

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

UNIVERSITE SAAD DAHLEB – BLIDA

Faculté de technologie

Département de chimie industrielle



MEMOIRE DE FIN D'ETUDE

**Présenté en vue de l'obtention du diplôme de Master en GENIE
CHIMIQUE**

Option : chimie physique

PAR

AMOURI IMANE

**Contribution à la compréhension du comportement
rhéologique des suspensions en fonction des
paramètres granulométriques**

Encadré par :

Dr. HADJ SADOK

Promotion 2013

Remerciements

Avant toute chose, nous remercions le tout puissant qui nous a donné la force et le savoir pour suivre nos études et réaliser ce travail, merci mon dieu.

Nous exprimons nos profonds remerciements à notre promoteur Mr. HADJ SADOK ABDELKADER pour l'aide qu'il m'a apporté, pour la patience et ses conseils qui ont fait progresser ce travail, et surtout pour m'avoir fait profiter de ces connaissances dans le domaine.

Nous tenons à remercier aussi la direction et l'ensemble des enseignants, professeurs de l'USDHB pour leurs disponibilités, bien vaillance et soutien apporté durant notre cursus universitaire.

Nous remercions les membres de jury d'avoir accepter d'examiner notre travail.

Nous remercions également le personnel de l'entreprise de BIOPHARM pour leur aide en matière de rhéométrie.

Mes remerciements vont à toutes les personnes qui m'ont aidée durant la période d'étude, et qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Dédicaces

1. *Je dédie ce mémoire à mes chères parents ; ma mère Rabia et mon père Tahar, qui m'ont encouragés et soutenus tout au long de mes études que dieu les gardes.*
2. *A mes grands parents bien aimés.*
3. *A mes chers frères Abdallah, Abderrahmane, Mohsen, et ma chère sœur Wafa qui ont toujours été là pour moi.*
4. *A ma cousine Maria.*
5. *A tous mes familles.*
6. *A mes voisines Imane, Hanane, Omar, Sihem et Lamia .*
7. *A mes chers amis Nabila, Assia, Kheira, Wahiba, Meriem, Meriem, Amina, Asma, Yamina, Karima, Ibtissem, Wafa, Nesrine ,Ihcene, Rahma, Soumia, Elyess, Mohamed, Othmane ,Walid .*
8. *Et à toutes mes amies que je n'ai pas cité leurs noms*
9. *A toutes la promo de master 02 de génie chimique.*
10. *A tous ceux que j'aime, et à tous ceux qui m'aiment.*

Imane

Résumé :

Ce travail consiste à appréhender la subtilité de quelques facteurs liés à la granulométrie, la morphologie et à la fraction volumique de la phase dispersée de suspensions sur le comportement rhéologique. La phase continue considérée est newtonienne.

Les résultats ont montré un impact notable de ces paramètres, générant un comportement rhéologique structural de type de Cross ou plastique, dépendant particulièrement du régime dilué, semi-dilué ou concentré des suspensions.

Abstract:

The aim of this work is to determine the effects of some parameters like granulometry, morphology and the volume fraction of the dispersed phase in suspensions, on the rheological behavior. The phase continues is considered like Newtonian. The results showed a notable impact of these parameters, generating a structural Cross rheological behavior or plastic, depending particularly on the diluted, semi-diluted or concentrated kind of suspensions.

ملخص:

الهدف من هذا العمل هو تحديد بعض الآثار المترتبة على بعض العوامل مثل حجم الحبيبات، علم التشكل المورفولوجي و كسر الحجم للطبقة المتفرقة للتعليق على السلوك الريولوجية . يعتبر الطور المستمر للتعليق ذات سلوك نيوتوني. وأظهرت النتائج وجود تأثير ملحوظ من هذه العوامل إنتاج سلوك ريولوجي من نوع هيكلية خاضع لنموذج كروس أو بلاستيكي، معتمد خاصة على نوع المخفف، شبه المخفف أو المركز من للتعليق.

Nomenclature

a : le rayon de la particule	[μm]
B : coefficient d'einstein	
B_1 : coefficient (interaction hydrodynamique)	
D : le coefficient de diffusion brownienne	
d_v :diametre en volume	
d_s :diametre en surface	
d_s :diametre de poussée	
d_{stoks} :diametre de Stoks	
d_A :diametre en surface	
E: le module de Hooke.	
F : sédiment défloculé	
g: constante de la gravité	[m.s^{-2}]
h :la hauteur	[m]
H_u : la hauteur du sédiment à l'équilibre	[m]
H_0 : la hauteur totale de la préparation	[m]
k ou k_B : constante de Boltzmann	[JK^{-1}]
K : indice de consistance	
L : le diamètre	[μm]
n : la densité de nombre de particule	
n : indice de structure.	

r : le rayon de la particule	[μm]
R : sédiment floclulé	
U : la vitesse d'écoulement; la vitesse de sédimentation	[$\frac{m}{s}$]
U_t est une vitesse terminale constante	
V_u : volume du sédiment à l'équilibre	[m^3]
V_0 : le volume total de la préparation	[m^3]
u_h : déplacement d'une lamelle	[m]
ξ : constante diélectrique du fluide	
ξ_0 : constante diélectrique de l'espace libre	
ζ : potentiel électrostatique des particules	
$\Delta\rho$: différence de densité particule -fluide	[Kg.m^{-3}]
ρ_f : densité du liquide	[Kg.m^{-3}]
ρ_0 : est la densité du fluide de suspension.	[Kg.m^{-3}]
γ : la déformation	
$\dot{\gamma}$: taux de cisaillement	[s^{-1}]
τ : contrainte de cisaillement	[Pa.]
τ_0 : contrainte seuil de cisaillement	[Pa.]
μ_p : viscosité plastique	[Pa.s]
μ_r : la viscosité relative	[Pa.s]
μ_r : la viscosité relative de la suspension	[Pa.s]
μ_s : la viscosité de la suspension	[Pa.s]
μ : la viscosité de fluide suspendant ou de la phase continue	[Pa.s]

μ : viscosité dynamique [Pa.s]

$\theta_{effective}$: constante de Hamaker [N.m]

φ_m : empilement compa

π : 3.14 pi

Sommaire

Partie théorique

Introduction Générale.....01

Chapitre I : les suspensions

I. 1 Définition d'une suspension.....03

I.1.1 Suspension colloïdale.....03

I.1.2 Suspension non Brownienne.....04

I.2 Interactions particulaire.....04

I.2.1 Interactions hydrodynamiques.....04

I.2.2 Interactions non hydrodynamiques.....04

I.3 Classification des particules selon Batchelor.....06

I.4 Stabilité des suspensions.....08

I.4.1 Mouillage des particules.....08

I.4.2 Sédimentation des particules.....08

I.4.2.1 Caractéristiques du sédiment.....08

I.4.3. Paramètres susceptibles d'influencer la stabilité des suspensions.....09

I.4.3.1 Taille des particules.....10

I.4.3.2 Différence de densité entre les deux phases.....10

I.4.3.3 La viscosité.....10

Chapitre II : la rhéologie

II. 1 Définition de la rhéologie.....12

II. 2 Définition de mouvement de cisaillement.....13

II. 3	Grandeurs physique de la rhéologie.....	13
II. 3. 1	La déformation γ	13
II. 3.2	La vitesse de cisaillement : le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$	14
II. 3.3	La contrainte de cisaillement.....	14
II. 3.4	La viscosité.....	14
II. 4	Classification des fluides selon leur comportement rhéologique.....	15
II. 4. 1	Les fluides indépendants du temps.....	15
II. 4. 1. 1	Les fluides Newtoniens.....	15
II. 4. 1. 2	Les fluides non- Newtoniens.....	16
II. 4. 2	Les fluides dépendant du temps.....	19
II. 4. 2. 1	Les liquides thixotropes.....	19
II. 5.	Détermination expérimentale du comportement rhéologique.....	19

Chapitre III : la rhéologie des suspensions.

III.1	Généralités.....	23
III.2	Comportement rhéologique des particules en forme sphérique.....	24
III.2.1	Les suspensions diluées.....	24
III.2.2	Les suspensions semi-diluées.....	25
III.2.3	Les suspensions concentrées.....	25
III. 3	Les régimes des suspensions en fonction de la fraction volumique.....	28
III .3.1	Régime diluée.....	28
III .3.2	Régime semi diluée.....	29
III.3.3	Régime concentré.....	29

III .4 Comportement rhéologique des particules de la forme non sphérique.....	30
---	----

Chapitre IV: Granulométrie des systèmes dispersés

IV. 1 Diamètre équivalent des particules.....	32
IV.1.1 Diamètres statistiques	32
IV.1.2 Diamètre projeté	32
IV.1.3 Diamètre de Féret.....	32
IV.1.4 Diamètres de sphère équivalente (tableau IV.1).....	32
IV. 2 Facteurs de forme.....	33
IV.2.1 Coefficients de forme pour une particule de taille caractéristique L.....	34
IV.2.2 Facteurs de sphéricité.....	34
IV.3 Traitement granulométrique d'un ensemble de particules dans un système dispersé.....	34
IV.3.1 Division en classes de tailles.....	35
IV.3.2 Les fréquences.....	35
IV.3.3 Représentations graphiques.....	36
IV.3.4 Dimensions moyennes.....	36
IV.4 Les méthodes de mesure granulométrique.....	38
IV.4.1 Le tamisage.....	39

Partie Expérimentale :

Chapitre V : Matériels et méthodes

V. 1	Caractérisation, fractionnement et granulométrie de la poudre de syloid (dioxyde de silicium).....	41
	V.1.1 Poudre de syloid.....	41
	V.1.2 : Granulomètre à tamis.....	42
	V.1.3 Méthode de fractionnement.....	42
V. 2	Préparation du milieu suspendant newtonien de la suspension.....	42
V.3	Caractérisation rhéologique des échantillons.....	43
	V.3.1 Rhéomètre.....	43
	V.3.2 Protocole expérimental de caractérisation.....	44
	V.3.3 Modélisation rhéologique.....	45
V.4	Préparation des suspensions en fonction de la fraction volumique et de la distribution granulométrique.....	46
	V.4.1 En fonction de la fraction volumique.....	46
	V.4.2 Choix de la distribution granulométrique des suspensions.....	47

Chapitre VI : Résultat et discussion

VI. 1	Fractionnement et granulométrie de la poudre de SYLOID® (dioxyde de silicium)....	49
VI. 2	Rhéologie des solutions suspendantes de HEC.....	51
VI.3	Rhéologie des suspensions en fonction de la fraction volumique, sans saccharose.	
VI.4	Rhéologie des suspensions en fonction de la fraction volumique, avec saccharose.	

