ISSN : 1939-3539 tex.-number : 7. 49, 50
- [178] A. BUADES, B. COLL et J.-M. MOREL : A non-local algorithm for image denoising. In *IEEE computer society conference on computer vision and pattern recognition*, volume 2, pages 60–65, 2005. 49, 50
- [179] A. BUADES, B. COLL et J.-M. MOREL : Non-local means denoising. *Image Processing On Line*, 1:208–212, 2011. 49, 50
- [180] D.-M. TSAI : A fast thresholding selection procedure for multimodal and unimodal histograms. *Pattern Recognition Letters*, 16(6):653–666, 1995. 52, 55
- [181] N. OTSU : A threshold selection method from gray-level histograms. In *IEEE transactions on systems, man, and cybernetics*, volume 9, pages 62–66, 1979. ISSN : 0018-9472 tex.-number : 1. 52, 55
- [182] T. W. RIDLER et S. CALVARD : Picture thresholding using an iterative selection method. In *IEEE transactions on systems, man, and cybernetics*, volume 8, pages 630–632, 1978. ISSN : 0018-9472, 2168-2909 tex.-number : 8. 52
- [183] J. KITTLER et J. ILLINGWORTH : Minimum error thresholding. *Pattern Recognition*, 19(1):41–47, 1986. 52, 55
- [184] J. N. KAPUR, P. K. SAHOO et A. K. C. WONG : A new method for gray-level picture thresholding using the entropy of the histogram. *Computer Vision, Graphics, and Image Processing*, 29(3): 273–285, 1985. 52, 55
- [185] K. W. JONES, H. FENG, S. TOMOV, W. J. WINTERS, M. PRODANOVIĆ et D. MAHAJAN : Characterization of methane hydrate host sediments using synchrotron-computed microtomography (CMT). *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 56(1):136–145, 2007. 52
- [186] E. LEHMANN, P. WYSS, A. FLISCH, P. VONTOBEL, M. KRAFCZYK, A. KAESTNER, F. BECKMANN, A. GYGI et H. FLÜHLER : Tomographical imaging and mathematical description of porous media used for the prediction of fluid distribution. *Vadose Zone Journal*, 5, 2006. 52
- [187] S. PETH, F. BECKMANN, T. DONATH, J. FISCHER et A. SMUCKER : Three-dimensional quantification of intra-aggregate pore-space features using synchrotron-radiation-based microtomography. *Soil Science Society of America Journal*, 72(4):897–907, 2008. 52
- [188] R. I. AL-RAOUSH et C. S. WILLSON : Extraction of physically realistic pore network properties from three-dimensional synchrotron X-ray microtomography images of unconsolidated porous media systems. *Journal of Hydrology*, 300(1):44–64, 2005. 52
- [189] W. OH et B. LINDQUIST : Image thresholding by indicator kriging. In *IEEE transactions on pattern analysis and machine intelligence*, volume 21, pages 590–602, 1999. ISSN : 1939-3539 tex.-number : 7. 52

