

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
Centre de Bruyères-le-Châtel

Groupe Hautes Pressions

4/4/63

ETUDE SYSTEMATIQUE
D'UN APPAREIL GENERATEUR DE HAUTES PRESSIONS STATIQUES DANS UN MILIEU SOLIDE

• • •

Le "Belt" à pistons tronconiques

M. CONTRE

" Intrandum est in rerum naturam et
penitus quid ea postulet,
pervidendum".

CICERON, (De finibus V. 16)

- PLAN DE L'ETUDE -

- I.- Introduction
- II.- Constitution d'une cellule haute pression
- 1°/ Le corps cylindrique
 - 2°/ Les joints
 - 3°/ Choix d'une substance pour la cellule
- III.- Etude systématique
- 1°/ Intérêt et but d'une telle étude
 - 2°/ Description de l'appareil utilisé
 - 3°/ Montage expérimental adopté
 - 4°/ Mode opératoire
 - 5°/ Résultats expérimentaux - Discussion.
- IV.- Conclusion.

S O M M A I R E

L'introduction d'un milieu transmetteur solide dans le domaine des hautes pressions statiques, due en grande partie aux travaux de P.W. BRIDGMANN, ne s'est produite que tardivement. Des considérations de compressibilité et de friction interne président au choix de ce milieu solide.

Ce choix fait, il importe de connaître l'influence de différents paramètres sur le comportement de la cellule haute pression, afin de se placer dans les meilleures conditions de rendement.

La reproductibilité de la pression est aussi très importante pour l'établissement d'une courbe d'étalonnage, d'où l'intérêt d'étudier le mécanisme de formation des joints et la stabilité.

Une étude systématique de ces problèmes, tout en portant sur un matériel bien défini, permet de tirer des conclusions générales.

I.- INTRODUCTION

Les très hautes pressions statiques présentent un intérêt indéniable, tant pour la recherche scientifique que pour l'industrie. Pour beaucoup, leur importance est liée à la réussite de la synthèse du diamant ; c'est pourtant là un aspect bien restreint. En Physique, en Chimie, en Géophysique, en Médecine, même, leur contribution est aussi fructueuse que celle des hautes températures, des ultravides ou des sources à hautes énergies.

Certains laboratoires sont d'ores et déjà parvenus à maintenir des substances à des pressions égales et même supérieures à 200.000 atmosphères. Dans de telles conditions, les forces d'interaction atomique de la plupart des solides sont contrebalancés. L'action combinée de la température permet d'obtenir de nombreuses transformations et synthèses qui, parfois, sont thermodynamiquement stables dans les conditions normales : la synthèse du diamant en est un exemple. La réalisation de matériaux plus durs permet aussi le perfectionnement des appareils générateurs des hautes pressions eux-mêmes.

L'obtention de ces pressions nécessite un appareillage parfaitement étudié du fait des contraintes énormes auxquelles il est soumis. La littérature donne de nombreux exemples de réalisation, mais la plupart du temps, les tours de mains et les particularités de montage sont passés sous silence. Pour éviter un tâtonnement hasardeux et un choix empirique des paramètres, nous avons entrepris une étude systématique qui, tout en faisant le point sur les possibilités d'un appareil bien déterminé, doit nous permettre de tirer des conclusions plus générales.

La réalisation de pressions élevées et par surcroît hydrostatiques, au sein d'un solide n'est à priori pas très logique. Des trois états : gazeux, liquide, et solide, le plus dense et le moins hydrostatique est le dernier. Ainsi, l'eau à la température ambiante bout sous une pression de 20 mm de mercure, devient liquide à la pression normale et solide sous 7 à 8 000 atmosphères. L'état solide apparaît donc comme le résultat final d'une compression.

Gaz et liquides transmettent la pression d'une manière parfaitement hydrostatique et c'est à eux que l'on pense tout d'abord comme milieu transmetteur des pressions. Leur utilisation présente néanmoins de grosses difficultés notamment en ce qui concerne l'étanchéité des cellules. La pression est réalisée le plus souvent au moyen du déplacement d'un piston dans un cylindre. Les charges appliquées sur le piston sont forcément limitées par la tenue mécanique de celui-ci. Pratiquement on ne peut guère dépasser 30.000 kg/cm² dans ce genre d'appareil.

C'est au Dr P.W BRIDGMAN que l'on doit l'originalité de l'introduction dans ce domaine du milieu solide. Bien d'autres savants avant lui ont essayé de soumettre des solides, notamment des poudres à des compressions : WARTMANN, (1859) AMAGAT (1869). SPRING (1880) fut des premiers à atteindre des pressions de l'ordre de 7.000 kg/cm² ; avant BRIDGMAN, la pression la plus élevée atteinte, ne dépassait pas 10.000 kg/cm² (1904) EVE et ADAMS obtinrent 22.000 kg/cm² en 1907. C'est donc à juste titre que l'on qualifie BRIDGMAN de "pionier" car son oeuvre dans le domaine des hautes pressions est colossale. Rappelons qu'elle lui a valu le Prix Nobel de Physique en 1946. Grâce à l'enclume *

* Enclume : terme couramment utilisé pour désigner les parties d'un appareil qui sont directement en contact avec la zone de très haute pression.

qui porte son nom, il a atteint des pressions de l'ordre de 200.000 kg/ cm². Son appareil, simple, se composait de deux pistons tronçonniques qui, dans leur déplacement l'un vers l'autre, comprimaient un disque de catlinite (pipestone) contenant l'échantillon (fig. 1).

Cet appareil fut repris et modifié par différents chercheurs. HALL lui fit subir, lui aussi, un certain nombre de transformations qui le firent aboutir à l'appareil dit "Belt" (fig. 2)⁽²⁾ instrument de la réussite de la synthèse du diamant en 1953. Avec ce genre d'appareil on dépasse couramment la pression de 100.000 kg/ cm² dans un volume de quelques millimètres cube.

DRIGKAMER a porté cette limite à 600 000 kg/cm² avec un appareil dérivé de l'enclume de BRIDGMAN, mais, dans un volume plus faible (fig. 3)⁽²⁾.

L'introduction du milieu solide dans le domaine des hautes pressions a effectué une véritable révolution puisque la limite supérieure des pressions obtenues en laboratoire est passée de quelques milliers d'atmosphères à des centaines de milliers. Les progrès réalisés en métallurgie sur les aciers spéciaux et les matériaux nouveaux, très durs, tel que le carbure de tungstène, l'alumine fritté et le borazon, ont également contribué à étendre le domaine de ces pressions.

A noter que les matériaux qui entrent dans la composition des enclumes travaillent à des taux très supérieurs à leur résistance à la compression qui est au mieux pour les aciers très durs 250 kg/mm² et pour le carbure de tungstène 400 kg/mm².

Comment se fait-il alors que l'on puisse réaliser des pressions plus de 10 fois supérieures à leur limite ?

C'est ce que nous verrons plus loin.

II.- CONSTITUTION D'UNE CELLULE HAUTE PRESSION

Parmi les nombreux appareils générateurs de haute pression nous allons examiner l'âme du dispositif imaginé par le Dr H.T. HALL : le "Belt" (*). Nous ne décrirons pas en détail cet appareil (fig. 2) qui est constitué de 2 enclumes ou pistons (P_1), (P_2) qui se déplacent l'un vers l'autre en comprimant une cellule (C) enserrée dans une chambre annulaire (A). Pistons et chambre sont en carbure de tungstène.

La cellule (fig.4) qui nous intéresse plus particulièrement ici, peut être décomposée en trois parties.

- le joint supérieur
- le corps cylindrique
- le joint inférieur.

l'ensemble est de révolution autour de yy' et présente une symétrie par rapport au plan perpendiculaire à yy' en O.

Le corps cylindrique renferme le volume laboratoire.

Nous parlerons plus loin des matériaux qui entrent dans la fabrication de cette cellule. A priori, disons qu'il s'agit d'un agglomérat de grains très fins et durs. Ce solide est le milieu transmetteur de la pression.

Sous l'action des efforts axiaux F_1 , F_2 , les pistons P_1, P_2 compriment l'ensemble de la cellule et se rapprochent l'un de l'autre. Le frottement des grains du solide entre eux - "friction interne" - et le frottement de ces mêmes grains sur les surfaces des enclumes et de la chambre créent un gradient de pression. Cello-ci augmente progressivement de l'extérieur vers l'intérieur: c'est ce que nous cherchions.

(*) "Belt" mot anglais qui signifie ceinture, anneau.

De ces seules considérations, nous pouvons tirer quelques remarques propres à améliorer le fonctionnement des différents éléments :

1°/ Le corps cylindrique

Il a pour rôle essentiel de transmettre la pression d'une façon la plus hydrostatique possible. Il faudra choisir, par conséquent, un matériau qui ne transmet pas les efforts de cisaillement donc à faible coefficient de friction interne * . Cette condition ne peut être réalisée dans les solides qu'avec une certaine approximation. De ce fait, il devient nécessaire d'avoir un milieu peu compressible afin que les déformations non élastiques de celui-ci n'entraînent pas de trop grandes déformations de l'échantillon.,

Sans plus de détails nous donnons ci-après la liste des principales caractéristiques d'un milieu transmetteur de pression : il doit :

- Transmettre la pression d'une manière hydrostatique.
- Avoir une compressibilité faible.
- Avoir une très faible conductivité thermique
- Avoir une très faible conductivité électrique
- Avoir un point de fusion élevé qui, de plus, augmente avec la pression.
- Etre chimiquement inerte.
- Etre thermiquement stable.
- Etre stable à la pression.
- S'usiner facilement.
- Etre transparent aux rayons X (éventuellement)

Coefficient de friction interne = c'est ici, le rapport de la contrainte de cisaillement sur une section à la pression exercée sur cette section

Nous reviendrons plus loin sur le choix de ce matériau.

Il apparaît aussi nécessaire que le corps cylindrique soit parfaitement contenu, ce sera le rôle des joints.

2°/ Les joints (3)

Leur fonction, très importante, est triple :

a) Ils contiennent énergiquement le corps central et

l'empêche de fluer. Il ne peuvent remplir cette mission que s'ils sont peu compressibles et s'ils s'accrochent suffisamment, par frottement, sur les surfaces des enclumes et de la chambre.

b) Ils ne doivent pas empêcher l'avance des pistons.

Ceci n'est concevable que s'ils sont compressibles ou s'ils ont la possibilité de fluer. Leur écrasement devra être suffisant pour permettre la montée en pression du corps central avec un rendement k maximum.

$$k = \frac{\text{Effort réel exercé sur le corps central}}{\text{Effort total exercé sur l'appareil}}$$

c) Ils doivent supporter les pistons ou enclumes

C'est là le point essentiel qui permet justement de faire travailler les matériaux bien au delà de leur limite de résistance. En effet, l'effort d'écrasement des joints a pour résultat un autofrettage des pistons, autofrettage qui les rend plus résistants et plus durs. Ainsi, le gradient de pression réalisé dans le joint ne présente pas de trop fortes discontinuités. Les efforts importants auxquels sont soumis les pistons, vont en décroissant progressivement lorsqu'on s'éloigne de l'axe de révolution. Ce gradient dépend à la fois

- TABLEAU I. -

COEFFICIENT DE FRICTION INTERNE DE DIVERSES SUBSTANCES

A 25.000 kg/cm²

Oxyde de fer	en poudre	0,71
Oxyde de zinc	"	0,58
Pierre ponce	"	0,52
Oxyde chromique	"	0,50
Pyrophyllite	"	0,25
Pyrophyllite en bloc	"	0,47
Brique	"	0,47
Bioxyde de plomb	"	0,46
Bioxyde de manganèse	"	0,46
Bioxyde de titane	"	0,45
Trioxyde de molybdène	"	0,42
Oxyde d'étain	"	0,41
Carbure de Bore	"	0,40
Alumine	"	0,39
Micro poussières	"	0,37
Hydroxyde de calcium	"	0,27
Permagel	"	0,18
Acide borique	"	0,14
KCl	"	0,12
NaCl	"	0,12
Mica en feuille	"	0,07
Nitruure de bore	"	0,07
Graphite	"	0,04
Bisulfure de molybdène	"	0,04
Chlorure d'argent	"	0,03
Indium en feuille	"	0,01

des dimensions et des caractéristiques mécaniques du matériau des joints. Là encore, un choix judicieux s'impose quant à la matière, nous y reviendrons plus loin.

A ces trois rôles importants, il faut en ajouter un quatrième qui est l'isolation électrique car les pistons et la chambre servent souvent d'amenées de courant.

Nous allons rechercher maintenant les matériaux susceptibles de satisfaire au mieux aux exigences ci-dessus;

3°/ Choix d'une substance pour la cellule

De nombreuses études ont été faites dans le but de déterminer les caractéristiques sous pression de diverses substances susceptibles de servir de milieu transmetteur de la pression ou de matière première pour les joints.

Des mesures de résistance au cisaillement ont été faites par P.W BRIDGMANN et R.H WENTORF. Elles ont montré que cette résistance augmentait avec la pression (fig. 5)². HYDE et CHO ont montré qu'on pouvait en déduire les efforts de friction interne sous pression. Les valeurs obtenues à 25.000 kg/cm² sont consignées dans le tableau I.