VI.5 Rhéologie des suspensions en fonction de la polydispersité.

Conclusion

Bibliographie.....

Annexe

LA LISTE DES FIGURES

Figure (II. 1) : Mouvement de cisaillement.....	13
Figure (II. 2) courbe d'écoulement d'un fluide Newtonien.....	16
Figure (II. 3) : Rhéogramme d'un fluide pseudoplastique	16
Figure (II.4) : Variation de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement.....	16
Figure (II. 5) : Rhéogramme d'un fluide dilatant.....	17
Figure (II. 6) : variation de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement.....	17
Figure (II.7) Rhéogramme d'un fluide de Bingham.....	18
Figure(II. 8) Rhéogramme d'un fluide de Casson.....	18
Figure (II. 9) Évolution de la viscosité en fonction du temps pour les fluides thixotropes	
Figure (II. 10):géométrie plan-plan.....	19
Figure(II. 11) :géométrie cône-plan.....	20
Figure (II.12) : Géométrie Couette à cylindres coaxiaux	21
Figure (III .1) : Viscosité en fonction de la fraction volumique dans une suspension.....	28
Figure (III.2) : Estimation de la viscosité macroscopique relative en fonction de la fraction volumique en particules pour les suspensions newtoniennes	29
Figure (IV.1) : Présentations de la répartition granulométrique.....	36
Figure (IV.2) Représentation du mode d'une distribution granulométrique.....	37
Figure (IV.3) Représentation graphique de la médiane dans une distribution granulométrique.....	38
Figure (V.1) photo microscopique des particules de la poudre de SYLOID®.....	41
Figure (V.2) Image du rhéomètre rheostress 600 HAAKE.....	43

Figure (V.3) Système de mesure cône – plan.....	44
Figure (VI.1) Variation du coefficient de variation des quatre essais en fonction du diamètre.	49
Figure VI. 2: Courbes expérimentales et moyenne de la fraction des particules du SYLOID®, en fonction du diamètre moyen associé à chaque classe.....	50
Figure (VI. 3) Viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement des solutions de HEC à différentes concentrations, T = 20°C.	52
Figure (VI .4):Variation de n et K en fonction de la concentration du HEC en solution	53
Figure VI.5 : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC, à diverses fractions volumiques, φ dans la classe [30 μ m-45 μ m], T=20°C.....	55
Figure VI.6 : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC et de saccharose, à diverses fractions volumiques, φ dans la classe [30 μ m-45 μ m], T=20°C. Les courbes en continue représentent leur ajustement par le modèle structural de Cross.	56
Figure VI.7 : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC et de saccharose, à diverses fractions volumiques, φ dans la classe [90 μ m-100 μ m], T=20°C. Les courbes en continue représentent leur ajustement par le modèle structural de Cross.....	56
Figure (VI.8) :Courbe de Sensibilité des paramètres structuraux η_0 , et η_∞ du modèle de Cross à la variation de la fraction volumique de la suspension pour des dispersions monomodales pour les classes [30 – 40] μ m et [90 – 100] μ m..	58
Figure VI. 9 Courbes d'écoulement des suspensions en fonction de la dispersité à $\varphi=5$ g/100ml (régime dilué). T = 20°C.....	59
Figure VI. 10 Courbes d'écoulement des suspensions en fonction de la dispersité à $\varphi = 25$ g/100ml (régime semi-dilué). T = 20°C.....	59
Figure VI. 11 Courbes d'écoulement des suspensions en fonction de la polydispersité à $\varphi =25$ g/100ml (régime semi-dilué). T = 20°C.....	60

La liste des Tableaux

Tableau (I.1) Différents forces pouvant être présentes dans une suspension.....	5
Tableau (I.2) Classification des particules en suspension selon Batchelor .K	7
Tableau (IV.1) Les différents types de diamètres équivalents	33
Tableau(V.1) : Modes et classes imposées des suspensions en fonction du type du régime et de la fraction volumique.....	47
Tableau(VI.1) Valeurs des masses fractionnées et cumulées lors du tamisage.....	49

annexe

Tableau VI. 2 résultat des refus de la première masse fractionnés et cumulées	
Tableau VI. 3 résultat des refus de la deuxième masse fractionnés et cumulées	
Tableau VI. 4 résultat des refus de la troisième masse fractionnés et cumulées	
Tableau VI. 5 résultat des refus de la quatrième masse fractionnés et cumulées	
Tableau VI. 6 les fractions pondérales moyennes des refus des quatre masses	
Tableau VI. 7 les différentes masses et concentrations de HEC.	

Introduction générale

Les suspensions des particules dans les liquides sont omniprésentes dans la nature et l'industrie. Leur mise au point nécessite un savoir tant sur le plan physicochimique que rhéologique.

Un exemple très connu dans le domaine pharmaceutique, cas d'une suspension injectable qui a été étudiée au département de chimie industrielle ; les auteurs ont pu expliquer pourquoi une suspension, lors de son injection, est plus douloureuse qu'une autre. Ces auteurs ont remarqué des différences notables sur le plan granulométrique et morphologique des particules des deux suspensions. Ces différences ont impacté les propriétés d'écoulement de ces injectables et par la même leur comportement rhéologique.

Aussi, une question qui s'impose d'elle-même et qui est relative à la compréhension de la sensibilité des paramètres granulométrique, morphologique, de la fraction volumique de la phase dispersée ainsi que du comportement rhéologique de la phase continue sur les propriétés d'écoulement des suspensions. Vraisemblablement, cette question nécessite énormément de travail d'investigation et beaucoup de moyen.

C'est pour toutes ces raisons, que ce sujet a pris naissance et qui consiste, comme première approche, de s'intéresser aux cas les plus simples de suspensions, à savoir, celles qui sont constituées de particules ayant un facteur de sphéricité très proche de 1, dont la phase continue est newtonnienne.

Le contrôle de la granulométrie de ces suspensions se fera par granulométrie à tamis et l'étude rhéologie sera entreprise par utilisation d'un rhéomètre de type cône-plan.

Le mémoire est structuré comme suit :

Une partie théorique traite essentiellement : Les suspensions, la rhéologie, la rhéologie des suspensions et la granulométrie des systèmes dispersés.

Dans la partie expérimentale, Un chapitre est dédié aux matériels et méthodes, dans lequel sont présentés : l'identification de la poudre utilisée, la méthode de fractionnement, la préparation de milieu suspendu, la préparation de la suspension et l'étude rhéologique.

Dans le chapitre résultats et discussions, on étalera tous les résultats de cette étude et tentera de donner des argumentaires pour mieux appréhender cette approche.

Enfin, nous terminons par une conclusion générale et perspectives, dans le but d'entrevoir des études futures consolidées par des orientations rationnelles.

Chapitre I

Les suspensions

Les suspensions de particules jouent un rôle important dans une grande variété de phénomènes naturels et de procédés industriels. On peut citer comme exemples familiers, les sédiments dans les rivières, les boues, les pâtes, les suspensions biologiques (comme le sang), les peintures, les encres, les bétons, les fluides de forage... Les suspensions sont présentes dans de nombreux procédés technologiques ou industriels : le traitement et l'altération des eaux, la séparation dans l'élaboration des minerais, la synthèse de matériaux composites, la fabrication du papier, du médicament ; pour ne citer que quelques exemples [1-4].

I.1 Définition d'une suspension :

Une suspension est un système hétérogène à deux phases, constituée par des particules solides dispersées dans un fluide porteur (newtonien ou non newtonien), dans lequel elles sont insolubles. Le fluide porteur représente la phase liquide continue, dispersante et les particules en suspension constituent la phase solide, discontinue, dispersée [2], dont la taille varie généralement de quelques micromètres à quelques centaines. Plusieurs paramètres caractérisent l'état d'une suspension : la fraction volumique, la distribution granulométrique, la morphologie des particules,...

Le pourcentage des particules par le volume dans le liquide, connu sous le nom de la fraction volumique est définie, dans le cas d'une particule sphérique par [3] :

$$\varphi = \frac{4}{3}\pi a^3 n \quad (\text{I.1})$$

Où n est la densité du nombre de particules et a le rayon.