- [190] A. KAESTNER, E. LEHMANN et M. STAMPANONI : Imaging and image processing in porous media research. *Advances in Water Resources*, 31(9):1174–1187, 2008. 53
- [191] J. FONSECA, C. O’SULLIVAN et M. R. COOP : Image segmentation techniques for granular materials. *In AIP conference proceedings*, volume 1145, pages 223–226, 2009. ISSN : 0094-243X. 53
- [192] M. FAESSEL et D. JEULIN : Segmentation of 3D microtomographic images of granular materials with the stochastic watershed. *Journal of Microscopy*, 239(1):17–31, 2010. 53
- [193] V. TARIEL, D. JEULIN, A. FANGET et G. CONTESSÉ : 3D multi-scale segmentation of granular materials. *Image Analysis and Stereology*, 27(5):23–28, 2008. 53
- [194] M. NEUMANN, R. CABISCOL, M. OSENBURG, H. MARKÖTTER, I. MANKE, J. H. FINKE et V. SCHMIDT : Characterization of the 3D microstructure of Ibuprofen tablets by means of synchrotron tomography. *Journal of Microscopy*, 274(2):102–113, 2019. 53
- [195] R. I. AL-RAOUSH : Microstructure characterization of granular materials. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 377(2):545–558, 2007. 53
- [196] J. ANGULO et D. JEULIN : Stochastic watershed segmentation. *In ISMM07 : Mathematical Morphology and its applications to Signal and Image Processing*, pages 265–276, 2007. 53
- [197] O. FURAT, M. WANG, M. NEUMANN, L. PETRICH, M. WEBER, C. E. III KRILL et V. SCHMIDT : Machine learning techniques for the segmentation of tomographic image data of functional materials. *Frontiers in Materials*, 6, 2019. 53
- [198] L. PETRICH, D. WESTHOFF, J. FEINAUER, D. P. FINEGAN, S. R. DAEMI, P. R. SHEARING et V. SCHMIDT : Crack detection in lithium-ion cells using machine learning. *Computational Materials Science*, 136:297–305, 2017. 53
- [199] P. NAYLOR, M. LAÉ, F. REYAL et T. WALTER : Nuclei segmentation in histopathology images using deep neural networks. *In IEEE 14th International Symposium on Biomedical Imaging (ISBI 2017)*, pages 933–936, 2017. 53
- [200] M. ABDOLI, H. SARIKHANI, M. GHANBARI et P. BRAULT : Gaussian mixture model based contrast enhancement. *IET Image Processing*, 9:569 – 577, 2015. 55
- [201] J. COOPER : *Contrôle de la formation de vacuoles dans les cristaux d’hexogène (RDX)*. Thèse de doctorat, Université de Rouen, Normandie, 2020. 63
- [202] J. SUN, X. SHU, Y. LIU, H. ZHANG, X. LIU, Y. JIANG, B. KANG, C. XUE et G. SONG : Investigation on the thermal expansion and theoretical density of 1,3,5-trinitro-1,3,5-triazacyclohexane. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 36(4):341–346, 2011. 64
- [203] T. D. SEWELL et C. M. BENNETT : Monte Carlo calculations of the elastic moduli and pressure-volume-temperature equation of state for hexahydro-1,3,5-trinitro-1,3,5-triazine. *Journal of Applied Physics*, 88(1):88–95, 2000. 64, 66
- [204] H. H. CADY : Coefficient of thermal expansion of pentaerythritol tetranitrate and hexahydro-1,3,5-trinitro-s-triazine (RDX). *Journal of Chemical & Engineering Data*, 17(3):369–371, 1972. 64
- [205] S. HAUSSÜHL : Elastic and thermoelastic properties of selected organic crystals : acenaphthene, trans-azobenzene, benzophenone, tolane, trans-stilbene, dibenzyl, diphenyl sulfone, 2,2’-biphenol, urea, melamine, hexogen, succinimide, pentaerythritol, urotropine, malonic acid, dimethyl malonic acid, maleic acid, hippuric acid, aluminium acetylacetonate, iron acetylacetonate, and tetraphenyl silicon. *Zeitschrift für Kristallographie - Crystalline Materials*, 216(6):339–353, 2000. 64, 65
- [206] A. PAL et C. R. PICU : Contribution of molecular flexibility to the elastic-plastic properties of molecular crystal alpha -RDX. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 25(1), 2017. 64, 65, 66
- [207] T. R. GIBBS et A. POPOLATO : *LASL explosive property data*. University of California Press, 1980. 65