Pour fabriquer les joints, on utilise des substances dont le coefficient de friction interne est de l'ordre de 0,25 à 0,50. Pour le milieu transmetteur de la pression, on utilise des substances à coefficient de friction plus faible (fig. 6)³. Malheureusement, leur compressibilité est bien souvent trop forte. Un compromis doit être fait et l'on prend la plupart du temps le même matériau que pour les joints en se contentant d'enrober l'échantillon d'une substance à coefficient de friction interne plus faible.

Pour améliorer les performances des joints, on augmente leur frottement sur les enclumes et la chambre en les recouvrant d'une couche d'oxyde de fer (rouge d'Angleterre) produit qui est en tête du tableau I. Pour bien contenir le corps central, le joint doit, à priori, être de faible épaisseur, mais on limite du même coup la course des pistons et par là, les dimensions de la chambre. Pour augmenter ces dernières, on a recours au joint dit "sandwich" dans lequel une coupelle de métal est interposée entre deux joints de faible épaisseur (1,5 à 2mm) taillés dans la substance choisie pour transmettre la pression. On peut multiplier ainsi le nombre de couches et la nature des matériaux composants sans oublier de badigeonner les surfaces en contact avec du rouge * (fig. 10).

Le tableau II donne les compressibilités de différentes substances mesurées par P.W BRIDGMAN (1)

Dans notre étude, nous avons choisi comme matériau pour nos cellules : la Pyrophyllite *. C'est un genre de lave que l'on trouve dans le Transvaal (près de Johannesburg) en Californie, au Tennessee, et également en Suisse. Sa composition est consignée dans le tableau III (2) Elle se présente sous la forme de blocs à grains très fins et doux au toucher, elle est facilement usinable et est un bon isolant électrique ($\rho = 85 \cdot 10^6 \Omega \text{cm}$) et thermique (1,002 à 0,011 cal °C⁻¹ sec⁻¹ cm⁻¹). Sa densité est de 2,8.

* La rouge d'Angleterre est mis en suspension dans de l'acétone ou de l'eau avant d'être appliqué au pinceau.

* Pyrophyllite : du grec pyro = feu, phyllon = feuille, et lithos = pierre

- TABLEAU II -

Compressibilité de divers minéraux sous pression

Nature	Compressibilité linéaire p en kg/cm ²
<u>Catlinite</u> (pipestone)	$\frac{\Delta l}{l_0} = 6,50 \cdot 10^{-7} p - 5,81 \cdot 10^{-2} p^2 \quad \text{à } 30^\circ\text{C}$ $\frac{\Delta l}{l_0} = 6,89 \cdot 10^{-7} p - 5,81 \cdot 10^{-2} p^2 \quad \text{à } 75^\circ\text{C}$
<u>Calcaire réfractaire</u> (Solenhofen Limestone)	$\frac{\Delta l}{l_0} = 4,46 \cdot 10^{-7} p \quad \text{à } 30^\circ\text{C}$ $\frac{\Delta l}{l_0} = 4,64 \cdot 10^{-7} p \quad \text{à } 75^\circ\text{C}$
<u>Basalt</u>	$\frac{\Delta l}{l_0} = 3,2 \cdot 10^{-7} p - 4,47 \cdot 10^{-12} p^2 \quad \text{à } 30^\circ\text{C}$
<u>Talc</u>	$\frac{\Delta l}{l_0} = 6,3 \cdot 10^{-7} p - 10,76 \cdot 10^{-12} p^2 \quad \text{à } 30^\circ\text{C}$ <p align="center">// aux plans de clivage</p> $\frac{\Delta l}{l_0} = 5,69 \cdot 10^{-7} p - 5,49 \cdot 10^{-12} p^2 \quad \text{à } 30^\circ$ <p align="center">⊥ aux plans de clivage</p>

D'après BRIDGMANN - Ref.6

- TABLEAU III -

COMPOSITION DE LA PYROPHYLLITE D'AFRIQUE

Silice	54-56 % en poids
Alumine	32-33
Oxyde de Titane	2,0 -2,6
Oxyde Ferrique	0,6-2,4
Chaux	0,3-0,7
Magnésie	0,36-0,78
Produit volatil	6,5-6,8
Sulfures	0,06-0,17

Formule générale : $Al_2 O_3 \cdot 4SiO_2 \cdot H_2O$

Son point de fusion 1.400°C à la pression ordinaire, augmente avec la pression (fig. 7). R.H WENTORF a étudié en détail le comportement thermique de la pyrophyllite (fig.8) ; nous retiendrons seulement que son utilisation est possible jusqu'à 2.500°C à 50.000 kg/cm^2 .

III.- ETUDE SYSTEMATIQUE

I°) Intérêt et but d'une telle étude .

Dans les paragraphes précédents, nous avons donné quelques notions sur la technique des hautes pressions et nous avons mis en évidence un certain nombre de conditions plus ou moins contradictoires relatives au fonctionnement des joints. Nous avons notamment examiné leurs différentes fonctions mais ce seul examen ne nous renseigne pas sur les dimensions à leur donner. Or, c'est justement cette question qui se pose lorsqu'on se trouve en présence d'un appareil générateur de hautes pressions. Comment choisir les dimensions des éléments pour avoir le rendement maximum ? Bien sûr, quelques publications américaines, russes, anglaises permettent de dégrossir le problème, quoique dans la plupart des cas, on semble avoir procédé par tâtonnements et sans méthode. Le but de cette étude est justement de faire la lumière sur les possibilités et les limites des joints dont le rôle est primordial dans une cellule haute pression.

Le reproche que l'on peut, d'ores et déjà faire à une telle étude, est son manque de généralité. Elle ne sera pas générale, car elle aura été faite sur un appareil bien particulier et un matériau bien défini (pyrophyllite). Néanmoins nous nous sommes efforcé, dans la mesure du possible, de nous placer dans le cas des cellules les plus courantes et de tirer des conclusions générales chaque fois que c'était possible.

2°) Description de l'appareil utilisé (photo I)

L'appareil utilisé est analogue au "Belt" de H.T HALL. Il en est une version simplifiée (fig. 9); tout en lui étant chronologiquement ultérieur. Les pistons sont tronconiques et la chambre possède deux parties coniques et une partie cylindrique. L'ensemble est en carbure de tungstène à 3% de cobalt, fretté par des couronnes concentriques en acier. Nous verrons que certains résultats et conclusions de notre étude nous amèneront à prévoir des modifications propres à augmenter les performances de cet appareil, et à nous rapprocher du "Belt" initial.

3°) Montage expérimental adopté

a) Caractéristiques des joints utilisés

Afin de limiter au maximum les paramètres, nous avons adopté un joint simple entièrement en pyrophyllite. Toutefois, pour prévenir la destruction du joint à sa périphérie, nous le soutenons par une bague de téflon. Le téflon étant beaucoup plus compressible et moins résistant que la pyrophyllite, a une influence insignifiante sur les mesures. Son épaisseur radiale est de 2 mm dans tous les essais. (fig. II). Nous ferons varier le diamètre extérieur et l'épaisseur de pyrophyllite de ce joint "mixte".

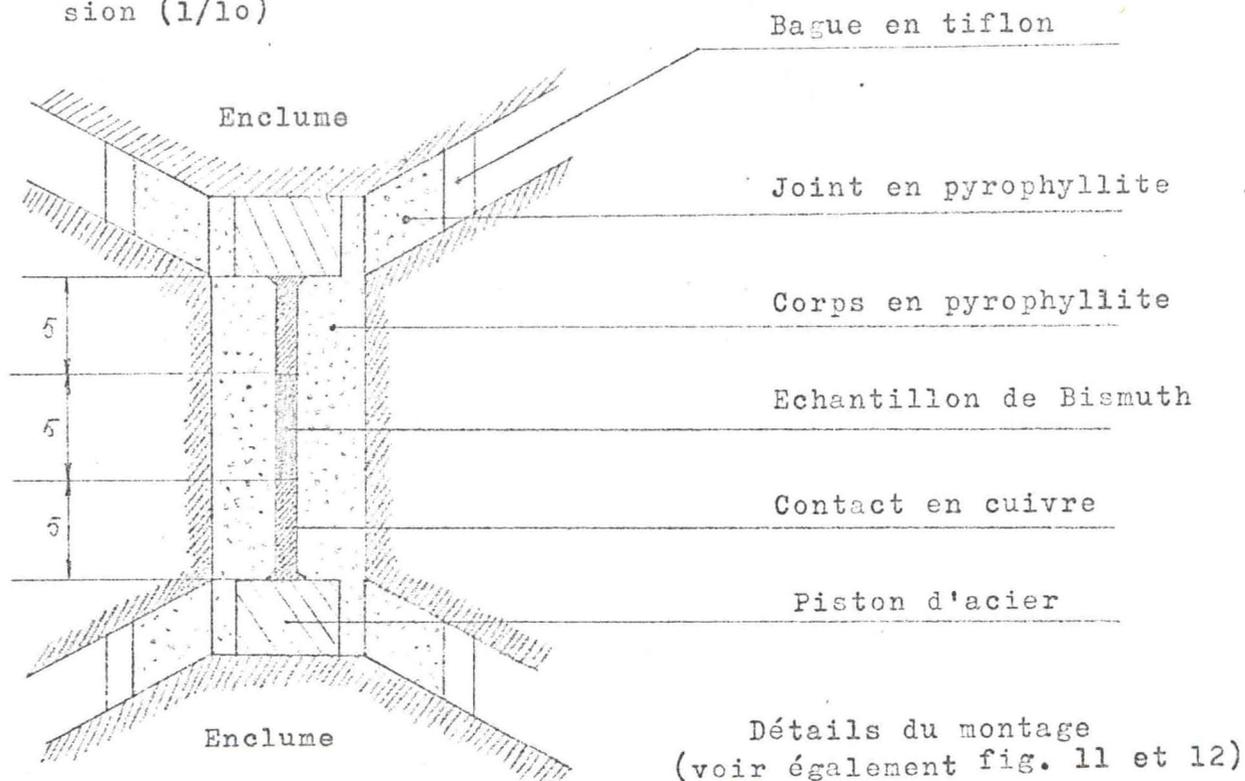
b) Description du corps cylindrique

Il est usiné dans de la pyrophyllite (fig. I2). Il est percé d'un trou de \varnothing 0,15 mm et comporte deux logements cylindriques.

L'échantillon (en bismuth) est coulé dans le trou central de \varnothing 0,15 mm (temp. de fusion du bismuth : 271,3°C). Sa longueur est de 5 mm. De part et d'autre de l'échantillon l'échantillon .../...

de bismuth, sont placés 2 contacts en cuivre de même ϕ et de 5 mm de long. L'ensemble Bi + 2 contacts à une hauteur de 15 mm soit la hauteur de la partie cylindrique de la chambre (fig.9).

Les deux logements terminaux sont conçus pour recevoir des petits pistons en acier dur, dont le ϕ sera toujours de 8 mm mais dont l'épaisseur sera celle du joint utilisé. L'ensemble joints et corps doit être usiné avec une bonne précision (1/10)



c) Assemblage

Le corps cylindrique préalablement enduit de molikote (lubrifiant à base de S_2Mo) est introduit dans le chambre dont les parties coniques sont enduites de rouge. Les joints, enduits de rouge également, sont ensuite mis en place. L'appareil une fois fermé est prêt. La presse utilisée est une presse Ciblat-et Foubert de 600t) (photo 2)

4°) Mode opératoirea) Principe

Pour pouvoir apprécier l'efficacité des joints, il faut pouvoir lier la force appliquée sur l'appareil, à la pression effective qui règne à l'intérieur de la chambre. Ce problème est résolu couramment dans le domaine des hautes pressions grâce aux transformations allotropiques connues de certains métaux. Le tableau ci-dessous donne les valeurs de la pression pour lesquelles on obtient ces transformations (ou transitions).

	Bi _{I→II}	Bi _{III→IIII}	Tl _{III→IIII}	Cs	Ba	Bi _{VI→VIII}
Pression en kb	25,3	26,8	37	42	59	89

Les courbes d'étalonnage obtenues à partir de ces pressions de transition sont sensiblement des droites (fig I3) Leur extrapolation vers les charges nulles coupe l'axe OP en un point différent de l'origine 0 ; ceci est dû au fait qu'en dessous d'une certaine valeur de la pression, la fonction qui lie P à la charge est plus ou moins complexe. Donc, pour pouvoir définir la pente de la partie rectiligne, il faut connaître deux points M (F_M, P_M) et N (F_N, P_N), choisis aussi éloignés l'un de l'autre que possible. Le point M (F_M, P_M), (fig. I3) nous permet d'apprécier la rapidité avec laquelle la pression P est atteinte. La pente de la droite OM doit être maximum.

$$m = \frac{P_M}{F_M} \text{ maximum.}$$

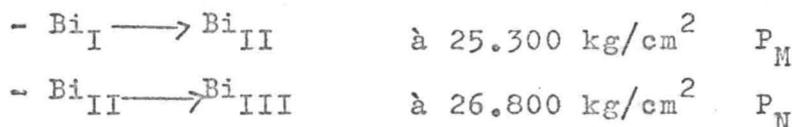
Le point N (F_N, P_N), nous permet d'apprécier la facilité avec laquelle évolue la pression à partir du point M. La pente de la droite MN doit être maximum.

$$\eta = \frac{P_N - P_M}{F_N - F_M} = \frac{\Delta P}{\Delta F} \text{ maximum}$$

Les qualités d'un système de joint peuvent donc être définies à partir des deux rapports :

$$m = \frac{P_M}{F_M} \quad (1) \quad \text{et} \quad \eta = \frac{\Delta P}{\Delta F} \quad (2)$$

Des considérations de commodité, de rapidité et de simplicité nous ont amené à choisir le bismuth comme métal de transition pour repérer la pression interne. De plus, ce métal présente 2 transformations allotropiques à deux pressions qui diffèrent de $1,500 \text{ kg/cm}^2$ (ΔP)



ce qui est très intéressant car un montage unique nous permet de connaître m et η .