I.1.1 Suspension colloïdale :

Lorsque la taille des particules est inférieure à 1 μm , les suspensions sont appelées colloïdales. Sous l'effet de l'agitation thermique, les particules colloïdales en suspension subissent des chocs importants de la part des molécules qui les entourent et sont animées d'un mouvement aléatoire appelé mouvement brownien [1][5]. Ce mouvement brownien peut alors être important et le mouvement des particules n'est plus déterministe [5].

Ces suspensions restent stables et peu sensibles à la gravitation car le rapport entre les forces macroscopiques (pesanteur...) et les forces interparticulaires (Van der Waals, électrostatiques...) devient équivalent. Ces particules en suspension confèrent au milieu dispersant de nouvelles propriétés intéressantes (augmentation de la viscosité, gélification, thixotropie...) et sont utilisées comme agents texturants dans l'industrie.

I.1.2 Suspension non Brownienne :

Pour les suspensions non-Browniennes ($L > 1 \mu\text{m}$), la physique est dominée par les effets réciproques des forces motrices (comme la gravité en sédimentation) et de l'hydrodynamique, et les fluctuations d'origine thermiques sont négligeables. En fait, on n'est plus dans un cas d'équilibre thermique (ou dans un état proche de l'équilibre thermique) mais, dans un état loin de l'équilibre.

I.2 Interactions particulaire :

Deux types d'interactions sont considérés, notamment selon [3], l'interaction « particule-particule » et l'interaction « particule-fluide ».

L'existence de ces forces provient de diverses sources physicochimiques, en autres, le pH et la force ionique du milieu suspendant, le caractère ionique des particules, la température,... La dimension de la particule est aussi très importante, parce qu'elle conditionne le type de l'interaction « particule-particule » qui est dominante dans les suspensions. En plus, l'importance « de la forme des particules » est également notée qui conditionne les types d'interaction « particule-fluide » [3].

Les interactions entre les particules peuvent être classées en deux différentes catégories :

Les interactions hydrodynamiques et les interactions non hydrodynamiques.

I.2.1 Interactions hydrodynamiques :

Ces interactions sont causées par le déplacement des particules induit par l'écoulement de la suspension lorsqu'elle est soumise à un cisaillement. Cela peut provoquer des modifications dans la disposition des particules (modification de la structure de la suspension), éloigner ou rapprocher les particules les unes des autres et provoquer des collisions entre particules. La taille et la forme des particules ont une influence importante sur les interactions hydrodynamiques. Dans cette catégorie, le mouvement de diffusion brownien dû à des effets thermiques peut être ajouté.

I.2.2 Interactions non hydrodynamiques :

Ce sont des interactions qui se manifestent à de faibles distances inter-particulaires comme les forces de van der Waals ou les forces répulsives de la double couche électrique, pour des particules possédant des charges électriques. Ces interactions peuvent être attractives, ayant tendance à former des agrégats de particules et même des réseaux de particules pouvant constituer un gel faible, ou répulsives, ayant tendance à distribuer uniformément les particules

dans la suspension [6] [7]. Le tableau (I.1), résume les différentes forces qui peuvent exister dans les suspensions.

Tableau (I.1) Différents forces pouvant être présentes dans une suspension [3].

Forces	Forme mathématique	Paramètres
Brownienne	$\frac{kT}{a}$	K : constante de Boltzmann [J .K ⁻¹] ; T : température absolue[K]
Dispersion ou Van der Waals	$\frac{\theta_{effective}}{a}$	$\theta_{effective}$: constante de Hamaker[N.m] $\theta_{effective}=f(\theta_{particule}, \theta_{fluide})$
électrostatique	$\xi \xi_0 \zeta^2$	ξ : constante diélectrique du fluide ξ_0 : constante diélectrique de l'espace libre [F.m ⁻¹]. ζ : potentiel électrostatique des particules[V]
Hydrodynamique ou visqueuse	$\mu a^2 \dot{\gamma}$	μ : viscosité moyenne [Pa.s] $\dot{\gamma}$ taux de cisaillement
Gravitationnelle	$a^3 \Delta\rho g$	$\Delta\rho$: différence de densité particule -fluide [Kg.m ⁻³] g: constante de la gravité [m.s ⁻²]
Inertie	$\rho_f a^4 \dot{\gamma}^2$	ρ_f : densité du liquide [Kg.m ⁻³]

L'impact du mouvement brownien est régi par le nombre de Peclet (Pe) représentant le rapport entre les forces hydrodynamiques et le coefficient de diffusion brownienne :

$$Pe = \frac{U.r}{D} \quad (I.2)$$

Avec U : la vitesse d'écoulement (fonction de la taille de l'objet), r : le rayon de la particule et D : le coefficient de diffusion brownienne [3].

Pour un disque, le nombre de Peclet s'écrit [1-2] :

$$Pe = \frac{32\mu a^3 \dot{\gamma}}{3 K_B T} \quad (\text{I.3})$$

$K_B = 1.38 \times 10^{-23} \text{ JK}^{-1}$ est la constante de Boltzmann, T la température et a : le : rayon des particules

Si $Pe \ll 1$, alors le cisaillement n'affecte pas le mouvement de l'objet.

Si $Pe > 1$, l'objet voit son déplacement modifié par le cisaillement.

L'impact de l'inertie est régi par le nombre de Reynolds des particules (Stickel et Powell 2005) [8]. Cet effet de l'inertie devient important lorsque $Re > 10^{-3}$.

$$Re = \frac{\rho_0 a^2 \dot{\gamma}}{\mu_0} \quad (\text{I.4})$$

ρ_0 est la densité du fluide de suspension.

I. 3 Classification des particules selon Batchelor:

Batchelor K. [1] propose une classification par ordre de grandeur de la taille des particules en suspension, tableau (I.2), tenant compte de quelques caractéristiques physicochimiques, liées à leur état physique. Ainsi, sont présentées des tailles typiques L (diamètre ou longueur) de particules que l'on rencontre soit dans la nature soit dans des procédés technologiques ou industriels. Sur le tableau sont aussi indiqués la vitesse de sédimentation U , le nombre de Reynolds Re , le coefficient de diffusion brownienne D et le nombre de Peclet Pe pour des particules de masse volumique 2 gcm^{-3} sédimentant dans de l'eau à 20°C sous des conditions terrestres de gravité.

Tableau (I.2) Classification des particules en suspension selon Batchelor .K [1].

L , taille des particules en μm				
10^{-2}	10^{-1}	1	10	10^2
brouillard enfumé		fumée		poussière
		brume, brouillard		gouttes pulvérisées
silice colloïdale		argile		vase
				sable
noir de charbon		pigment de peinture		charbon broyé
		macromolécules de grand poids moléculaire en pelote		macromolécules étirées
		virus		bactéries
				flagelles, cils
				vaisseaux capillaires
				↑ globules rouges
		libre parcours moyen de la molécule d'oxygène		
ultraviolet		lumière visible		infrarouge
U , vitesse de sédimentation d'une sphère dans l'eau en μms^{-1}				
$0,5 \cdot 10^{-4}$	$0,5 \cdot 10^{-2}$	0,5	$0,5 \cdot 10^2$	$0,5 \cdot 10^4$
$Re = UL/\nu$, nombre de Reynolds				
$2,5 \cdot 10^{-13}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$	$2,5 \cdot 10^{-7}$	$2,5 \cdot 10^{-4}$	$2,5 \cdot 10^{-1}$
D , coefficient de diffusion brownienne en $\mu\text{m}^2\text{s}^{-1}$				
$0,5 \cdot 10^2$	$0,5 \cdot 10^1$	0,5	$0,5 \cdot 10^{-1}$	$0,5 \cdot 10^{-2}$
$Pe = UL/D$, nombre de Péclet				
$0,5 \cdot 10^{-8}$	$0,5 \cdot 10^{-4}$	0,5	$0,5 \cdot 10^4$	$0,5 \cdot 10^8$

Tableau (I.2) montre que dans le cas des particules de tailles L comprises entre $0,01\mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$, les forces d'inertie sont très petites devant les forces visqueuses. Le nombre de Reynolds, qui donne une estimation du rapport de ces forces, est très petit devant l'unité. Les écoulements sont alors régis par les équations de Stokes, du fait de leur linéarité.

Lorsque la taille des particules est inférieure à $1 \mu\text{m}$, le nombre de Péclet qui décrit le rapport des mouvements convectifs et browniens, Pe est petit devant l'unité. Les forces d'interaction entre particules comme les forces attractives de van der Waals et les forces répulsives de double couche électrique peuvent être également importantes. C'est une conséquence directe du grand rapport surface sur volume pour les petites particules. Ces forces inter particulaires peuvent aussi être grandes pour des particules plus grosses lorsqu'elles sont proches l'une de l'autre ou d'une paroi.

I.4 Stabilité des suspensions :

La formulation d'une suspension implique des connaissances théoriques liées à la technologie, permettant d'obtenir un système présentant des propriétés optimales du point de vue stabilité

I .4.1 Mouillage des particules :

L'introduction des particules dans un véhicule est une phase importante de la préparation des suspensions. Lorsque ces particules sont très hydrophobes ; elles sont recouvertes d'une mince couche d'air, elles ne sont pas mouillées par le véhicule et auront une tendance à s'agglomérer et à flotter à la surface. On peut quelques fois éliminer cet air par agitation mais plus souvent on a recours à l'addition d'un mouillant [9]. Les mouillants sont utilisés pour diminuer la tension superficielle du liquide, ce sont surtout de la classe des surfactants naturels (lécithine, céphaline...) ou synthétique appartenant surtout à la classe des surfactants non ioniques (ester de sorbitane (tween, span), polymères hydrophiles...) et qui sont souvent utilisés dans la fabrication des suspensions afin d'augmenter la viscosité de la phase dispersante et jouer, par la même, le rôle du mouillant.