- [208] R. B. SCHWARZ, D. E. HOOKS, J. J. DICK, J. I. ARCHULETA et A. R. MARTINEZ : Resonant ultrasound spectroscopy measurement of the elastic constants of cyclotrimethylene trinitramine. *Journal of Applied Physics*, 98, 2005. [65](#)
- [209] J. J. HAYCRAFT, L. L. STEVENS et C. J. ECKHARDT : The elastic constants and related properties of the energetic material cyclotrimethylene trinitramine (RDX) determined by Brillouin scattering. *The Journal of Chemical Physics*, 124(2), 2006. [65](#)
- [210] C. A. BOLME et K. J. RAMOS : The elastic tensor of single crystal RDX determined by Brillouin spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 116(18), 2014. [65](#), [66](#), [68](#), [106](#)
- [211] B. SUN, J. M. WINEY, N. HEMMI, Z. A. DREGER, K. A. ZIMMERMAN, Y. M. GUPTA, D. H. TORCHINSKY et K. A. NELSON : Second-order elastic constants of pentaerythritol tetranitrate and cyclotrimethylene trinitramine using impulsive stimulated thermal scattering. *Journal of Applied Physics*, 104(7), 2008. [65](#)
- [212] J. FAN, Y. SU, Q. ZHANG et J. ZHAO : Determination of second- and third-order elastic constants for energetic materials. *Computational Materials Science*, 161:379–384, 2019. [65](#), [66](#), [109](#)
- [213] M. LI, F. LI, R. SHEN et X. GUO : Molecular dynamics study of the structures and properties of RDX/GAP propellant. *Journal of Hazardous Materials*, 186(2):2031–2036, 2011. [65](#), [66](#)
- [214] K. J. RAMOS, D. E. HOOKS et D. F. BAHR : Direct observation of plasticity and quantitative hardness measurements in single crystal cyclotrimethylene trinitramine by nanoindentation. *Philosophical Magazine*, 89(27):2381–2402, 2009. [66](#), [67](#)
- [215] R. J. HUDSON, P. ZIOUPOS et P. P. GILL : Investigating the mechanical properties of RDX crystals using nano-indentation. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 37(2):191–197, 2012. [66](#), [180](#)
- [216] N. S. WEINGARTEN et R. C. SAUSA : Nanomechanics of RDX single crystals by force–displacement measurements and molecular dynamics simulations. *The Journal of Physical Chemistry A*, 119(35):9338–9351, 2015. [66](#), [67](#)
- [217] X. WANG, Y. WU et F. HUANG : Mechanical properties of HMX and RDX crystals determined by nanoindentation test. *In Proceedings of the 6th international conference on mechanics and materials in design*, 2015. [67](#)
- [218] D. E. HOOKS, K. J. RAMOS et A. R. MARTINEZ : Elastic-plastic shock wave profiles in oriented single crystals of cyclotrimethylene trinitramine (RDX) at 2.25GPa. *Journal of Applied Physics*, 100(2):024908, 2006. [67](#), [68](#)
- [219] J. D. CLAYTON et R. BECKER : Elastic-plastic behavior of cyclotrimethylene trinitramine single crystals under spherical indentation : Modeling and simulation. *Journal of Applied Physics*, 111(6):063512, 2012. [67](#)
- [220] S. DE, A. R. ZAMIRI et RAHUL : A fully anisotropic single crystal model for high strain rate loading conditions with an application to alpha-RDX. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 64:287–301, 2014. [67](#)
- [221] D. J. LUSCHER, F. L. ADDESSIO, M. J. CAWKWELL et K. J. RAMOS : A dislocation density-based continuum model of the anisotropic shock response of single crystal alpha-cyclotrimethylene trinitramine. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 98:63–86, 2017. [67](#)
- [222] F. L. ADDESSIO, D. J. LUSCHER, M. J. CAWKWELL et K. J. RAMOS : A single-crystal model for the high-strain rate deformation of cyclotrimethylene trinitramine including phase transformations and plastic slip. *Journal of Applied Physics*, 121(18):185902, 2017. [67](#)
- [223] R. G. CRAIG, J. D. EICK et F. A. PEYTON : Properties of natural waxes used in dentistry. *Journal of Dental Research*, 44(6):1308–1316, 1965. [69](#), [70](#)