Les nombreuses expériences effectuées nous ont permis d'étudier un certain nombre de paramètres en fonction du diamètre ϕ et de l'épaisseur e des joints.

b) Mesures

Les transitions allotropiques du Bi ont été repérées grâce à la variation de résistivité concomitante. On a enregistré pour cela la résistance apparente de l'échantillon par le montage de la figure I4. Les mesures ont été faites à la température ambiante (23°C environ).

c) Mode d'application de la charge - les cycles.

De nombreuses expériences antérieures à cette étude nous ont permis de nous rendre compte de l'importance des cycles : montée et descente en pression. Leur nombre et leur amplitude ont une incidence directe sur la reproductibilité et la stabilité de la courbe d'étalonnage. L'amplitude, c'est-à-dire la charge maximum appliquée sur l'appareil à la première montée en pression

intervient dans la formation des joints et doit, de ce fait, être suffisante. De même, la décompression qui suit ne doit pas être complète pour éviter le relâchement total des joints, relâchement dû en partie à la non-élasticité de la pyrophyllite.

Dans les essais qui intéressent notre étude, nous avons limité l'amplitude de la première montée à 136 tonnes. La décompression a été arrêtée immédiatement après la fin de la transition inverse $Bi_{II} \rightarrow Bi_I$.

Les quatre montées suivantes ont eu des amplitudes successives croissantes : 182, 204, 227 tonnes. Le fait d'avoir pris des amplitudes croissantes présente un inconvénient car il nuit à la stabilisation ; par contre, il permet de se rendre compte de l'état d'achèvement de la formation du joint.

Précisons, pour fixer les idées, qu'une charge de 136 tonnes, si elle était appliquée uniquement sur les petits pistons d'acier de 8 mm de diamètre, produirait une pression de :

$$P = \frac{F}{S} = \frac{136 \cdot 10^3}{\frac{\pi (8)^2}{4}} = 272 \cdot 10^3 \text{ kg/cm}^2$$

En réalité, une grande partie de la force est absorbée par les joints et la friction interne de la pyrophyllite.

Dans le cas le plus favorable, la première transition du Bi à 25,3 kb est obtenue avec une charge de 21 tonnes, d'où :

P vraie	:	25,3 kb	
P calculée	:	$\frac{21 \cdot 10^3}{\frac{\pi (8)^2}{4}}$	= 42 kb

soit un rendement de $\frac{42 - 25,3}{25,3} = 0,66$

5°) Résultats expérimentaux - Discussion.

Le tableau ci-après donne les caractéristiques des différents couples de joints mixtes utilisés : (x)

		$\frac{\phi}{\phi}$ de pyrophyllite de téflon				
		mm				
		$\frac{0}{16}$	$\frac{16}{20}$	$\frac{18}{22}$	$\frac{20}{24}$	$\frac{24}{28}$
épaisseur	3 mm	x	x	x	x	
	4 mm	x	x	x	x	
	5 mm	x	x	x	x	x
	6 mm	x	x	x	x	x
	7 mm	x	x	x	x	x
	8 mm	x	x	x	x	x

a) Mise en évidence d'une courbe limite

Comme nous l'avons dit précédemment (chap. IV. par. 4), l'efficacité d'un système de joint peut être établie en considérant les rapports :

$$m = \frac{P_M}{F_M}, \quad \eta = \frac{\Delta p}{\Delta F} = \frac{P_N - P_M}{F_N - F_M} \quad \text{ou} \quad m \times \eta = \frac{P_M \Delta P}{F_M \Delta F}$$

en réalité les pressions P_M et P_N (pressions de transition I \rightarrow II et II \rightarrow III du Bi) étant fixées et invariables durant tous les essais nous avons tracé les courbes :

- F_I (charge nécessaire pour obtenir la pression de la I $^\circ$ transition) en fonction : soit des diamètres à épaisseur constante, soit des épaisseurs à diamètre constant.

$\Delta F = F_2 - F_I$ (complément de charge nécessaire pour obtenir la 2 $^\circ$ transition en partant de la I $^\circ$), en fonction également des diamètres et des épaisseurs.

F_I et ΔF étant respectivement inversement proportionnel à m et η

Le système de joint idéal sera atteint si on a, à la fois, F_I et ΔF minimum ou encore $F_I \times \Delta F$ minimum.

.../..

C'est pourquoi nous avons également tracé les courbes $F_I \times \Delta F$ en fonction des diamètres et des épaisseurs.

Nous allons tout d'abord discuter les courbes obtenues en fonction des diamètres à épaisseur constantes.

- α) Considérons les courbes $F_I = f(\phi)$. (fig.15)

Elles forment une famille croissante sans minimum apparent. Les courbes $e=6$, $e=7$, $e=8$, sont sensiblement des droites aux erreurs d'expérience près. Nous voyons que la 1^o transition du Bi est atteinte le plus facilement sans joint de pyrophyllite. Il est à remarquer que cet appareil a été initialement conçu par les savants Américains pour fonctionner avec un joint uniquement en teflon.

- β) Considérons les courbes $\Delta F = f(\phi)$ (fig.16) et $F_I \times \Delta F = f(\phi)$ (fig.17)

Nous avons aussi des familles de courbes mais celles-ci présentent un minimum et un point d'inflexion plus ou moins marqué, suivant l'épaisseur.

Pour les faibles diamètres, la concavité des courbes est dirigée vers les $\Delta F > 0$. Mais, pour les diamètres supérieurs nous avons une inflexion avec changement de concavité.

Les courbes présentent un minimum moins prononcé pour les fortes épaisseurs, mais il existe néanmoins. La courbe qui joint ces minimum est très importante (courbe en pointillé) car elle délimite deux zones:

- Une zone de fluage du corps cylindrique
- Une zone de non-fluage du corps cylindrique.

Pour saisir l'importance d'une telle courbe, il faut revenir à la cellule haute pression. Nous avons vu qu'elle

était formée d'un corps cylindrique et de 2 joints (fig. I8a) Pour des joints de diamètre faible, les frottements de ceux-ci sur les pistons et la chambre sont insuffisants pour contenir le corps cylindrique d'où un fluage de ce dernier entre les enclumes (fig. I8 b). Suivant l'épaisseur du joint, il existe donc un diamètre limite pour lequel le corps est parfaitement contenu (fig. I8c) . Ces conditions optima sont obtenues lorsqu'on se place sur la courbe limite envisagée plus haut. D'où l'existence des zones de fluage et de non-fluage du corps cylindrique.

L'intérêt de ce joint optimum réside non seulement dans son rendement maximum mais aussi et surtout dans le fait que le volume laboratoire ne subira que de faibles déformations, déformations dues seulement à la compressibilité du milieu solide utilisé.

Le changement de concavité des courbes peut aussi être expliqué. Précédemment, nous avons envisagé le fluage du corps central mais le fluage des joints vers l'intérieur peut aussi intervenir (fig. I8d). Ce fluage vers l'intérieur facilite la montée en pression dans la chambre d'où inflexion des courbes. Ce phénomène est surtout marqué pour les fortes épaisseurs de joints.

Remarques : Les courbes $\Delta F = f(\phi)$ s'infléchissent pour les diamètres importants ce qui laisse prévoir une inflexion des courbes $F_I \Delta F$ pour des diamètres supérieurs. Nous retrouvons là les conditions de fonctionnement de l'enclume de Drickamer. Enclume qui, rappelons le, fonctionne avec un joint très épais et un fort diamètre par rapport au volume laboratoire. Nous pouvons prévoir d'après les courbes que le début de la montée en pression sera pénible, mais celle-ci croitra ensuite très rapidement. La courbe d'étalonnage d'un tel appareil doit avoir l'allure de celle de la figure I9., c'est ce que montre l'expérience. La tenue mécanique des pistons limitera la pression

maximum possible.

- γ) Courbes $F_I = f(e)$, $\Delta F = f(e)$ et $F_I \Delta F = f(e)$ à diamètre constant. (fig. 20, 21, 22)

Nous donnons ces courbes à titre d'information car elles n'apportent rien de plus à la discussion ci-dessus:

b) Stabilisation de la pression dans une cellule

La stabilisation de la pression dans une cellule est un problème important pour l'expérimentateur qui compte sur une courbe d'étalonnage pour connaître cette pression. Nous ne l'avions pas encore signalé mais les mesures directes de pression dans les cellules sont très difficiles ; d'où l'étalonnage préalable des appareils.

La stabilisation dépend de plusieurs facteurs qui sont :

- le nombre de cycles effectués à charge maximum constante
- la charge maximum appliquée.
- le temps.
- la température.

Nous avons étudié l'influence des trois premiers facteurs sur la stabilisation de la pression de transition I \rightarrow II du Bi, les résultats sont les suivants :

- α) Pour une charge maximum donnée la pression se stabilise au bout de trois ou quatre cycles (fig. 23), les caractéristiques des joints intervenant peu.
- β) Il existe une valeur de la charge maximum appliquée sur l'appareil à partir de laquelle la stabilisation est obtenue. Cette valeur dépend des caractéristiques des joints dans ce but, nous avons fait subir à chaque cellule un certain nombre de cycles en augmentant à chaque fois la charge maximum appliquée.

1er cycle charge maximum	135 tonnes.
2eme " " "	182 tonnes
3eme " " "	204 tonnes
4eme " " "	227 tonnes
5eme " " "	227 tonnes

Pour chaque valeur du diamètre des joints nous avons un réseau de courbes (fig. 24, 25, 26, 27). Nous constatons que la stabilisation est plus rapide pour les joints de faibles diamètres. Ainsi, pour des joints de diamètre inférieur à 16 mm une charge maximum de 182 tonnes suffit, par contre, il faut 204 tonnes pour ceux d'un diamètre de 18 mm et 227 tonnes ne suffisent pas pour stabiliser des joints de 20 mm. On voit par là l'importance de la valeur de la charge maximum dans la stabilisation. Elle est liée à la formation du joint qui dans le dernier cas n'est pas terminée. Cette notion de formation des joints est délicate surtout si l'on tient compte de ce que la pyrophyllite n'est pas un matériau élastique.

- 7) la variation de la pression dans la cellule en fonction du temps est faible. Il faut plusieurs heures pour discerner une certaine baisse. Celle-ci est sans doute due à un relâchement progressif des joints.

c) "Extrusion" des joints

L'examen des courbes $F_I \Delta F = f(\phi)$ (fig. 17) montre un rendement meilleur avec les joints de forte épaisseur. Malheureusement une limite intervient rapidement car un phénomène "d'extrusion" du joint, apparaît, accompagné d'une forte explosion. Ce comportement des joints épais est souvent néfaste à l'appareil ; "l'extrusion" d'un joint de 18 mm de diamètre en 6 mm d'épaisseur pour une charge de 210 tonnes a mis hors d'usage la chambre et endommagé les pistons en carbure de tungstène.

On peut interpréter ce phénomène en considérant les efforts qui s'exercent sur un élément ds de la surface interne

du joint en contact avec le corps cylindrique (fig. 28). Cet élément ds est soumis, d'une part, à la pression interne du corps P_c et d'autre part, à la pression interne du joint P_j . Il en résulte deux forces F_c et F_j telles que :

$$F_c = P_c \times ds \sin \theta \quad \text{et} \quad F_j = P_j \cdot ds \sin \theta$$

Lorsque le fluage est inexistant, on a :

$$F_c \neq F_j$$

les forces s'équilibrent et la frontière corps-joint est stationnaire. On peut supposer que, si cette condition est réalisée à un moment donné, elle l'est à tout moment. Mais, les forces F_j dépendent des frottements du joint sur les parois des enclumes et de la chambre, il peut donc arriver que ceux-ci n'augmentent pas aussi rapidement que la pression dans le chambre (fig. 29) et deviennent insuffisants pour contenir la poussée F_c . Ce relâchement du joint serait subit. On peut représenter cela par les courbes de F_c et F_j en fonction de la charge pour différentes épaisseurs (fig. 30).

Pour les joints étudiés, nous avons tracé la courbe qui passe par les différents points d'explosion d'un joint de 18 mm de diamètre en fonction de la charge (fig. 31).

CONCLUSION

Les résultats que nous avons obtenus présentent un double intérêt :

- I°) Un intérêt particulier : ils permettent de fixer les conditions de fonctionnement optimum de l'appareil utilisé dans cette étude : le "Belt" à enclumes tronconiques. Les caractéristiques des joints sont dictées par l'ensemble des courbes expérimentales, et les conditions d'étalonnage

sont bien déterminées, à savoir : nombre de cycles de stabilisation et charge maximum de formation.