I .4.2 Sédimentation des particules :

Généralement, dans les suspensions, les particules dispersées finissent toujours par sédimenter, deux notions sont alors importantes ; la nature du sédiment formé et la vitesse de sédimentation.

I .4.2.1 Caractéristiques du sédiment :

Le dépôt des particules dans une suspension peut conduire à deux types de sédiment soit un sédiment défloculé aboutissant au phénomène du caking soit un sédiment floculé [10].

a) Sédiment défloculé :

Les particules sédimenteront sous l'effet de pesanteur et elles le font individuellement avec une vitesse relativement faible, et elles finissent par former au fond du récipient un sédiment de faible volume dans lequel les particules les plus petites remplissent les interstices existant entre les particules les plus grosses. Les particules sont fortement serrées les unes contre les autres. Les couches inférieures sont comprimées par les couches supérieures. Le liquide dispersant permettant la création de liaison inter particulaire.

Dans ces conditions le sédiment est très difficile à redisperser. Ce phénomène décrit par les anglo-saxons sous le nom du « caking » qui rend pratiquement la suspension inutilisable.

Les suspensions donnant naissance à un sédiment défloculé, sont caractérisé par un rapport de la hauteur du sédiment à l'équilibre et la hauteur totale de la préparation, noté F ;

$$F = \frac{H_u}{H_0} \quad (\text{I.5})$$

b) Sédiment floclé :

Les particules se lient entre elles sous forme de flocons (ou floculats) dans lesquels est emprisonnée une certaine quantité de liquide. Chaque flocon précipite à une vitesse qui dépend de sa taille et de sa porosité. Le sédiment formé par l'accumulation de flocons est très volumineux poreux et faciles à disperser, de plus le liquide surnageant est limpide car les plus fines particules sont intégrées dans les flocons.

Plusieurs types de sédiments floclés peuvent être différenciés, d'après la valeur du rapport du volume du sédiment à l'équilibre et le volume total de la préparation, noté R.

$$R = \frac{V_u}{V_0} \quad (\text{I.6})$$

On distingue deux cas $R=1 ; V_u = V_0$

$$R < 1 ; V_u < V_0$$

c) Vitesse de sédimentation :

Un mouillage équilibré efficace peut faire éviter le phénomène de flottation ; mais il ne pourra en aucun cas empêcher, au cours de temps, la sédimentation des particules dispersées, sous l'action de la pesanteur. La vitesse de sédimentation d'une particule solide dans un liquide visqueux newtonien est régie par la loi de Stokeses [11] :

$$V = \frac{2\Delta\rho g a^2}{9\mu} \quad (\text{I.7})$$

I. 4.3 Paramètres susceptibles d'influencer la stabilité des suspensions :

La loi de Stokes est intéressante dans le domaine des suspensions, dans la mesure où elle permet de quantifier la stabilité. De cette loi, on peut déduire les paramètres qui régissent la stabilité des suspensions et qui sont : la taille des particules, la viscosité et la différence de densité entre les deux phases [12].

I. 4. 3.1 Taille des particules :

La taille des particules est un facteur important. En effet la vitesse de sédimentation selon la loi de Stokes est proportionnelle au carré du rayon de la particule. La taille moyenne admise pour les particules en suspension va de 1 à 50 μm [13]. La réduction de la taille de particule entraîne une augmentation de l'aire interfaciale. Cette augmentation est importante car elle influe, d'une part, sur la vitesse de dissolution de principe actif et d'autre part sur l'augmentation de l'énergie libre de surface, après broyage. Le système créé possède une énergie de surface plus élevée et la dispersion devient plus instable sur le plan thermodynamique. Il a tendance à retrouver son état énergétique et les particules tendent à s'agglomérer pour former des particules plus grosses.

Il convient de ne pas oublier qu'en dehors de la taille moyenne, interviennent également la forme des particules et la répartition granulométrique. Signalons, en particulier, qu'une répartition granulométrique très étroite, tend à éviter une évolution de la taille des cristaux les plus volumineux aux dépens de plus petites.

I.4.3.2 Différence de densité entre les deux phases :

Selon la loi de Stokes la différence de densité entre les deux phases doit être la plus faible possible. La densité de la phase dispersante dans le cas d'une dispersion aqueuse peut être diminuée par l'addition d'alcool éthylique mais son emploi est limité quantitativement. Elle peut être augmentée à l'aide de la glycérine, du sirop ou même avec du polyéthylène glycol.

I. 4. 3.3 La viscosité :

L'un des moyens les plus utilisés pour augmenter la stabilité des suspensions est l'addition des substances permettant l'augmentation de la viscosité de la phase dispersante. Les adjuvants les plus couramment employés sont les polymères dont les solutions présentent un écoulement newtonien, plastique, pseudo plastique ou thixotrope.

Chapitre II

Rhéologie

La rhéologie [14] a été initiée la première fois par Robert Hooke en 1678 qui a travaillé sur les déformations mécaniques des solides parfaitement élastiques ; la loi de Hooke de l'élasticité est essentiellement vraie si les déformations restent modérées et caractérisées d'un comportement élastique c.à.d:

- une proportionnalité entre déformation et force appliquée.
- le retour à l'état non déformé lorsque la force est supprimée.

L'équation de Hooke est :

$$E = \frac{\tau}{\gamma} \quad (\text{II.1})$$

Où E: le module de Hooke.

Newton a travaillé dans le domaine de la rhéologie, en étudiant les liquides à viscosité constante. Newton s'est intéressé à la vitesse de déformation du fluide $\dot{\gamma}$ dont la conséquence de cette dernière a été couronnée par la loi de plasticité en 1687.

L'équation de Newton est :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (\text{II.2})$$

Et dans ce cas ; les fluides aux quelles cette équation est appliquée sont appelés les fluides newtoniens.

II. 1 Définition de la rhéologie :

La rhéologie est une science qui étudie le comportement rhéologique du fluide. C'est une discipline qui traite l'écoulement et la déformation mécanique des fluides sous l'effet d'une contrainte appliquée (dans des conditions d'essai commandées) [14].

En distingue trois types de la rhéologie :

- La rhéologie expérimentale : Une détermination expérimentale des relations du comportement (entre contraintes et déformation ou vitesse de déformation).
- La rhéologie structurale : Une explication des comportements à partir de la structure des matériaux

- La rhéologie théorique : permet de fournir des modèles mathématiques expliquant les comportements, indépendamment de la structure microscopique.

II. 2 Définition de mouvement de cisaillement :

C'est un mouvement au cours duquel le matériau présente une structure en lamelles, figure (II.1) en couche adjacentes d'épaisseurs infiniment minces. La déformation du matériau s'effectue par un glissement relatif des différentes couches les unes sur les autres sans qu'il y ait transfert de matière d'une couche à l'autre.

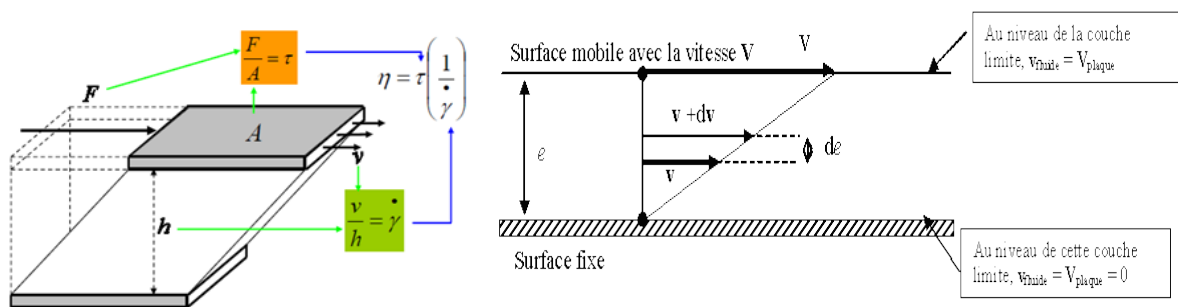


Figure (II. 1) : Mouvement de cisaillement

II. 3 Grandeurs physique de la rhéologie :

Il existe trois grandeurs physiques qui définissent le mouvement de cisaillement: la déformation γ , la vitesse de déformation (taux de cisaillement) $\dot{\gamma}$ et la contrainte τ .

II. 3. 1 La déformation γ :

C'est un paramètre cinématique fondamental dans le cas du mouvement laminaire de cisaillement, présentant une symétrie plane, où le matériau est cisailé entre deux plans parallèles, l'un mobile, l'autre fixe. La déformation est donnée par :

$$\gamma = \frac{u_h}{h} \quad (\text{II. 3})$$

Où : u_h est le déplacement d'une lamelle et h est la hauteur. Remarquons que la déformation est sans unité.