- [224] M. E. HOSSAIN, C. KETATA et R. ISLAM : Experimental study of physical and mechanical properties of natural and synthetic waxes using uniaxial compressive strength test. *In Proceedings of the Third International Conference on Modeling, Simulation and Applied Optimization*, 2009. 69, 70
- [225] A. MANN, C. M. BÜRCEL et P. GROCHE : A modeling strategy for predicting the properties of paraffin wax actuators. *Actuators*, 7(4):81, 2018. 69, 70
- [226] L. BORNE : Particles of explosive of low sensitivity to shock and associated treatment process, 2006. 72, 207
- [227] L. BORNE, J. MORY et F. SCHLESSER : Reduced sensitivity RDX (RS-RDX) in pressed formulations : Respective effects of intra-granular pores, extra-granular pores and pore sizes. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 33(1):37–43, 2008. 73
- [228] R. SAUREL, O. LE MÉTAYER, J. MASSONI et S. GAVRILYUK : Shock jump relations for multi-phase mixtures with stiff mechanical relaxation. *Shock Waves*, 16(3):209–232, 2007. 73
- [229] R. A. KETCHAM et W. D. CARLSON : Acquisition, optimization and interpretation of X-ray computed tomographic imagery : applications to the geosciences. *Computers & Geosciences*, 27(4):381–400, 2001. 78
- [230] G. FRIEDEL : *Leçons de cristallographie par G. Friedel*. A. Hermann et fils, Paris, 1911. tex.copyright : domaine public. 79
- [231] G. MATHERON : *Estimating and choosing : an essay on probability in practice*. Springer Science & Business Media, 1989. 86
- [232] D. STOYAN, W. S. KENDALL et J. MECKE : *Stochastic geometry and its applications*. John Wiley & Sons, Chichester, 1995. 86
- [233] T. KANIT, S. FOREST, I. GALLIET, V. MOUNOURY et D. JEULIN : Determination of the size of the representative volume element for random composites : Statistical and numerical approach. *International Journal of Solids and Structures*, 40:3647–3679, 2003. 86
- [234] C. LANTUÉJOUL : Ergodicity and integral range. *Journal of Microscopy*, 161(3):387–403, 1991. 87
- [235] D. JEULIN : Power laws variance scaling of Boolean random varieties. *Methodology and Computing in Applied Probability*, 18(4):1065–1079, 2016. 88
- [236] E. KAESHAMMER, L. BORNE, F. WILLOT, P. DOKLÁDAL et S. BELON : Morphological characterization and elastic response of a granular material. *Computational Materials Science*, 190:110247, 2021. <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0927025620307382>. 88
- [237] R. E. MILES : On the elimination of edges effects in planar sampling. *In* E. F. HARDING et D. G. KENDALL, éditeurs : *Stochastic geometry : a tribute to the memory of Rollo Davidson*, pages 228–247. Wiley, London, 1974. 90
- [238] C. LANTUÉJOUL : On the estimation of mean values in individual of particles. *Microscopica Acta*, 5(266):73, 1980. 90
- [239] S. TORQUATO : *Random heterogeneous materials : microstructure and macroscopic properties*, volume 16. Springer Science & Business Media, 2013. 104
- [240] H. MOULINEC et P. SUQUET : A fast numerical method for computing the linear and non linear mechanical properties of composites. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences Série II*, 318:1417–1423, 1994. 104
- [241] R. A. LEBENSOHN, A. K. KANJARLA et P. EISENLOHR : An elasto-viscoplastic formulation based on fast Fourier transforms for the prediction of micromechanical fields in polycrystalline materials. *International Journal of Plasticity*, 32-33:59–69, 2012. 104
- [242] Y. CHEN, D. VASIUKOV, L. GÉLÉBART et C. H. PARK : A FFT solver for variational phase-field modeling of brittle fracture. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 349: 167–190, 2019. 104