Les limites inférieures et supérieures du sommaire d'utilisation sont aussi connues.

- 2°) Un intérêt général : ils font apparaître des phénomènes propres à la plupart des appareils générateurs de pression en milieu solide . Chacun de ces appareils nécessitera peut-être une étude semblable, mais celle-ci pourra être plus succincte car elle se limitera à un domaine plus restreint.

Il est bien évident que tout changement dans la nature du matériau et du système de joint entraîne des modifications plus ou moins profondes des résultats. Remarquons que le système de joint dit "sandwich" (ch. III par. 2) est une amélioration du joint mixte. En effet, un joint de 6 mm d'épaisseur peut être obtenu en intercalant un coin d'acier entre deux joints de 3 mm. Ceci est intéressant pour repousser la limite due à l'extrusion du joint mixte de 6 mm .

Cette étude permet aussi d'envisager des modifications de structure propres à améliorer les performances de l'appareil utilisé ici : modification d'angles ou de dimensions. A ce sujet, nous ferons remarquer que le "belt" de H.T HALL peut être dans une certaine mesure prévu et déduit à partir de ces modifications.

Nous avons également signalé que les courbes des figures I6 et I7 laissaient prévoir un appareil fonctionnant avec des joints de grand diamètre rappelant l'enclume de Drickamer.

Enfin, cette étude permet de fixer les idées sur le comportement des cellules à hautes pressions, et sur l'existence de conditions optima de fonctionnement. Elle est susceptible

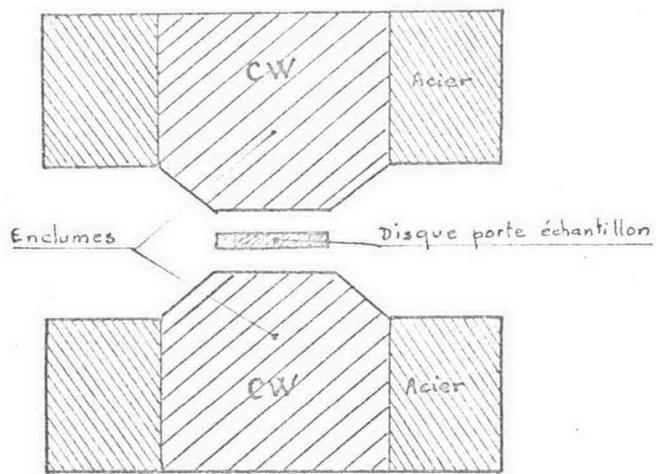


Figure 1. Enclume de Bridgman

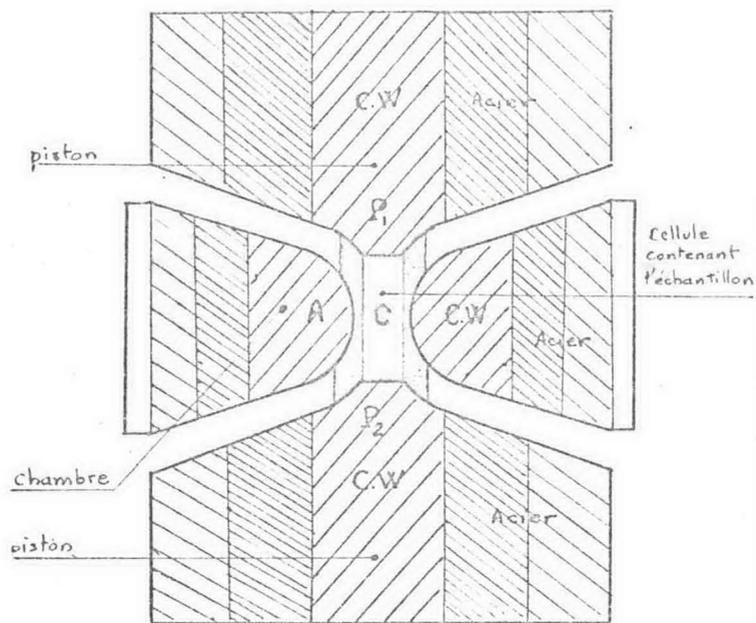


Figure 2. "Bell" de Hall

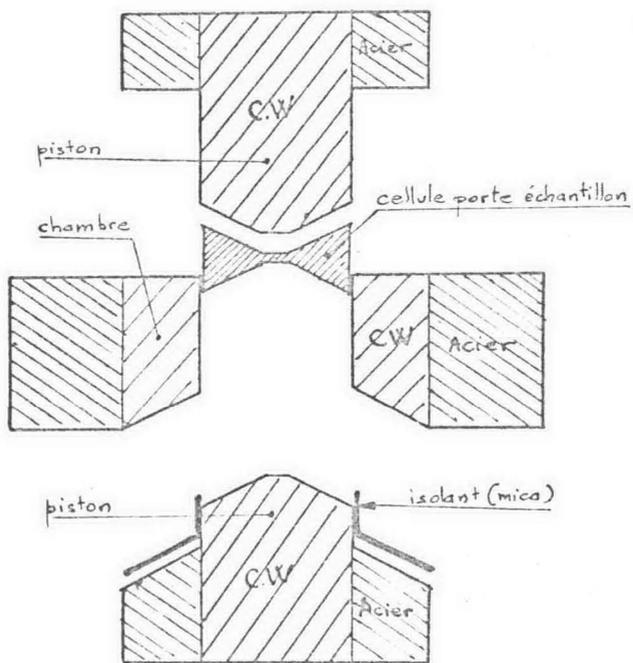


Figure 3. Enclume de Drickamer

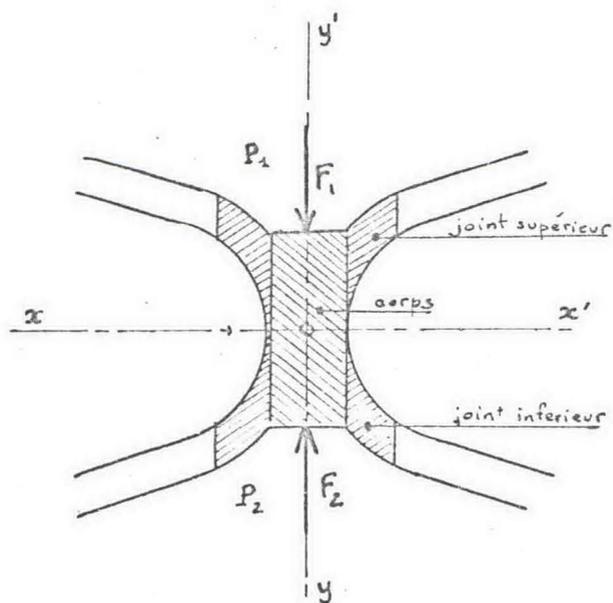


Figure 4. Schéma d'une cellule haute pression

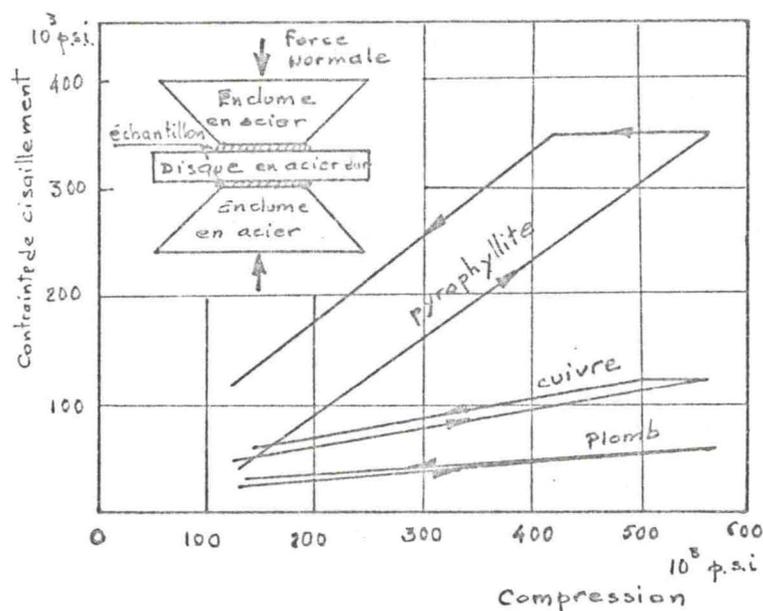


Figure 5. Contrainte de cisaillement de la pyrophyllite du cuivre et du plomb en fonction d'un effort de compression.

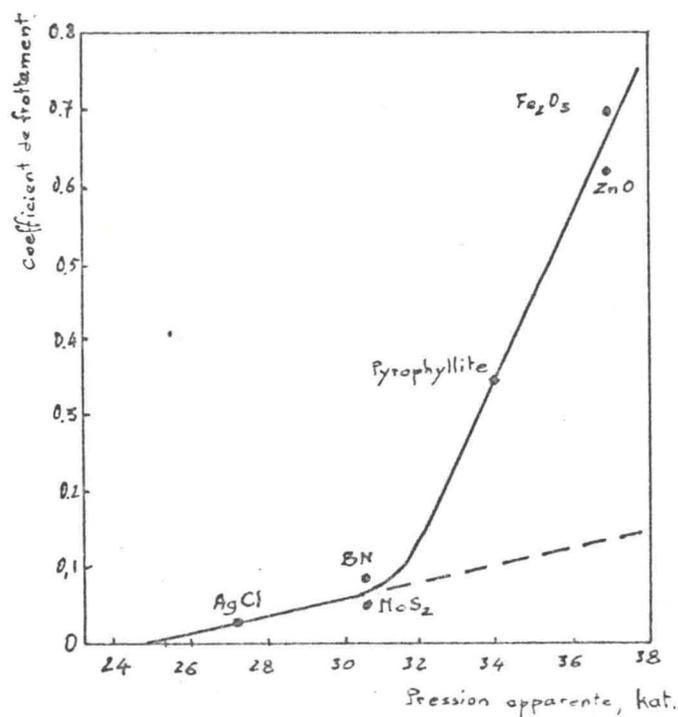


Figure 6. Pression apparente nécessaire pour obtenir la transition $Bi_I \rightarrow Bi_{II}$ en fonction du coefficient de frottement interne.

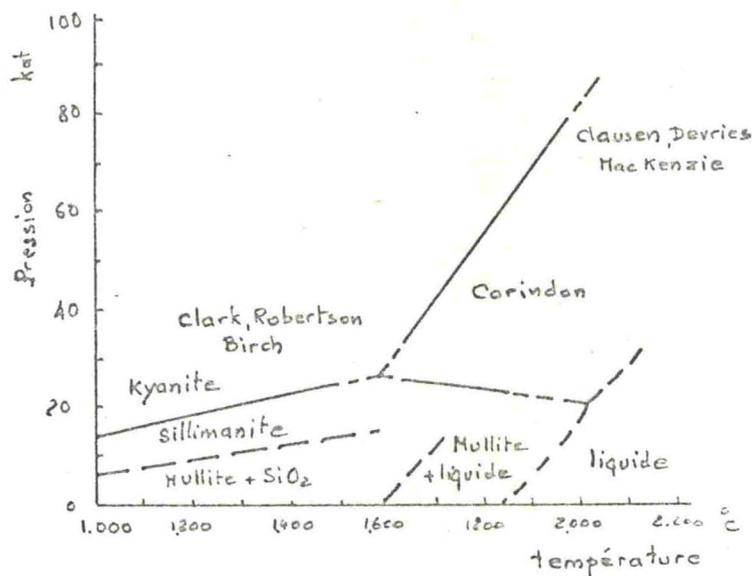


Figure 7. Zone de stabilité de la kyanite. (forme dense de $Al_2O_3 \cdot SiO_2$) composant principal de la pyrophyllite.

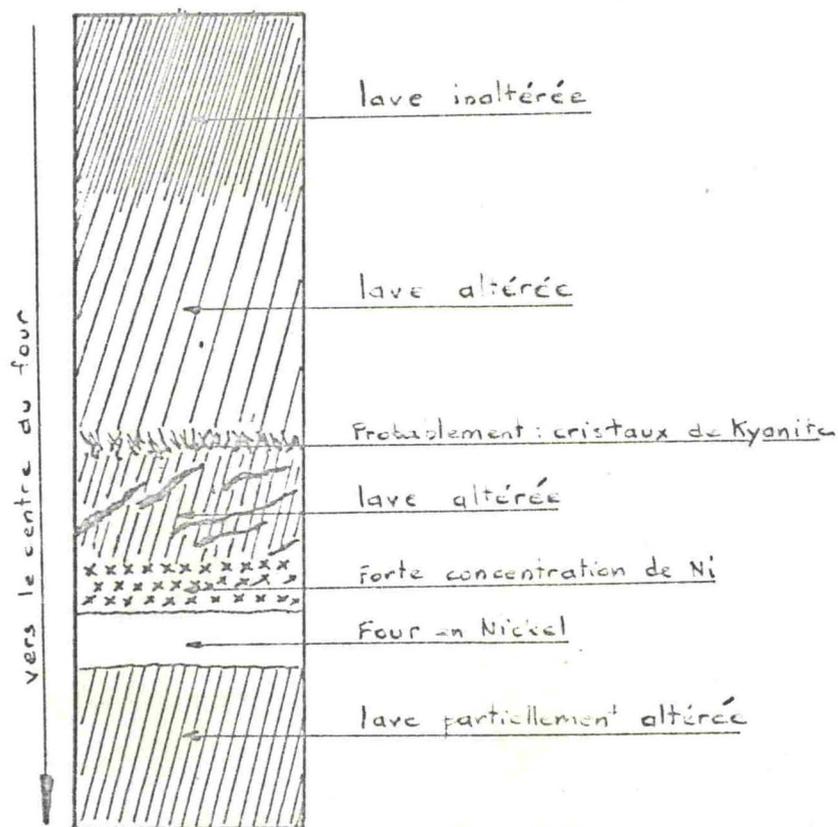
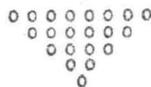


Figure 8. Action simultanée de la température et de la pression sur la pyrophyllite (lave)

aussi de guider l'expérimentateur dans la conception d'appareils
nouveaux.