II. 3.2 La vitesse de cisaillement : le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$:

C'est une grandeur cinématique fondamentale de la rhéologie, qui décrit le mouvement du matériau dans l'espace au cours du temps ; et si l'on considère le temps que met la déformation à ce produire. On définit la vitesse de déformation comme étant une dérivée par rapport au temps de déformation de cisaillement. Elle est définie par :

$$\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt} \quad [s^{-1}] \quad (\text{II. 4})$$

II. 3.3 La contrainte de cisaillement:

La contrainte de cisaillement (τ) est une grandeur dynamique en rhéologie, la contrainte est une force F appliquées à une surface S; cette force provoque un écoulement dans la couche liquide ; elle varie en général d'une couche à l'autre mais est constante en tout point de la même couche.

$$\tau = \frac{dF}{dS} \quad [N/m^2] \quad (\text{II. 5})$$

II. 3.4 La viscosité :

C'est le paramètre qui traduit l'existence d'effort tangentielle dans le fluide en mouvement, elle caractérise l'aptitude d'un fluide à s'écouler. Il existe deux définitions de la viscosité macroscopique et microscopique.

- Viscosité macroscopique : C'est le paramètre qui traduit l'existence d'effort tangentielle dans le fluide en mouvement ; on définit la viscosité macroscopique par les frottements entre deux couches adjacentes.
- Viscosité microscopique : Qui se manifeste par la résistance des objets en suspension à l'écoulement.

L'unité de la viscosité dans le système SI est de Pa.s.

II. 4 Classification des fluides selon leur comportement rhéologique :

On peut classer les fluides selon leurs comportements rhéologiques en deux catégories : les fluides indépendants du temps et les fluides dépendant du temps [15].

II. 4. 1 Les fluides indépendants du temps :

Ce sont les fluides pour lesquels il existe une relation biunivoque entre la contrainte de cisaillement τ et la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$, leur comportement rhéologique est indépendant de la durée d'application de la contrainte. Cette catégorie de fluide est subdivisée en :

-fluides Newtoniens et les fluides non - Newtoniens.

Parmi les modèles mathématiques concernant ce type de fluides, on peut citer la loi de d'Ostwald :

$$\tau = k \dot{\gamma}^n \quad (\text{II. 6})$$

Avec τ : contrainte de cisaillement ;

$\dot{\gamma}$: vitesse de déformation ;

K : indice de consistance ;

n : indice de structure ;

A partir des valeurs de n on peut classer les fluides comme suit :

$n < 1$: le fluide est pseudo plastique, $n = 1$: le fluide est Newtonien, $n > 1$: le fluide est dilatant.

II. 4. 1. 1 Les fluides Newtoniens :

Ces fluides sont caractérisés par une relation proportionnelle entre la contrainte de cisaillement τ et la vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$. Leur viscosité ne dépend pas du cisaillement appliqué. Les rhéogrammes représentatifs de ces fluides sont présentés sur la figure (II.2)

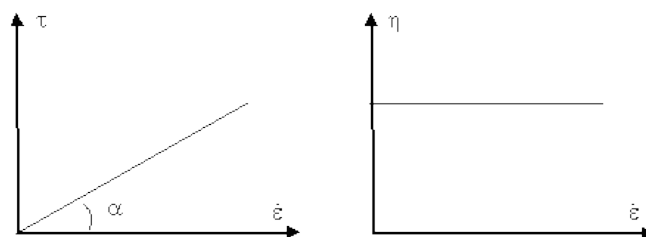


Figure (II. 2) courbe d'écoulement d'un fluide Newtonien

II. 4. 1. 2 Les fluides non- Newtoniens :

Pour ces fluides la viscosité (μ) varie en fonction de la contrainte de cisaillement (τ) ou de la vitesse de déformation ($\dot{\gamma}$). On distingue deux catégories de fluide non Newtonien indépendants de temps :

Les fluides a contrainte seuil d'écoulement (fluide plastique).

Les fluides sans contrainte seuil d'écoulement (fluide pseudo – plastique)

a) Les fluides pseudoplastiques:

Leur comportement rhéologique diffère essentiellement de celui des fluides plastiques par le faite que les fluides pseudo-plastiques ne présentent pas de contrainte seuil d'écoulement, figure (II.3). La viscosité apparente de tels fluides diminue avec la vitesse de cisaillement, figure (II.4).

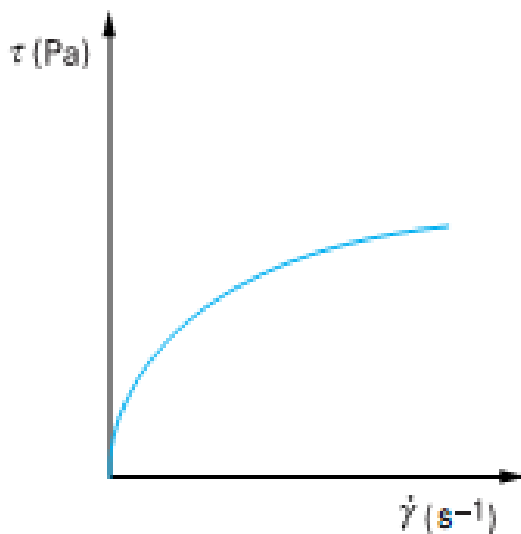


Figure (II. 3) : Rhéogramme d'un fluide pseudoplastique

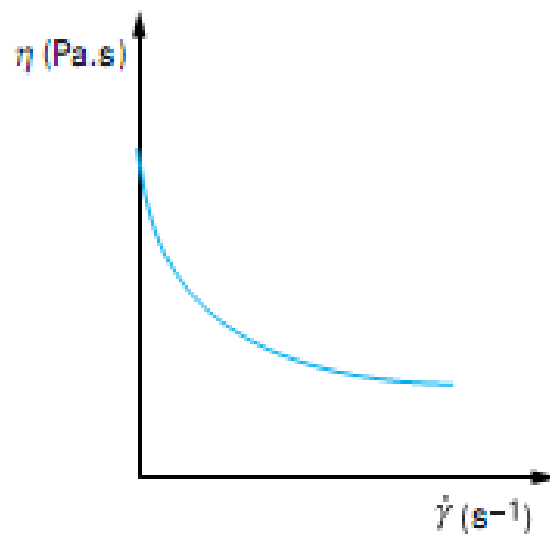


Figure (II.4) : Variation de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement

b) Les fluides rhéopaisissants ou dilatants :

Ces fluides obéissent également à la loi d'Ostwald, mais avec $n > 1$, autrement dit la viscosité apparente croit avec la vitesse de cisaillement figure (II.6).

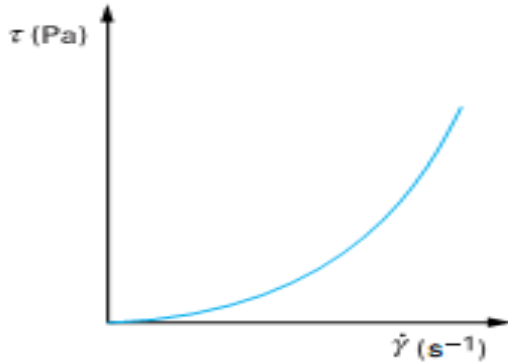


Figure (II. 5) : Rhéogramme d'un fluide dilatant

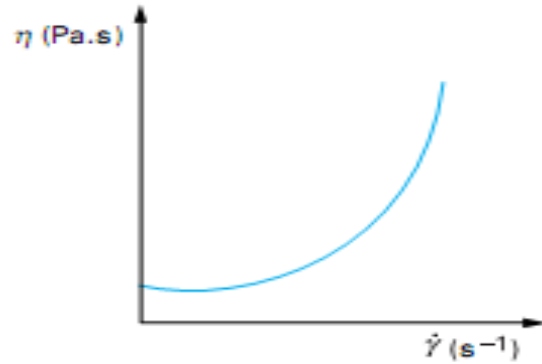


Figure (II. 6) : variation de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement

Ce comportement est beaucoup moins fréquent. Il concerne des dispersions très concentrées, les solutions d'amidons, les sables mouillés,... etc. Certains de ces produits augmentent de volume sous la contrainte (épaississants). Les causes d'origine moléculaire sont diverses et pas toujours élucidées. On peut invoquer l'augmentation du volume libre entre les particules. Au repos, il serait minimal, sous un gradient de vitesse en augmentation, il y'a gonflement du liquide (les particules sont moins imbriquées). La phase continue n'est plus capable de combler les vides interparticulaires ni d'assurer une bonne lubrification.

c) Les fluides plastiques :

Ils sont caractérisés par une contrainte seuil de cisaillement τ_0 en dessous de laquelle l'écoulement n'est pas possible. Autrement dit, lorsqu'ils sont soumis à une contrainte très faible leur viscosité est tellement forte qu'ils ne peuvent pas s'écouler. Au repos, le liquide possède une structure tridimensionnelle rigide (particule emboîtées) ou floculées. Le seuil d'écoulement correspond à l'énergie nécessaire pour les séparer. Au-delà, l'écoulement s'effectue sous l'effet de la contrainte effective $(\tau - \tau_0)$. On distingue deux types de fluides plastique

- Liquide plastique idéal ou liquide de Bingham :

Des qu'on dépasse une certaine contrainte de seuil τ_0 la résistance de ces fluides se détruit et le comportement du fluide, figure (II.7) devient Newtonien sous l'effet de la contrainte. L'équation qui régit ces fluides donnée par :

$$\tau = \tau_0 + \mu_p \dot{\gamma} \quad (\text{II. 7})$$

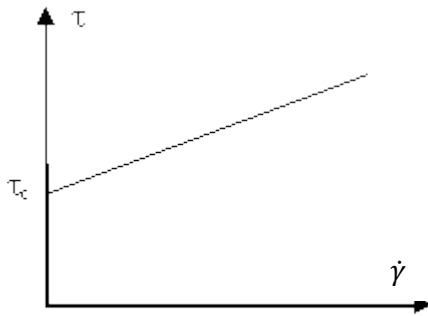


Figure (II.7) Rhéogramme d'un fluide de Bingham

τ : contrainte de cisaillement, τ_0 : contrainte seuil, μ_p : viscosité plastique, $\dot{\gamma}$: vitesse de déformation

- **Liquide plastique non idéal ou liquide de Casson :**

Ce cas est plus répandu que les liquides de Bingham, par exemple, la boue, du dentifrice, du sulfate de zinc ou du baryum en suspension, la pâte à pain, les matières grasses, les peintures, ... etc.