- [243] J.-B. GASNIER, F. WILLOT, H. TRUMEL, D. JEULIN et J. BESSON : Thermoelastic properties of microcracked polycrystals. Part I : Adequacy of Fourier-based methods for cracked elastic bodies. *International Journal of Solids and Structures*, 155:248–256, 2018. [104](#)
- [244] T. MURA : *Micromechanics of defects in solids*. Mechanics of Elastic and Inelastic Solids. Springer Netherlands, 2ème édition, 1987. [104](#)
- [245] F. WILLOT : Fourier-based schemes for computing the mechanical response of composites with accurate local fields. *Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série Iib, Mécanique*, 343(3):232–245, 2015. [104](#)
- [246] A. AMBOS, F. WILLOT, D. JEULIN et H. TRUMEL : Numerical modeling of the thermal expansion of an energetic material. *International Journal of Solids and Structures*, 60–61:125–139, 2015. [106](#)
- [247] F. WILLOT, L. GILLIBERT et D. S. JEULIN : Microstructure-induced hotspots in the thermal and elastic responses of granular media. *International Journal of Solids and Structures*, 50(10):1699–1709, 2013. [107](#)
- [248] F. WILLOT, R. BRENNER et H. TRUMEL : Elastostatic field distributions in polycrystals and cracked media. *Philosophical Magazine*, 100:661–687, 2019. [107](#)
- [249] Z. HASHIN et S. SHTRIKMAN : A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 11(2):127–140, 1963. [107](#)
- [250] J. T. GOSTICK : Versatile and efficient pore network extraction method using marker-based watershed segmentation. *Physical Review. E*, 96(2-1):023307, 2017. [110](#)
- [251] A. BAUX, G. COUÉGNAT, O. CATY, D. LASSEUX, N. MANO et G. VIGNOLES : Digitizing porous gold electrodes using FIB-SEM analysis. In *Congrès Français de Mécanique*, Brest, 2019. [110](#)
- [252] W. E. LORENSEN et H. E. CLINE : Marching Cubes : A high resolution 3D surface construction algorithm. In *Proceedings of the 14th Annual Conference on Computer Graphics and Interactive Techniques*, pages 163–169. ACM, 1987. [113](#)
- [253] T. LEWINER, H. LOPES, A. W. VIEIRA et G. TAVARES : Efficient implementation of marching cubes' cases with topological guarantees. *Journal of Graphics Tools*, 8(2):1–15, 2003. [113](#)
- [254] C. L. LIN et J. D. MILLER : 3D characterization and analysis of particle shape using X-ray microtomography (XMT). *Powder Technology*, 154(1):61–69, 2005. [113](#)
- [255] S. J. BLOTT et K. PYE : Particle shape : a review and new methods of characterization and classification. *Sedimentology*, 55(1):31–63, 2008. [113](#)
- [256] J. KORSawe : Minimal bounding box around points in the (x,y,z) space. *MathWorks File Exchange*, 2015. [113](#)
- [257] C. K. WENTWORTH : A laboratory and field study of cobble abrasion. *The Journal of Geology*, 27:507–521, 1919. [115](#)
- [258] C. K. WENTWORTH : *A method of measuring and plotting the shapes of pebbles; a field study of the shapes of river pebbles*. U.S. Government Printing Office, 1923. [115](#)
- [259] H. KUENEN : Experimental abrasion of pebbles : 2. rolling by current. *The Journal of Geology*, 64:336–368, 1956. [115](#)
- [260] J. E. DOBKINS et R. L. FOLK : Shape development on Tahiti-Nui. *Journal of Sedimentary Research*, 40(4):1167–1203, 1970. [115](#)
- [261] G. LEES : A new method for determining the angularity of particles. *Sedimentology*, 3(1):2–21, 1964. [116](#)
- [262] C. RAO, E. TUTUMLUER et I. T. KIM : Quantification of coarse aggregate angularity based on image analysis. *Transportation Research Record : Journal of the Transportation Research Board*, 1787:117–124, 2002. [116](#), [117](#)