UNITES DE PRESSION

Les unités de pression généralement utilisées sont :

- bar (bar) = 10^6 dynes par centimètre carré
- kilobar (kb) = 1000 bars
- atmosphère (atm.)
- kiloatmosphère (kat) = 1000 atm
- kilogramme par centimètre carré (kg/cm^2)
- pound per square inch (psi)

(Les abréviations utilisées sont notées entre parenthèses).

Le tableau des correspondances est le suivant :

	Bar	atm	kg/cm^2	psi
1 bar	1	0,98692	1,0197	14,504
1 atm	1,0133	1	1,0332	14,696
1 kg/cm^2	0,980665	0,96784	1	14,223
1 psi	0,068947	0,068046	0,070307	1

ECHELLE DES PRESSIONS

Faibles pressions	\angle 1 atm
Basses pressions	$\bar{_}$ 1 à 100 atm
Moyennes pressions	100 à 1000 atm
Hautes pressions	1000 à 100000 atm
Très hautes pressions	100000 à 500000 atm
Ultra pressions	$\bar{\bar{_}}$ 500000 atm

La Conférence Internationale tenue à New York en juin 1960 "Progress in very high pressure research" a recommandé l'utilisation du kb comme unité de haute pression.

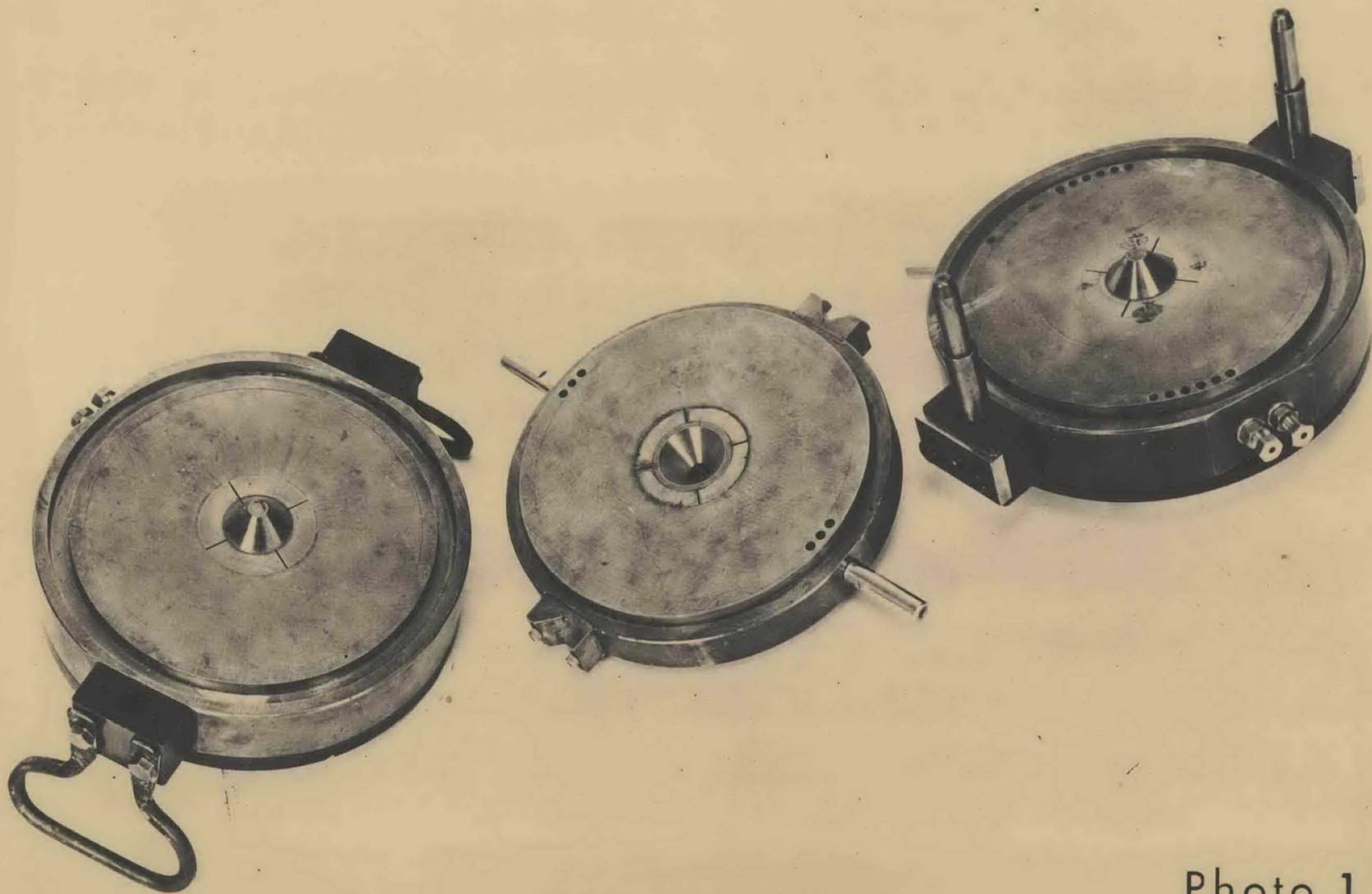


Photo 1

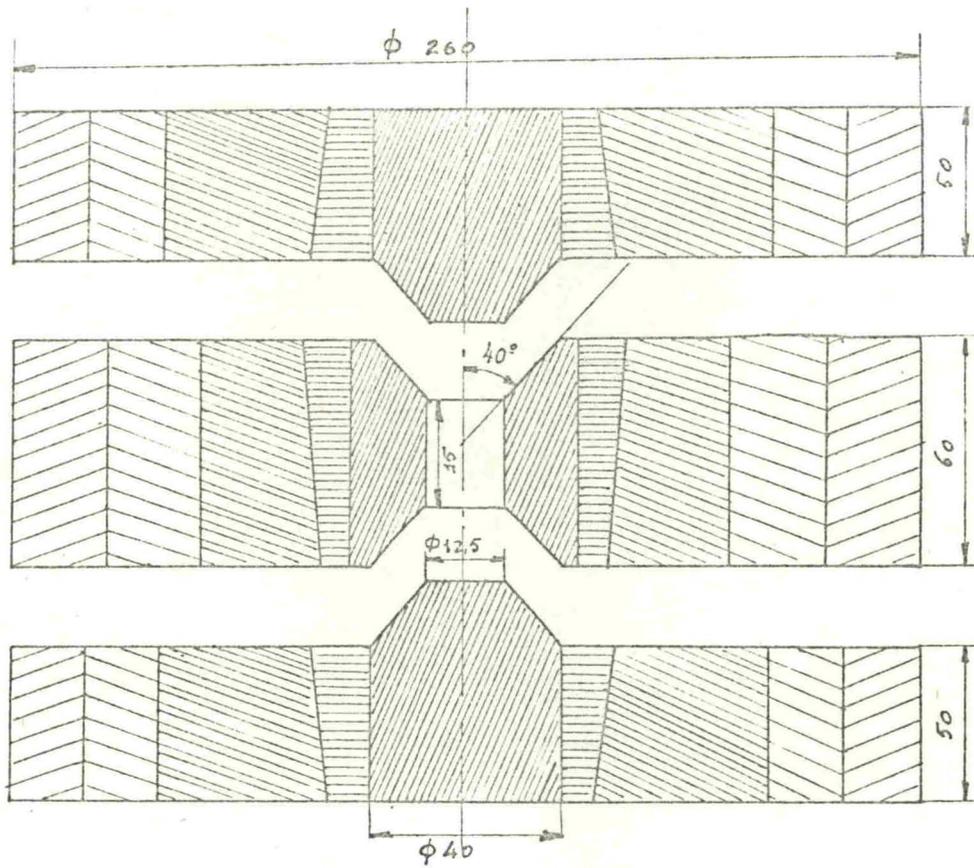


Figure 9 - Schéma du "Belt" à pistons tronconiques

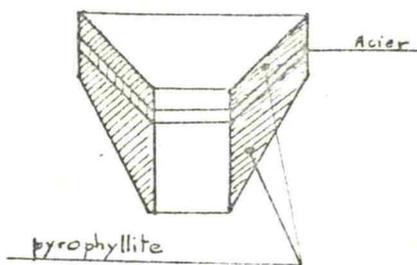


Figure 10. Coupe d'un joint sandwich

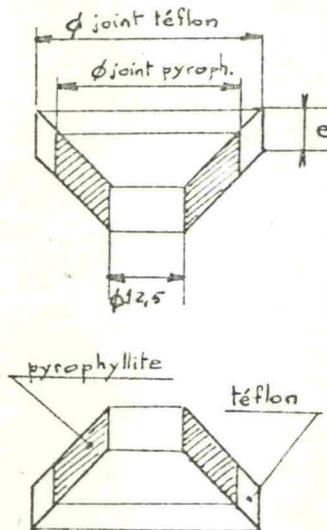


Figure 11. Coupe de joints mixtes

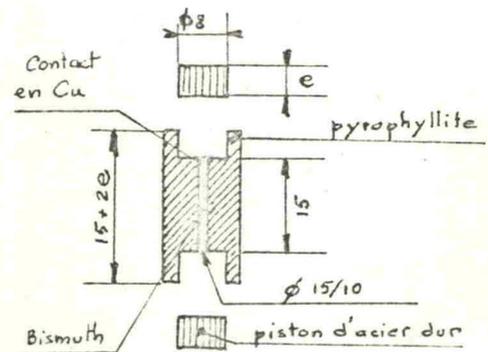


Figure 12. Coupe du corps cylindrique

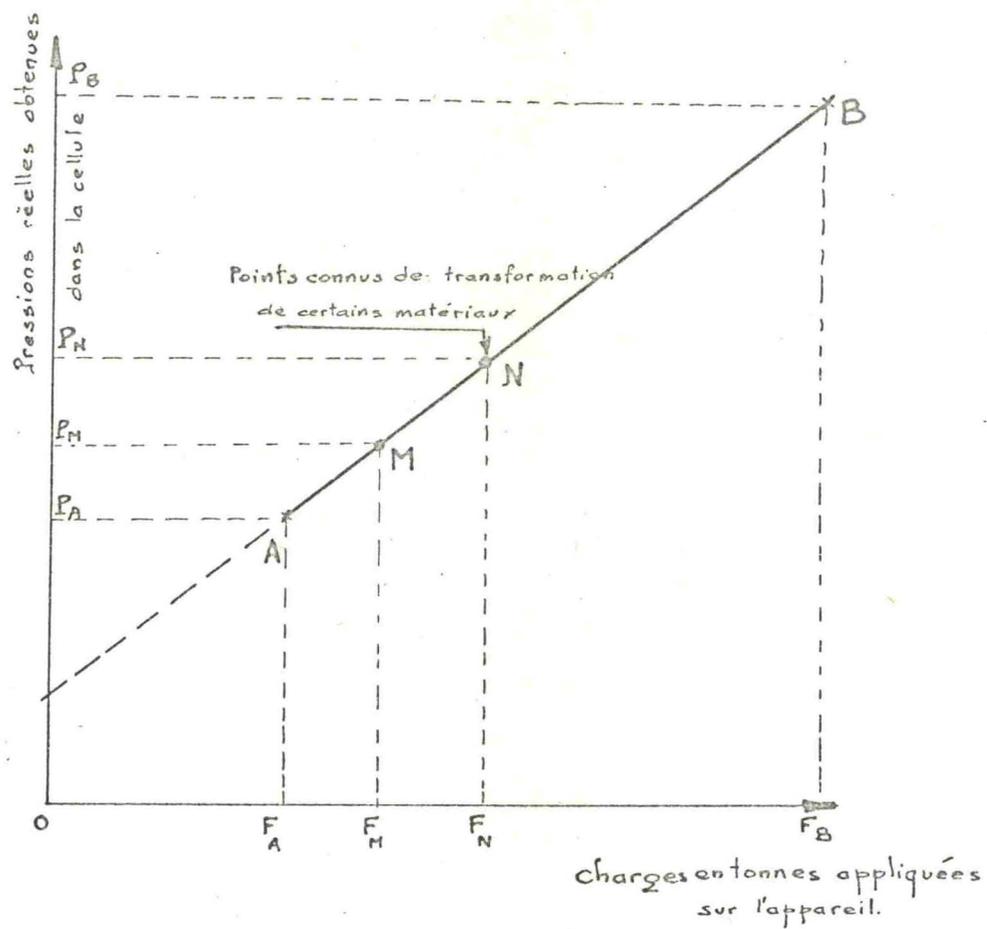


Figure 13. Courbe d'étalonnage d'un appareil
 haute pression en milieu solide.