L'équation qui régit ces fluides est donnée par :

$$\tau^{1/2} = \tau_0^{1/2} + (\mu_p \dot{\gamma})^{1/2} \quad (\text{II. 8})$$

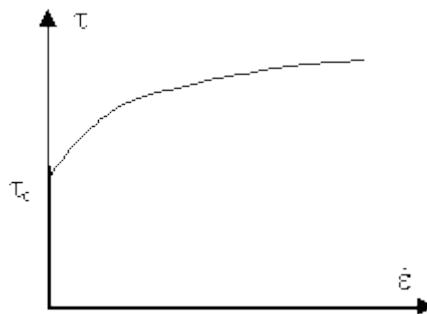


Figure (II. 8) Rhéogramme d'un fluide de Casson

II. 4. 2 Les fluides dépendant du temps

Le comportement rhéologique de ces fluides est conditionné par les modifications de leur structure interne, si le traitement antérieur, et la viscosité apparente dépend du temps, si elles

sont rapides, la viscosité apparente ne dépendra pas que de la contrainte et vitesse de cisaillement.

II. 4. 2. 1 Les liquides thixotropes :

La thixotropie est un phénomène rhéologique de grande importance industrielle, elle est définie comme étant la diminution de la viscosité sous l'effet de l'agitation, suivie d'une récupération progressive de la viscosité quand l'agitation cesse, c.-à-d.: après un temps de repos suffisant, sa structure initiale se régénère, tel qu'il est représenté sur la figure (II. 8) :

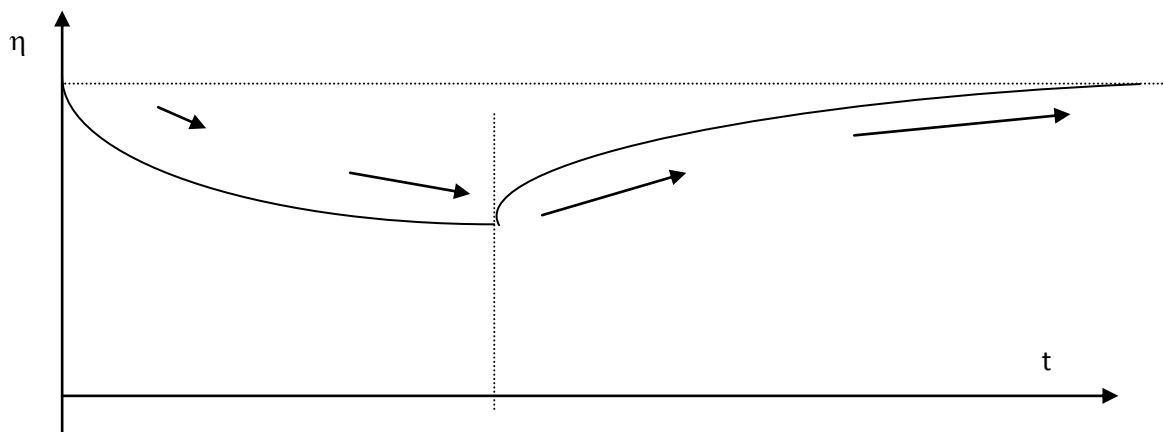


Figure (II. 8) Évolution de la viscosité en fonction du temps pour les fluides thixotropes

II. 5. Détermination expérimentale du comportement rhéologique :

De nombreuses techniques ont été développées et utilisées pour mesurer les propriétés rhéologiques d'un fluide [2]. On présente ici les trois types de géométrie les plus utilisées dans la pratique.

- Géométrie plan- plan :

Le fluide à étudier est emprisonné entre un plateau et un autre plateau de révolution, de rayon R . La distance entre les plateaux h doit être : $h \ll R$ (figure (II.10)). Le mouvement laminaire de cisaillement est obtenu en communiquant au plateau supérieur une vitesse de rotation constante ω_0 , le plateau inférieur demeurant fixe. Par suite du mouvement des couches les unes par rapport aux autres, il apparaît en tout point de l'échantillon une vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ et une contrainte de cisaillement τ .

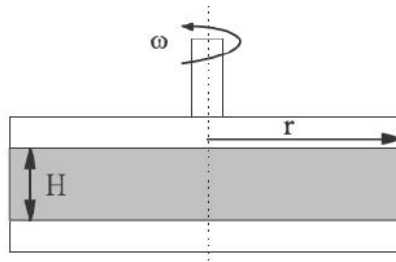


Figure (II. 10):géométrie plan-plan

- Géométrie cône-plan

Le fluide à étudier est emprisonné entre un plateau et un cône de révolution, de rayon R, dont le sommet est situé sur le plateau avec un axe perpendiculaire à ce dernier. L'angle ψ que fait la génératrice du cône et du plateau est petit : compris entre 5° et 0.3° (figure(II.11)).

Le mouvement laminaire de cisaillement est obtenu en communiquant au cône une vitesse de rotation constante ω_0 , le plateau demeurant fixe. La substance se décompose en couches, qui sont constituées par des cônes de révolution de même sommet et de même axe que le cône solide, animés de vitesses angulaires de rotation différentes, variant continûment de zéro (pour la couche en contact avec le plateau) à ω_0 (pour la couche en contact avec le même solide). Par suite du mouvement des couches les unes par rapport aux autres, il apparaît en tout point de l'échantillon une vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ et une contrainte de cisaillement τ .

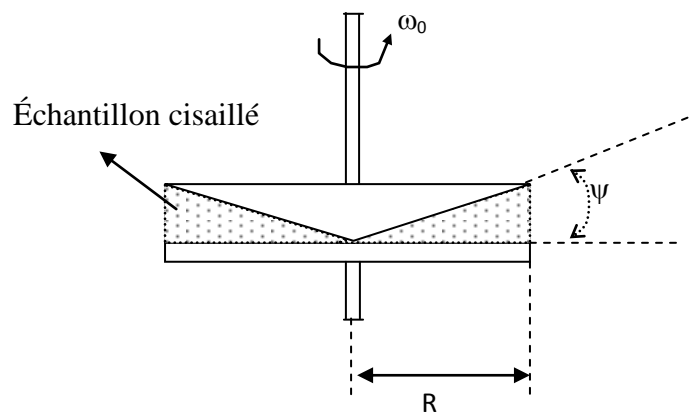


Figure (II. 11) :géométrie cône-plan

- Géométrie à cylindres coaxiaux

Le fluide à caractériser est emprisonné entre deux cylindres coaxiaux de rayons R_1 et R_2 de hauteur h (figure(II.12)). Le mouvement laminaire de cisaillement est obtenu en communiquant à l'un des cylindres un mouvement de rotation uniforme de vitesse angulaire ω_0 , l'autre cylindre demeurant fixe. Notons que l'on rencontre des rhéomètres cylindriques dans lesquels le cylindre mobile est intérieur ou au contraire extérieur.

La substance se décompose en couches cylindriques coaxiales, animées de vitesses angulaires différentes, variant continûment de zéro (pour la couche au contact avec le cylindre extérieur fixe) à ω_0 (pour la couche au contact avec le cylindre intérieur mobile).

Par suite du mouvement relatif des couches les unes par rapport aux autres, il apparaît en tout point de l'échantillon une vitesse de cisaillement $\dot{\gamma}$ et une contrainte de cisaillement τ .

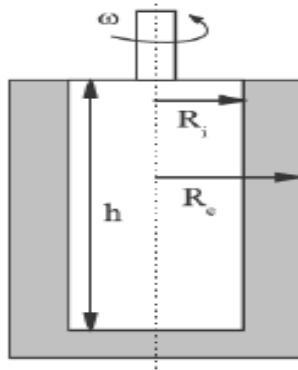


Figure (II.12) : Géométrie Couette à cylindres coaxiaux

Chapitre III

Rhéologie des suspensions

III.1 Généralités :

Depuis plus d'un siècle, les suspensions de particules dispersées dans un liquide ont fait l'objet de nombreuses études à la fois théoriques, numériques et expérimentales. La principale raison de cet intérêt constant réside dans leur ubiquité dans une large gamme de domaines d'application : génie civil, industrie pharmaceutique ou agroalimentaire, écoulements géophysiques ou biologiques [16]... Si les échelles de temps et de longueur de ces phénomènes diffèrent, des propriétés communes d'écoulement peuvent être dégagées.

Excepté la relation exponentielle empirique d'Arrhenius remontant à 1887, la rhéologie des suspensions a été introduite comme thématique spécifique, il y a environ 100 ans. La dissertation inaugurale d'Einstein de 1906 [3] est considéré comme point de départ de cette spécialité (et de la micromécanique en général) [17].