- [263] S. TAFESSE, J. M. ROBISON FERNLUND, W. SUN et F. BERGHOLM : Evaluation of image analysis methods used for quantification of particle angularity. *Sedimentology*, 60:1100–1110, 2013. [116](#), [117](#), [118](#)
- [264] E. A. MASAD, T. AL-ROUSAN, J. W. BUTTON, D. N. LITTLE et E. TUTUMLUER : Test methods for characterizing aggregate shape, texture, and angularity. *NCHRP Report*, 2007. [118](#)
- [265] X. YANG, S. CHEN et Z. YOU : 3D voxel-based approach to quantify aggregate angularity and surface texture. *Journal of Materials in Civil Engineering*, 29:04017031, 2017. [118](#), [119](#)
- [266] T. AL-ROUSAN, E. MASAD, E. TUTUMLUER et T. PAN : Evaluation of image analysis techniques for quantifying aggregate shape characteristics. *Construction and Building Materials*, 21: 978–990, 2007. [118](#)
- [267] E. MASAD et J. W. BUTTON : Unified imaging approach for measuring aggregate angularity and texture. *Computer-Aided Civil and Infrastructure Engineering*, 15:273–280, 2000. [119](#)
- [268] J. R. J. LEE, M. L. SMITH, L. N. SMITH et P. S. MIDHA : A mathematical morphology approach to image based 3D particle shape analysis. *Machine Vision and Applications*, 16(5):282–288, 2005. [119](#)
- [269] B. ZHAO et J. WANG : 3D quantitative shape analysis on form, roundness, and compactness with micro-CT. *Powder Technology*, 291:262–275, 2016. [119](#)
- [270] I. T. JOLLIFFE : *Principal component analysis*. Springer Series in Statistics. Springer-Verlag, New York, 2ème édition, 2002. [129](#)
- [271] R. B. CATTELL : The scree test for the number of factors. *Multivariate Behavioral Research*, 1(2):245–276, 1966. [129](#)
- [272] H. F. KAISER : A note on Guttman's lower bound for the number of common factors. *British Journal of Statistical Psychology*, 14(1):1–2, 1961. tex.copyright : 1961 The British Psychological Society. [129](#)
- [273] T. ZHANG : Solving large scale linear prediction problems using stochastic gradient descent algorithms. *In Proceedings of the Twenty-First International Conference on Machine Learning*, pages 919–926, 2004. [134](#)
- [274] J. FEDER : Random sequential adsorption. *Journal of Theoretical Biology*, 87(2):237–254, 1980. [139](#)
- [275] H. JOURDREN, J.-M. SIBEAUD et M. ADAMCZEWSKI-CAURET : Logiciel OURANOS : présentation générale et utilisation en détonique. *Revue Scientifique et Technique de la Défense*, 1995. [155](#)
- [276] E. KAESHAMMER : Étude de l'influence de la microstructure sur la sensibilité de compositions énergétiques : analyse d'images et simulations à partir de microtomographies. Stage de fin d'étude ENSTA Bretagne, CEA Gramat, 2017. [156](#)
- [277] W. F. NOH et P. WOODWARD : SLIC (Simple Line Interface Calculation). *In Proceedings of the Fifth International Conference on Numerical Methods in Fluid Dynamics*, Lecture Notes in Physics, pages 330–340, Berlin, Heidelberg, 1976. [156](#)
- [278] D. YOUNGS : An interface tracking method for a 3D Eulerian hydrodynamics code. Rapport technique, AWRE, 1984. [156](#)
- [279] R. L. BELL et Hertel E. S. : An improved material interface reconstruction algorithm for eulerian codes. Rapport technique, Sandia National Laboratories, 1992. [156](#)
- [280] M. GOGULYA, A. DOLGOBORODOV, M. BRAZHNIKOV et G. BAUDIN : Detonation waves in HMX/Al mixtures (pressure and temperature measurements). *In Eleventh international detonation symposium*, pages 979–988, 1998. [156](#)
- [281] M. S. MILLER : Thermophysical Properties of RDX. Rapport technique ARL-TR-1319, U.S. Army Research Laboratory, 1997. [157](#)