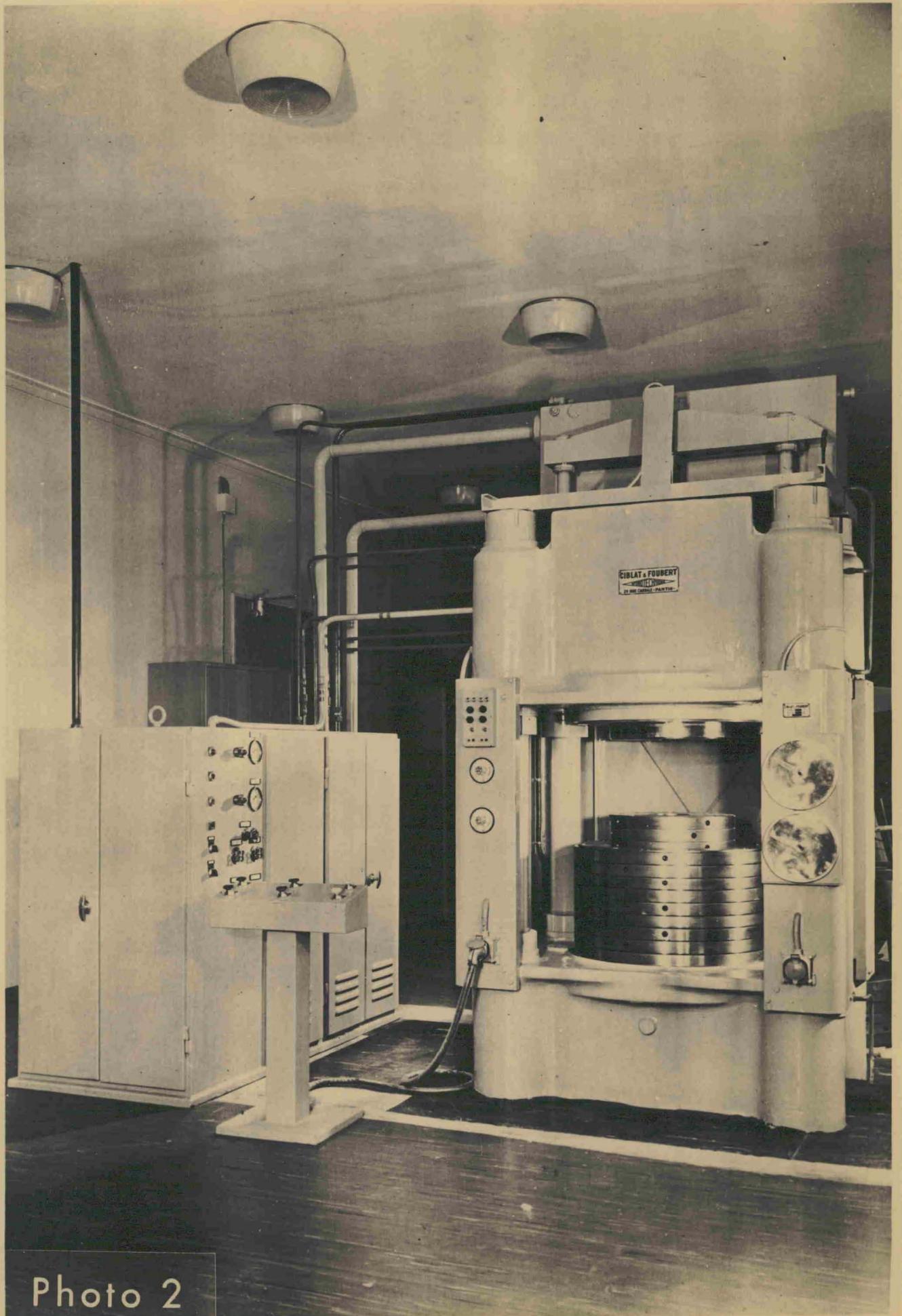


Photo 2

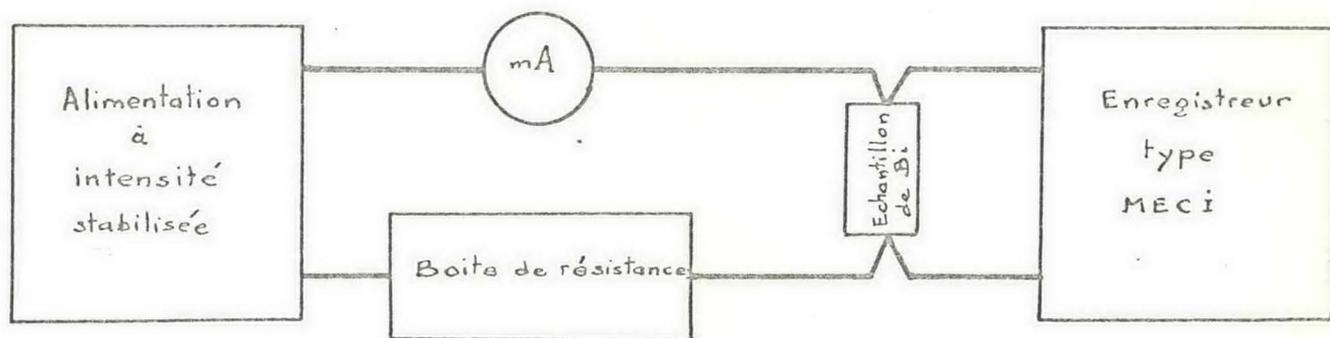
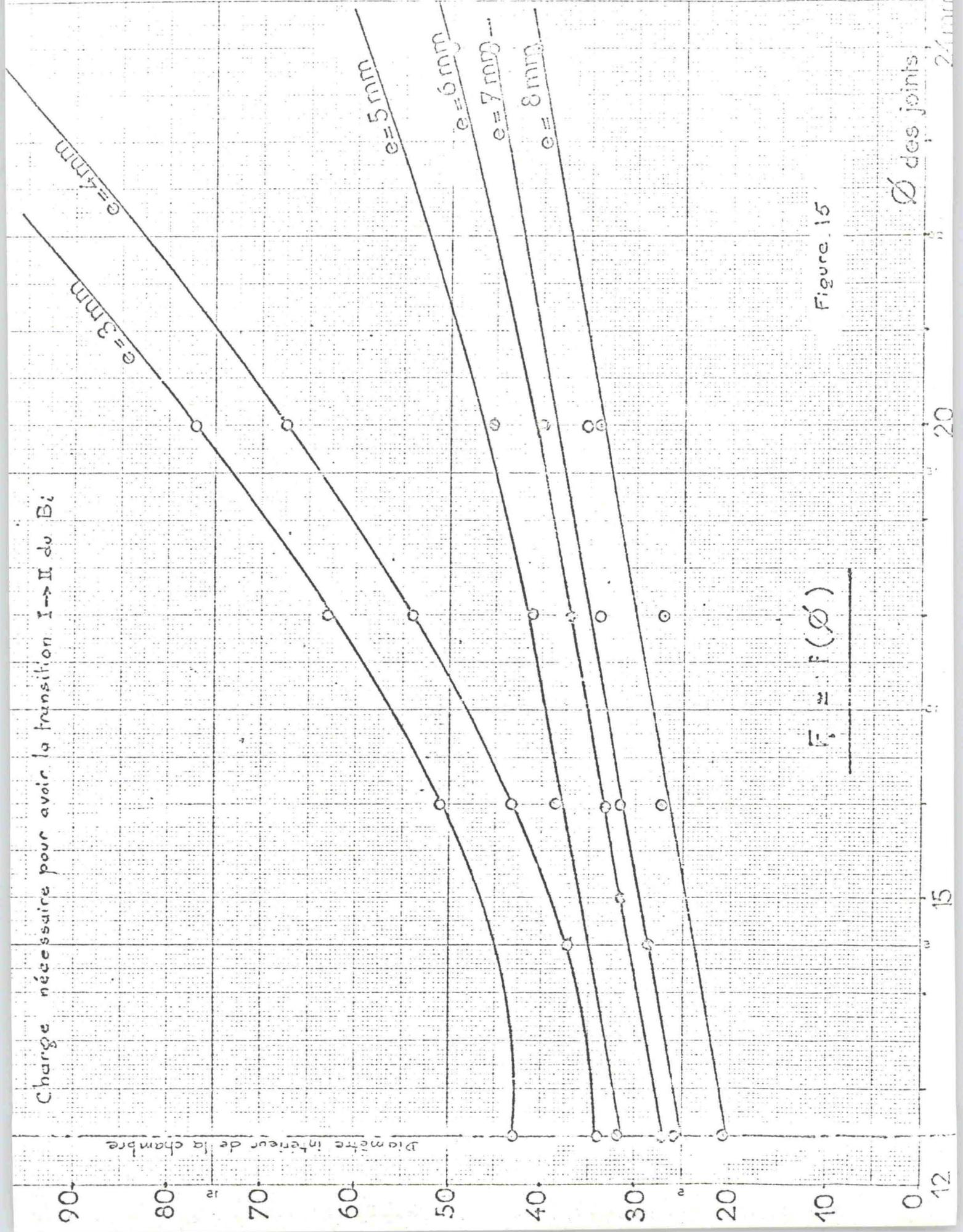


Figure 14. Enregistrement de la variation de résistance apparente d'un échantillon de Bismuth.

Charge nécessaire pour avoir la transition I → II du Bi



$F = f(\varnothing)$

Figure. 15

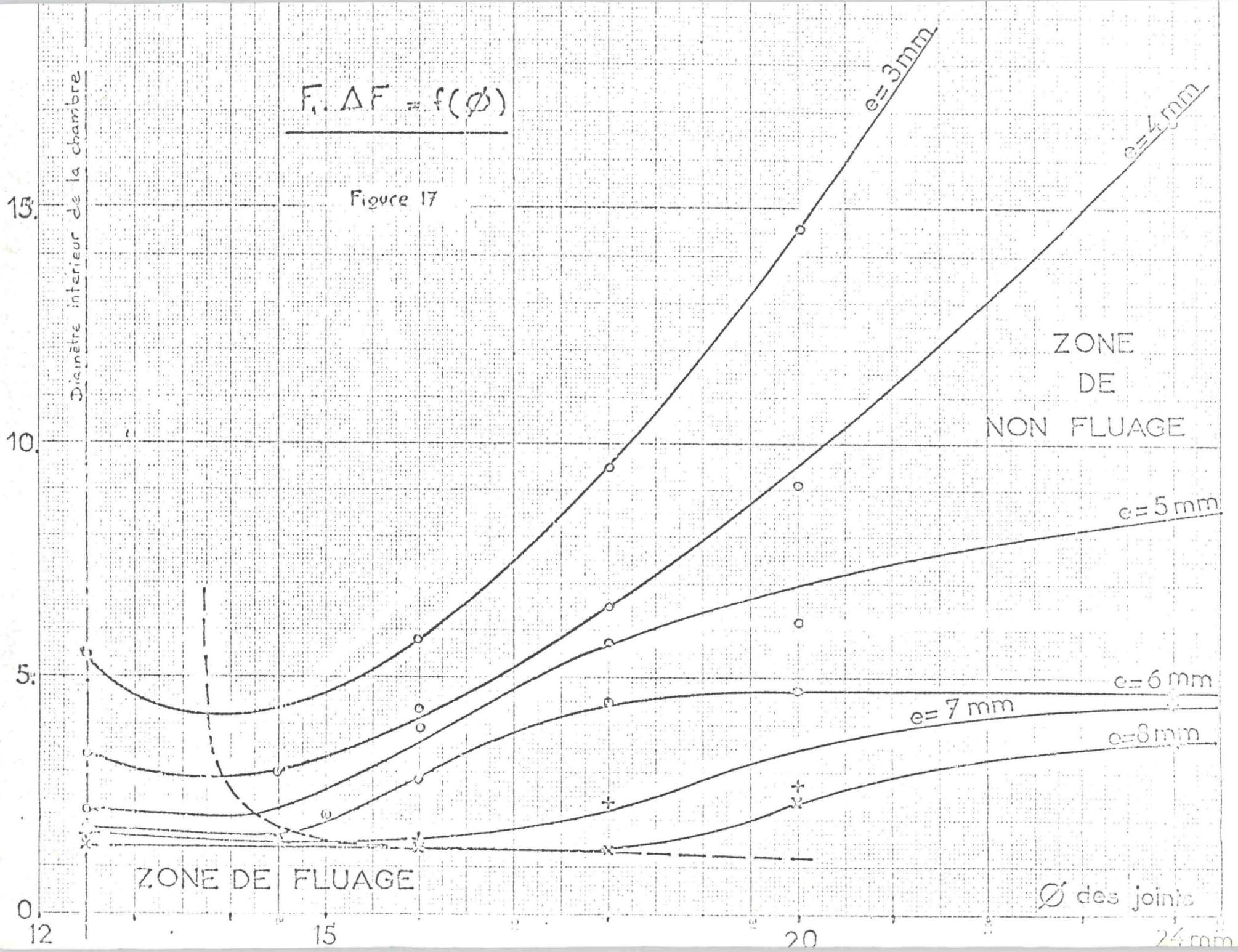
Ø des joints



Figure 16.