De point de vue scientifique, la rhéologie des suspensions représente un défi majeur, où les interactions fluide-particules, particules-particules, le mouvement et la rotation des particules modifient profondément le comportement rhéologique du fluide. Ce sont des phénomènes physiques difficiles à observer, à mesurer et à modéliser [2].

Le comportement rhéologique des suspensions a été étudié par de nombreux chercheurs, aussi bien d'un point de vue théorique qu'expérimental. Il semble qu'il n'existe pas de méthodologie systématique bien établie permettant d'élaborer un matériau possédant des caractéristiques particulières, à partir de composants dont les propriétés sont connues, alors qu'il s'agit d'un problème rencontré dans de nombreux processus industriels [2].

La recherche empirique dédiée aux suspensions de particules s'est focalisée sur la détermination d'un rapport entre la viscosité relative μ_r et la fraction volumique ϕ de la suspension. Cette recherche a été heurtée à deux types de problèmes. Le premier est lié au comportement non newtonien, de part sa description qualitative et le deuxième, aux conditions expérimentales qui ne sont pas toujours contrôlées, par le fait de la forte polydispersité des particules et de leurs interactions [8].

En conséquence, plusieurs équations empiriques reliant la viscosité apparente, μ_{app} , ou la viscosité relative, μ_r , à la fraction volumique, ϕ , ont été déterminées.

La viscosité apparente étant le rapport entre la contrainte et la vitesse de déformation.

$$\mu_{app} = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (\text{III.1})$$

Dans ce cadre, on s'intéresse plus à la viscosité relative, μ_r ; qui est définie comme :

$$\mu_r = \frac{\mu_s}{\mu} \quad (\text{III.2})$$

μ_r : la viscosité relative de la suspension

μ_s : la viscosité de la suspension

μ : la viscosité de fluide suspensé ou de la phase continue

Dans le cas où le fluide suspensé est newtonien la viscosité μ devient une viscosité dynamique newtonienne [1].

Les différentes équations liant la viscosité relative à la fraction volumique, dépendent non seulement de la morphologie et de la distribution granulométrique des particules (sphérique ou non sphérique) mais également du domaine de la fraction volumique, à savoir, le régime de la suspension : dilué, semi dilué ou concentré.

III.2 Comportement rhéologique des particules en forme sphérique :

III.2.1 Les suspensions diluées :

Le comportement des suspensions dans la limite diluée a été étudié théoriquement pour la première fois par Einstein (1906, corrigé 1911) [8], En déterminant une solution analytique pour une particule ayant la forme d'une sphère isolée sur le plan hydrodynamique. Dans ce cas, la fraction volumique en particules sphériques reste inférieure à 3% environ du volume total. La relation a été obtenue, en calculant l'énergie dissipée dans l'écoulement de la suspension ; à l'échelle macroscopique, auquel cas la suspension est considérée comme un fluide homogène, à l'échelle des particules [2] [12].

Einstein a montré que la viscosité relative des suspensions de particules dépend seulement de la fraction de volume de la particule [8].

$$\mu_r = 1 + \beta \cdot \varphi \quad (\text{III.3})$$

Où β est une constante désignée différemment sous le nom du coefficient d'Einstein qui est définie comme étant la viscosité intrinsèque déterminée dans la limite : $\varphi \rightarrow 0$ et dépend de

la géométrie et de la déformabilité des particules suspendue. Pour les particules sphérique, $B = \frac{5}{2}$ [8] [4].

En dépit de l'effort expérimental au cours du dernier siècle, cette valeur de 2,5 n'a pas été controversée, toutefois certains chercheurs ont élargi la valeur de B dans l'intervalle 1,5 – 5 [8].

III.2.2 Les suspensions semi-diluées :

Batchlor K. et Green [4], Soixante ans plus tard, s'appuyant sur l'équation d'Einstein, on rajouté un terme d'ordre deux a φ permettant d'expliquer les interactions hydrodynamiques entre les particules et les contributions à l'effort en bloc dû au mouvement brownien. La principale difficulté dans cette approche était de prendre en compte le couplage entre la distribution des centres des particules au sein du matériau et l'écoulement imposé à la suspension [7] [4]. Cette relation est donnée par :

$$\mu_r = 1 + 2,5 \varphi + B_1 \varphi^2 \quad (\text{III.4})$$

Si le mouvement brownien est considéré, $B_1 = 6,2$. Pour un écoulement élongationnel du mouvement non-brownien, $B_1 = 7,6$ [7].

La relation polynômiale de la viscosité relative dans le domaine semi-dilué décrit mal les données expérimentales, pour une fraction volumique, $\varphi > 0,25$ et devient plus médiocre à mesure que φ augmente. Une des raisons qui justifie cette mauvaise représentativité et que le modèle prévoit une valeur finie de viscosité lorsque $\varphi \rightarrow 1$ [8]. Physiquement, ceci ne peut être possible, du fait de la valeur maximale de la fraction volumique, φ_m associée à l'empilement compact qui est égale à 0.74, dans le cas d'un système monodisperse sphérique, auquel cas le cisaillement est impossible et la viscosité devient infinie.

III.2.3 Les suspensions concentrées :

Les définitions caractérisant une suspension concentrée sont celles données par COUSSOT et par ANCEY [77, 26].

Dans le régime concentré, lorsque les distances inter-particulaires deviennent inférieures au rayon des particules, les interactions hydrodynamiques se développent effectivement, la microstructure (l'arrangement spatial des particules à l'échelle microscopique) et le détail des interactions à courte portée (ici, uniquement lubrification et friction) complexifient non seulement la dérivation théorique des équations constitutives mais rendent également

expériences et simulations numériques dépendantes d'un grand nombre de paramètres plus ou moins bien contrôlés (polydispersité, rugosité des particules, interactions colloïdales, homogénéité spatiale de la fraction volumique et du cisaillement). Sur la base de ces résultats, des corrélations empiriques ont été proposées pour décrire la rhéologie des suspensions concentrées mais la dispersion des données disponibles n'a pas permis à ce jour de consensus général sur la forme mathématique d'un modèle rhéologique complet et universel [16].

De nombreuses approches, théoriques, semi empiriques ou empiriques ont été proposées pour estimer la viscosité d'une suspension concentrée [2]. Une idée simple a été discutée par Phan-Thien et Pham qui ont considéré une suspension de fraction volumique φ et dont la viscosité du fluide porteur est égale à μ . En considérant la viscosité μ comme la viscosité moyenne du fluide et en utilisant la relation d'Einstein ; l'incrément en viscosité $d\mu$ est donné par :

$$d\mu = \frac{5}{2} \frac{d\varphi}{(1-\varphi)} \mu \quad (\text{III.5})$$

L'intégration de cette relation nous donne l'estimation de la viscosité macroscopique relative de la suspension suivante :

$$\mu_r = (1 - \varphi)^{-5/2} \quad (\text{III.6})$$

Ball et Richmond [2] ont utilisé un argument plus raffiné, à cause d'un « effet de Foule » ou d'empilement compact. Ils ont remplacé $1-\varphi$ par $1 - \frac{\varphi}{\varphi_m}$ dans la relation précédente et obtenue l'estimation de la viscosité suivante :

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\varphi}{\varphi_m}\right)^{-5/2\varphi_m} \quad (\text{III.7})$$

Qui n'est autre que la relation de Krieger-Dougherty [2]. Dans cette relation, φ_m représente la valeur de la fraction volumique maximale, c'est-à-dire le volume maximal de particules par unité de volume total que l'on peut inclure dans la suspension. Où la fraction volumique maximale au delà-de laquelle il n'est plus possible d'imposer un cisaillement macroscopique.

La relation de Krieger-Dougherty fonctionne bien pour les suspensions dont le fluide suspendant est newtonien [3][8][18-20].

En (1965) Thomas a proposé cette relation [18] :

$$\mu_r = 1 + 2,5\varphi + 10,05\varphi^2 + A \times \exp(B \times \varphi) \quad (\text{III.8})$$

$$A=2,73 \times 10^{-3} \quad B=16,6 ; \phi < 0,6.$$

D'après une étude de Metzner une de bonne estimation analytique de la viscosité a été proposée par Frankel et Acrivos 1967 [2]:

$$\mu_r = \frac{9 \frac{\phi}{\phi_m}^{1/3}}{8 \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{1/3}} \quad (\text{III.9})$$

Où ϕ_m est la fraction volumique maximale (0.62 - 0.64) pour des sphères monodispersées.

Cependant, cette équation n'est pas compatible avec la relation d'Einstein quand ϕ tend vers 0 et Metzner [2] a recommandé une relation empirique :

$$\mu_r = \left(1 - \frac{\phi}{A}\right)^{-\alpha} \quad (\text{III.10})$$

En général $\alpha = 2$, ce qui permet une bonne représentation des résultats expérimentaux ; dans ce cas on peut retrouver à partir de cette relation la formule d'Einstein lorsque $\phi \rightarrow 0$ à condition de prendre $A = 0,8$.