- [282] G. BAUDIN et M. GENETIER : Déflagration d'un explosif solide : simulation de sa propagation et des effets de souffle générés. Rapport technique, CEA Gramat, 2015. 157
- [283] G. I. TAYLOR et H. QUINNEY : The latent energy remaining in a metal after cold working. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 143(849):307–326, 1934. 157
- [284] J. ZUKAS : *Introduction to hydrocodes*. Elsevier, 2004. 157
- [285] D. RITTEL, L. H. ZHANG et S. OSOVSKI : The dependence of the Taylor–Quinney coefficient on the dynamic loading mode. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 107:96–114, 2017. 157
- [286] J. WINEY, G. DUVALL, M. KNUDSON et Y. M. GUPTA : Equation of state and temperature measurements for shocked nitromethane. *The Journal of Chemical Physics*, 113:7492–7501, 2000. 181
- [287] T. D. SEWELL et R. MENIKOFF : Complete Equation of State for β -HMX and Implications for Initiation. In *Shock compression of condensed matter*, volume 706, pages 157–162, 2003. 181
- [288] P. MATEILLE : *Analyse multi-échelle des phénomènes d'endommagement d'un matériau composite de type propergol, soumis à un impact de faible intensité*. These de doctorat, Montpellier 2, 2010. Disponible en ligne https://ged.biu-montpellier.fr/florabium/jsp/win_main_biu.jsp?nnt=2010MON20221&success=%2Fjsp%2Fwin_main_biu.jsp&profile=anonymous. 185
- [289] Y. LONGUEVILLE : Mise au point d'une méthode expérimentale pour l'étude de la sensibilité à l'onde de choc des explosifs. Rapport technique, Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis, 1973. 185
- [290] Y. LONGUEVILLE : Description d'un mode opératoire standard pour l'étude de la sensibilité des explosifs condensés à l'onde de choc. Application à une composition coulée. Rapport technique, Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis, 1974. 185
- [291] Y. LONGUEVILLE, C. FAUQUIGNON et H. MOULARD : Sensibilité de divers explosifs à une onde de choc caractérisée en durée et pression. Rapport technique, Institut de recherches franco-allemand de Saint-Louis, 1976. 185
- [292] Jean-Luc ZINSZNER : *Identification des paramètres matériau gouvernant les performances de céramiques à blindage*. Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 2014. Disponible en ligne http://docnum.univ-lorraine.fr/public/DDOC_T_2014_0337_ZINSZNER.pdf. 185, 186, 187
- [293] G. T. GRAY : Influence of shock-wave deformation on the structure/property behavior of materials. In J. R. ASAY et M. SHAHINPOOR, éditeurs : *High-Pressure Shock Compression of Solids*, High-Pressure Shock Compression of Condensed Matter, pages 187–215. Springer, New York, NY, 1993. 185, 186
- [294] N. K. BOURNE, W. H. GREEN et D. P. DANDEKAR : On the one-dimensional recovery and microstructural evaluation of shocked alumina. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 462(2074):3197–3212, 2006. 185, 186
- [295] J. PONSONNAILLE : Récupération d'échantillons au cours d'impact de plaque - Première campagne d'essais : résultats et analyse. Rapport technique, Dynalis, 1996. 185, 186, 187
- [296] H. TRUMEL, F. DAVOINE, E. BERTHAUT et L. GAUTIER : Mise au point d'une technique de récupération d'échantillons explosifs après choc plan. Rapport technique, Direction Générale pour l'Armement, Centre d'Etude de Gramat, 1999. 185, 186, 187
- [297] S. P. MARSH : *LASL shock hughoniot data*. Berkeley : University of California Press, 1980. 187
- [298] O. RONNEBERGER, P. FISCHER et T. BROX : U-Net : Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation. In *Medical Image Computing and Computer-Assisted Intervention*, 2015. 211

RÉSUMÉ

La sensibilité au choc d'un matériau énergétique est liée à sa microstructure. L'onde de choc interagit avec la microstructure en créant des sauts de pression et des hausses de température localisés que l'on appelle points chauds. Ces points chauds sont de potentiels sites d'initiation de la détonation. L'objectif de thèse est d'étudier l'influence de différents paramètres microstructuraux sur la sensibilité au choc d'un matériau énergétique.