$$F, \Delta F = f(\phi)$$

Figure 17



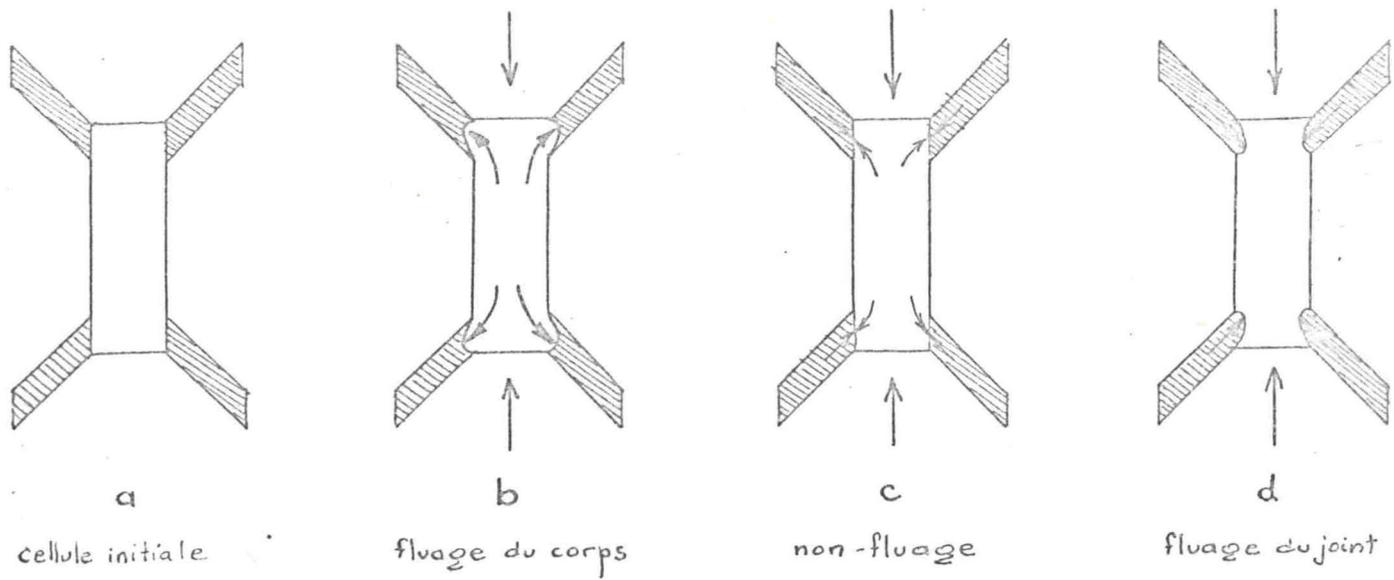


Figure 18. Différents aspects d'une cellule sous pression.

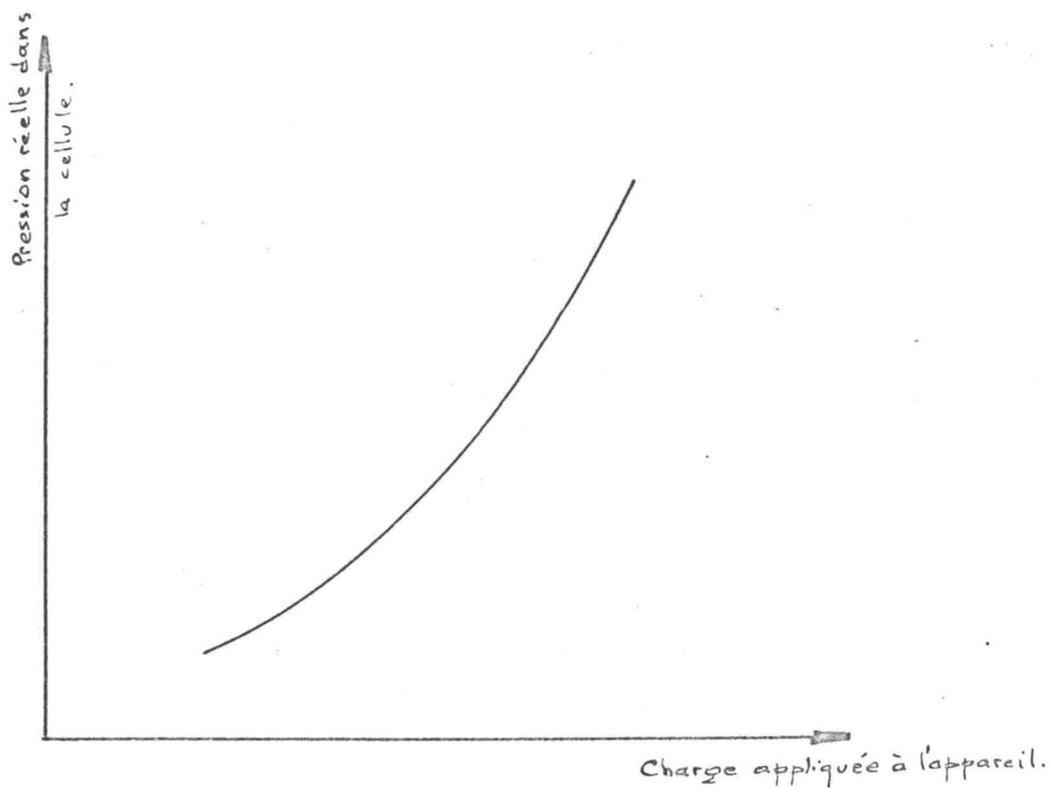


Figure 19 Allure de la courbe d'étalonnage d'une endume de Drickamer.