Dans un premier temps, les microtomographies de trois matériaux RDX/Cire (70/30 en masse) sont étudiées. Ces trois matériaux sont identiques en termes de composition mais diffèrent par leur microstructure ainsi que par leur seuil d'amorçage en détonation. Les microtomographies sont filtrées et segmentées avant d'être caractérisées. La caractérisation permet d'identifier et de quantifier les différences de granulométries, distributions spatiale, formes des grains, points de contact entre les grains et réponses élastiques des 3 matériaux. Chaque grain labellisé est ensuite étudié individuellement (volume, surface, rayon moyen, sphéricité, convexité, angularité) et extrait pour former une bibliothèque de grains. Les résultats d'analyse d'images sont comparés avec des mesures expérimentales pour vérifier la validité de l'outil de segmentation mis en œuvre.

Dans un second temps, des microstructures virtuelles sont générées à partir de la bibliothèque de grains réels afin de contrôler les caractéristiques des grains présents dans le matériau virtuel et d'isoler les effets de différents paramètres microstructuraux, tout en respectant la granulométrie et la distribution spatiale du matériau réel. Des simulations numériques dynamiques ont mis en évidence le rôle des défauts intra-granulaires ainsi que des points de contact entre les grains dans la localisation des contraintes et la formation de points chauds. L'importance des points de contact entre les grains était déjà pressentie à la suite de calculs FFT élastique quasi statique.

Parallèlement à ce travail numérique, des expériences de récupération sous choc ont été mises au point et réalisées à l'ISL. Les échantillons endommagés sont microtomographiés. Les premières observations visuelles révèlent d'importantes fissurations et décohésions pour des pressions de choc bien inférieures au seuil d'amorçage de la détonation.

MOTS CLÉS

microstructure granulaire, microtomographie, traitement d'images, segmentation, angularité, simulations FFT, simulations dynamiques, échelle mésoscopique

ABSTRACT

Shock sensitivity of explosive formulations is linked to their microstructure. Shock waves interact with the heterogeneities of the microstructure which lead to localized increase of pressure and temperature called hot spots. The hot spots can potentially initiate the detonation. The objective of the PhD thesis is to study the influence of different microstructural parameters on the sensitivity to shock of energetic materials.

First, the micro-computed tomography images of three RDX/Wax materials (70/30 in weight) are studied. These three materials have the same composition but different microstructures and different sensitivity to shock. The micro-computed tomography images are filtered, segmented and characterized. The characterization allows the identification and quantification of the differences between the three materials: granulometry, spatial distribution, grains shape, contact points between grains and elastic response to deformation. Then, each labeled grain is extracted and characterized with several descriptors (volume, surface, mean radius, sphericity, angularity) to create a library of grains. The results of image analysis are compared with experimental data to evaluate the effectiveness of the segmentation tool.

Then, virtual microstructures are generated with the library of grains. It allows to control the characteristics of the grains implanted in the virtual material and to isolate the effects of some microstructural parameters, while respecting the particle size and spatial distribution of the real material. Dynamic numerical simulations have demonstrated the importance of the intra-granular defects and of the contact points between the grains in the localization of stresses and the formation of hot spots. The role of the contact points between the grains was already highlighted in FFT elastic quasi-static simulations.

In addition to this numerical work, shock recovery experiments were developed and performed at the ISL. Damaged RDX/Wax samples were imaged with micro-computed tomography. The first visual inspections reveal numerous cracks in the grains and an important grain-wax decohesion for shock pressure largely under the detonation threshold.

KEYWORDS

granular microstructure, micro-computed tomography, image processing, segmentation, angularity, FFT simulations, dynamic simulations, mesoscopic scale