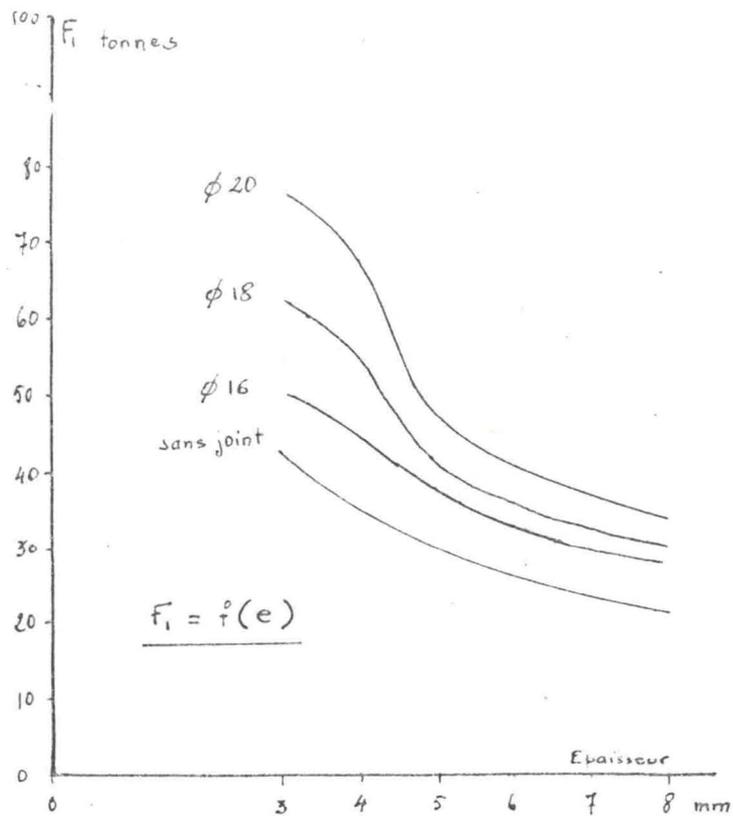


Figure 20

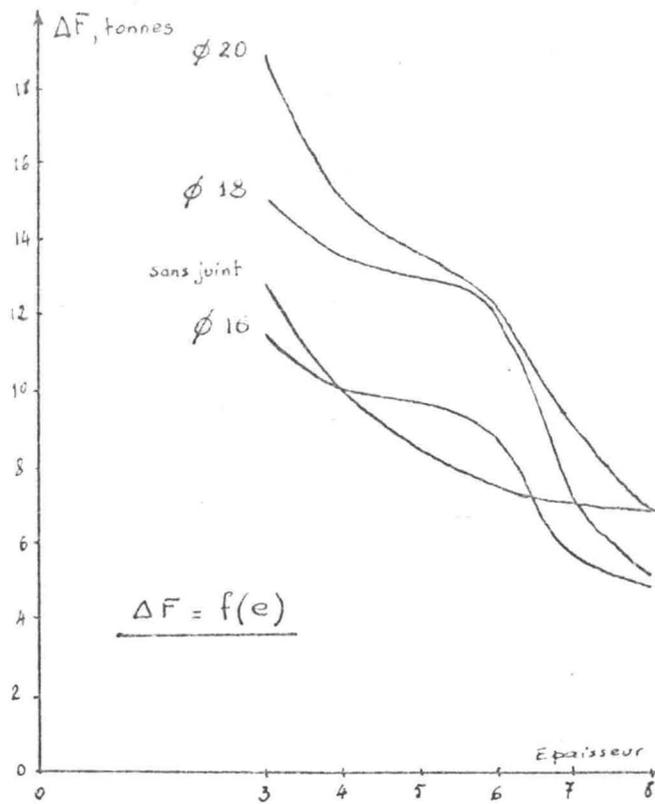


Figure 21

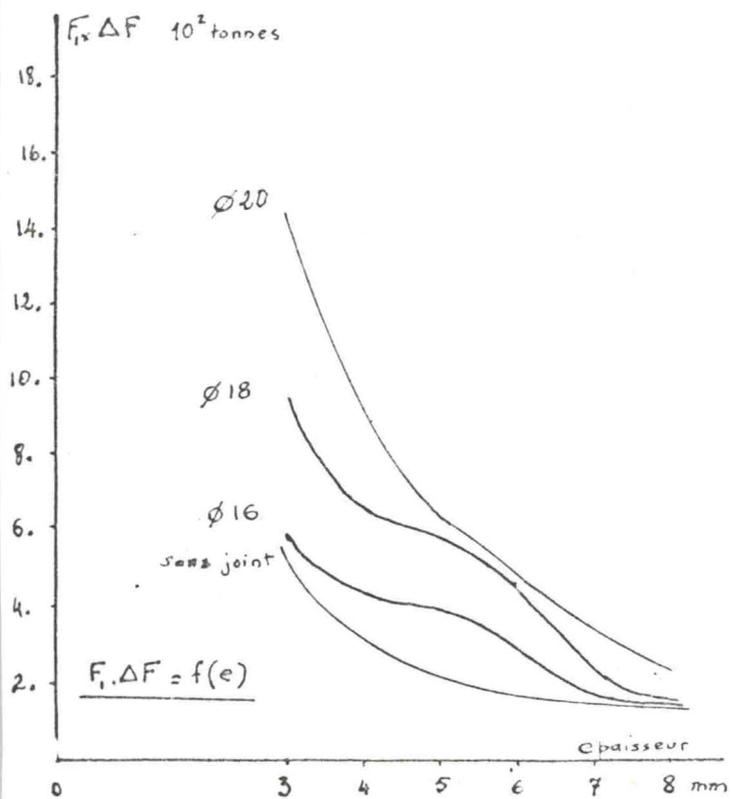


Figure 22

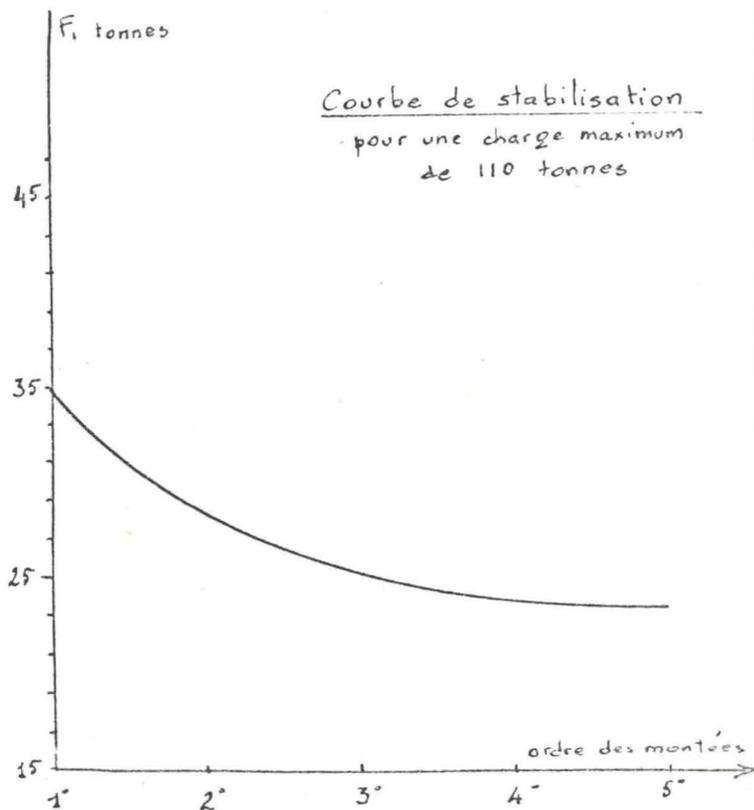


Figure 23

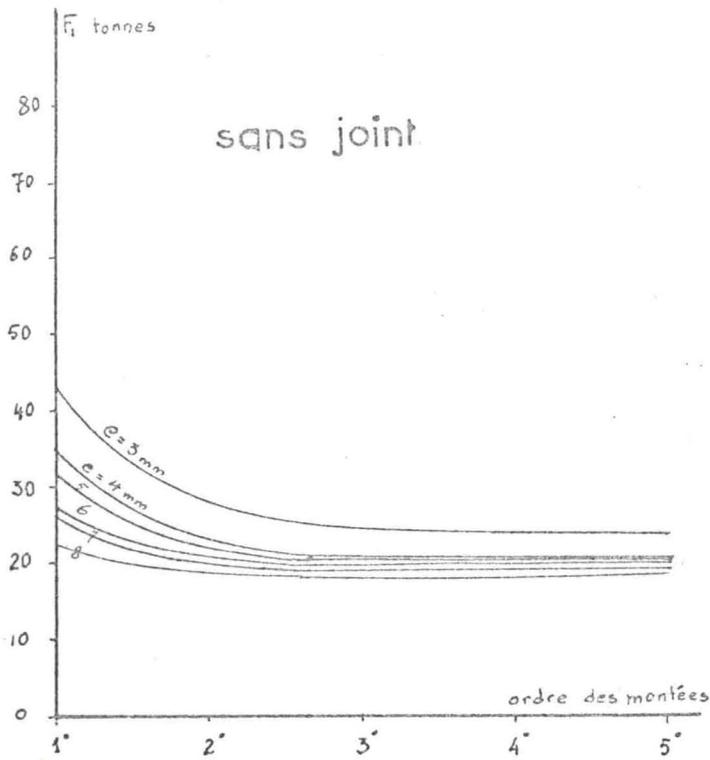


Figure 24

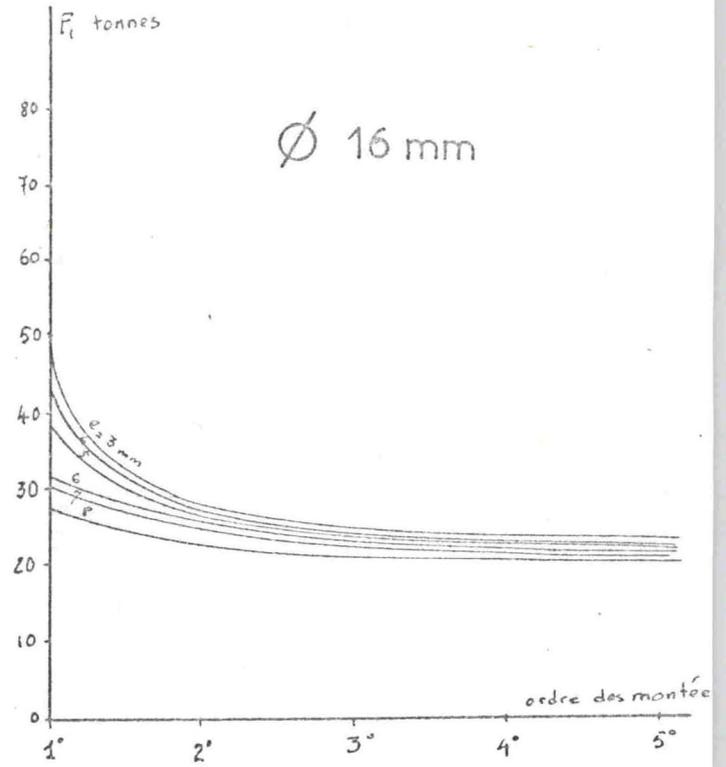


Figure 25

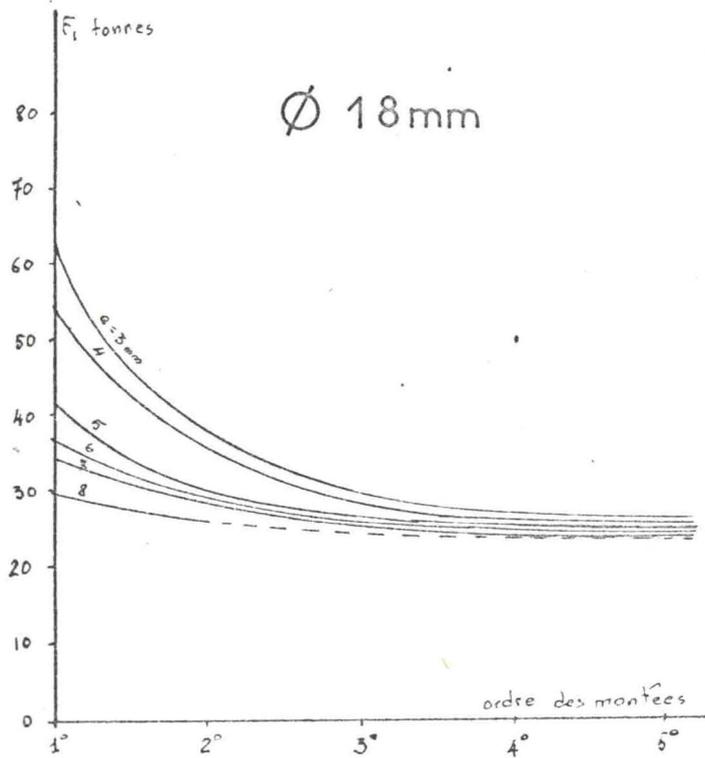


Figure 26

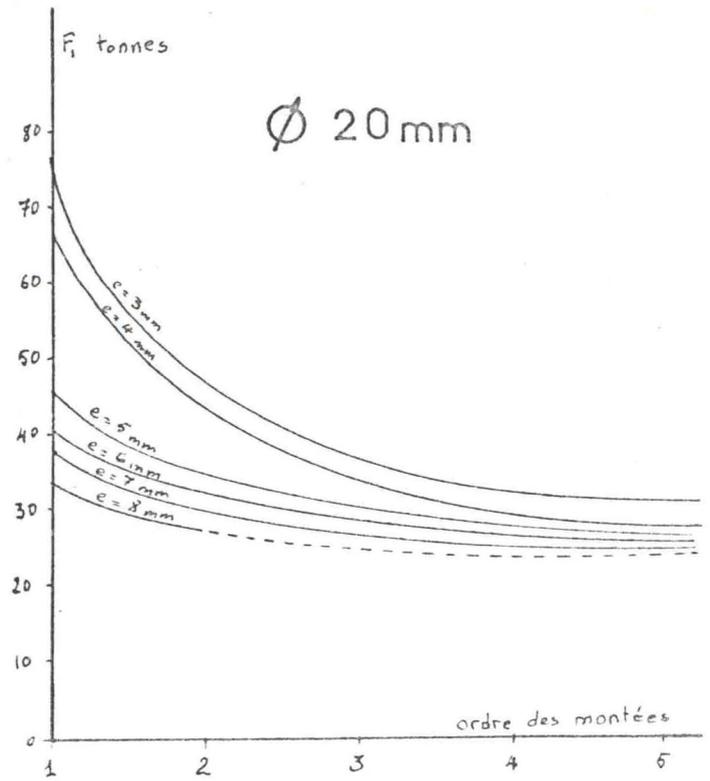


Figure 27

Courbes de stabilisation de la pression
pour différents joints à épaisseur constante

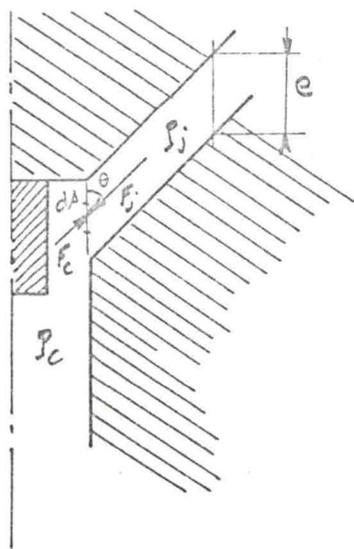


Figure 28. Jonction corps-joint

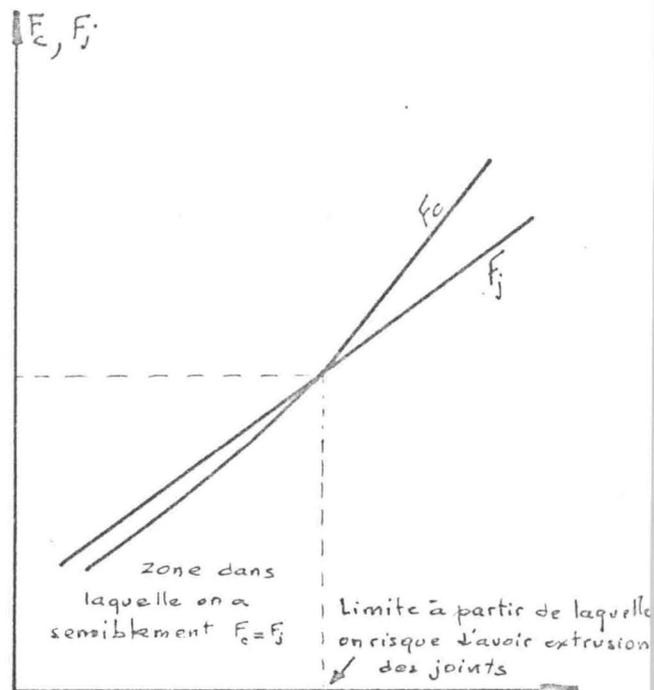


Figure 29 Charge appliquée sur l'appareil.

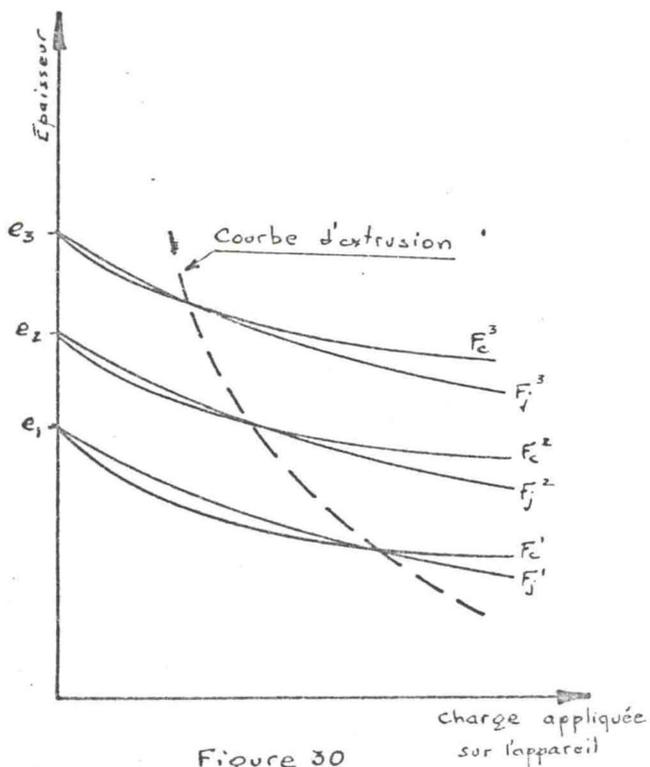


Figure 30

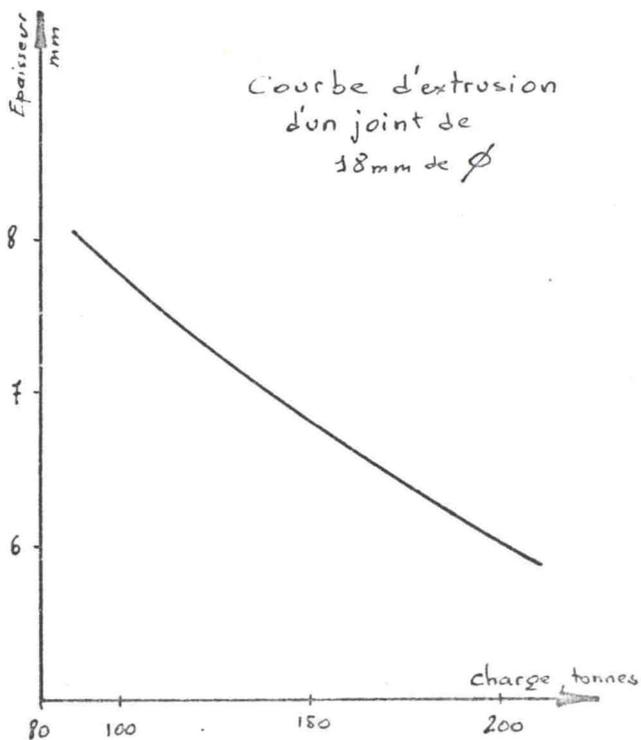


Figure 31. Courbe d'extrusion d'un joint de 18mm de ϕ