KODA et FURUSE (2006) [7] ont développé cette équation :

$$\mu_r = \frac{1+0,5K\phi-\phi}{(1-K)^2 (1-\phi)} \quad (\text{III.11})$$

Où : $K=1+0,6\phi$ pour les particules sphériques [18]. La figure(III.1) ces dessus exprime la viscosité de suspension μ_s en fonction de la fraction volumique ϕ :

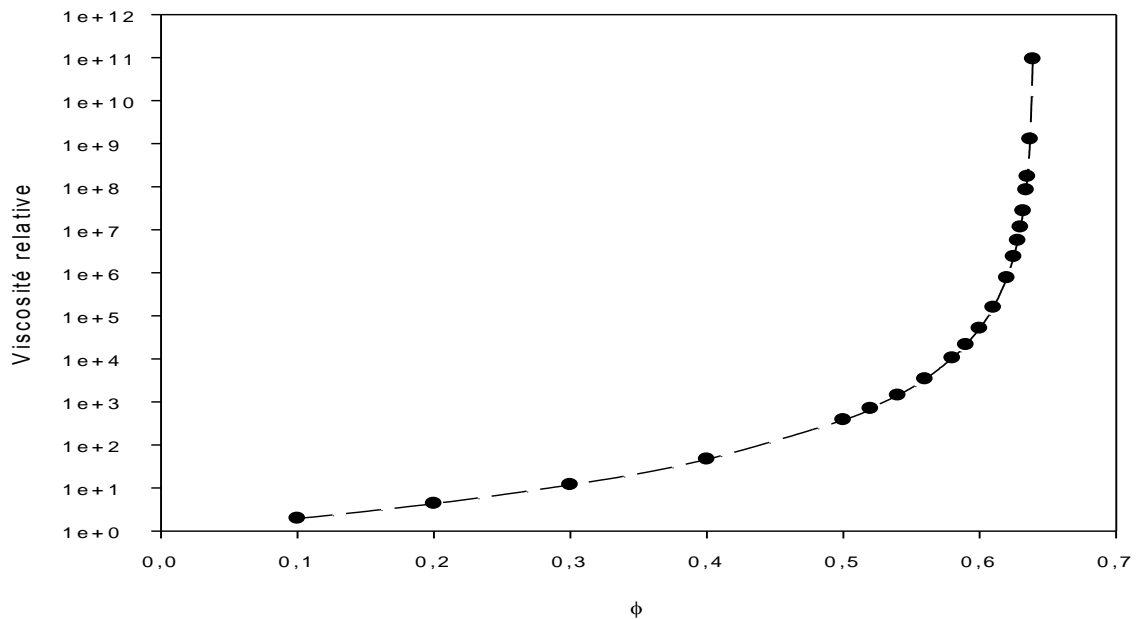


Figure (III .1) : Viscosité en fonction de la fraction volumique dans une suspension

III .3 Les régimes des suspensions en fonction de la fraction volumique :

Rutgers (1962) [8] et Thomas (1965) [8] ont émis des critiques sommaires sur les premiers travaux de recherche concernant le rapport de la viscosité relative et la fraction volumique des particules. Tous les deux trouvent les conditions expérimentales pour réduire au minimum l'éparpillement des données en délimitant trois régimes correspondant à trois valeurs de la fraction volumique.

III .3.1 Régime diluée :

Une suspension est considérée diluée quand la distance entre les particules en suspension est plus grande que le chemin libre moyen dû au mouvement brownien d'une particule simple [1]. Elle se caractérise par une très faible fraction volumique en espèce solide. Les particules étant très éloignées les unes des autres, aucune interaction à courte ou longue distance ne vient perturber leur trajectoire. Dans ce type de suspension, la viscosité augmente linéairement en fonction de la concentration en éléments solides. La fraction volumique dans ce cas inférieure à 0,1 ($\phi < 0,1$).

D'après Thomas [8], pour une suspension très diluée, la fraction volumique est égale ou inférieure à 0,01, pour Rutgers, elle est de 0,02. Dans ce cas le comportement rhéologique est approximativement linéaire et est Newtonien. L'équation d'Einstein reste toujours valable pour les deux fractions volumiques précédentes.

III .3.2 Régime semi diluée :

Dans ce cas la fraction volumique est comprise entre 0,1 et 0,25 ($0,1 < \phi < 0,25$). La viscosité μ_r montre une dépendance supérieure à l'égard de ϕ mais le comportement est toujours approximativement newtonien.

III.3.3 Régime concentré :

Le régime Commence près de $\phi = 0.25$ et est caractérisé par la croissance rapide de la viscosité relative avec la fraction volumique des particules. De plus en plus, le comportement devient non newtonien.

En bref :

Jusqu'à $\phi = 0,02$, la formule d'Einstein est adéquate.

Pour $\phi \geq 0,1$ jusqu'à $\phi = 0,6$, les estimations de Krieger-Dougherty ou de Frankel et Acrivos peuvent être utilisées pour les suspensions monodisperses. Les relations sont résumées dans la figure (III.2) :

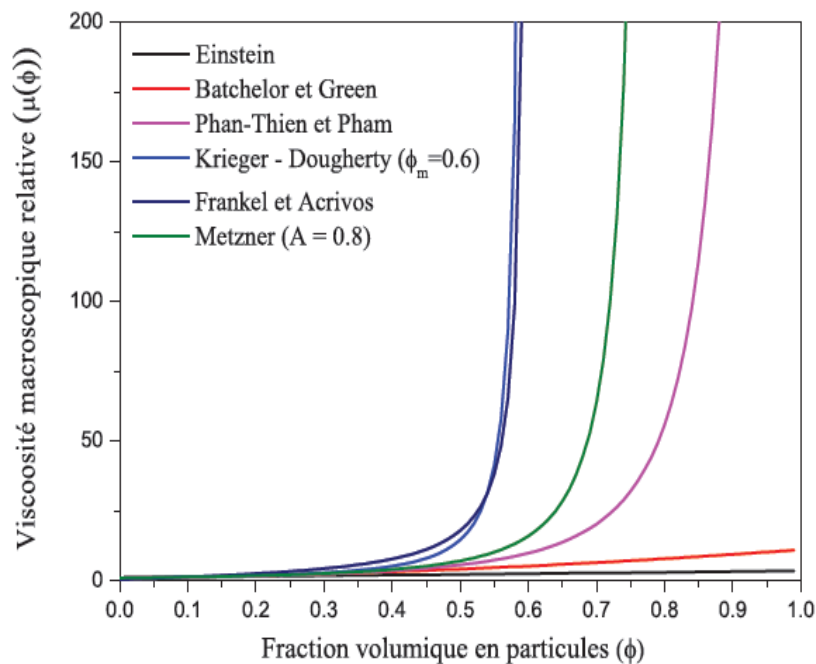


Figure [12] (III.2) : Estimation de la viscosité macroscopique relative en fonction de la fraction volumique en particules pour les suspensions newtoniennes.

III .4 Comportement rhéologique des particules de la forme non sphérique :

Le comportement des particules non-sphériques dans l'écoulement de cisaillement a été bien étudié pour les particules qui ont un axe de symétrie de rotation et présente une symétrie de part et d'autre le long de cet axe. (par exemple sphéroïdes allongés et aplatis aux pôles, cylindres, tiges, disques, etc [8].

Chapitre IV

Granulométrie des systèmes dispersés

La granulométrie est définie comme étant un ensemble des caractéristiques géométriques définissant l'état d'un solide divisé. C'est l'expression de la distribution d'une matière fragmentée entre les différentes classes granulométriques qui la composent. Elle est également la mesure de la dimension des granulats contenus dans un lot de matière et leur répartition selon leur taille. Le tamisage, utilisé dans ce travail, est une des méthodes granulométriques.

IV.1 Diamètre équivalent des particules :

C'est une caractéristique qui conditionne fortement les propriétés physicochimiques et rhéologique du système dispersé (sédimentation, crémage, stabilité, biodisponibilité, solubilité, dureté, friabilité, dissolution,...). Le nombre de paramètres nécessaires à la description de la taille d'un objet augmente avec la complexité de forme de celui-ci. Pour contourner cette difficulté, On raisonne alors le plus souvent en termes de diamètre équivalent des particules, en considérant un objet de forme simple qui aurait une même propriété que la particule elle-même : même surface ou même volume, par exemple [22].

On distingue trois groupes de diamètres équivalents :

IV.1.1 Diamètres statistiques :

Obtenu par observation des particules au microscope. Il faut compter plusieurs centaines d'observations. C'est la raison pour laquelle ces diamètres sont quelquefois qualifiés de *diamètres statistiques*.

IV.1.2 Diamètre projeté :

C'est le diamètre du cercle qui aurait la même surface que la surface apparente de la particule,

IV.1.3 Diamètre de Féret :

C'est la distance entre deux tangentes au contour apparent de la particule menées parallèlement à une direction fixe. On peut calculer le diamètre de Féret moyen par rapport aux diamètres min et max. Comme on peut calculer le diamètre de Féret Max 90° (les tangentes sont verticales)

IV.1.4 Diamètres de sphère équivalente (tableau IV.1) :

Le diamètre de sphère équivalent du grain est déterminé, en considérant un objet sphérique qui aurait une même propriété que le grain lui-même : même surface ou même volume, même surface/volume (surface spécifique), même résistance au déplacement dans le même fluide, à

même vitesse, même vitesse de chute libre dans le même liquide et pour un grain de même masse volumique,... voir le tableau ci-dessous :

Tableau (IV.1) Les différents types de diamètres équivalents

Symbole	Nom	propriété équivalente de la sphère	Expression
d_v	diamètre en volume	Volume	$V = \pi/6 \cdot d_v^3$
d_s	diamètre en surface	Surface	$S = \pi d_s^2$
d_{sv}	diamètre en surface spécifique	Surface/volume	$d_{sv} = d_v^3 / d_s^2$
d_d	diamètre de poussée	Résistance au déplacement dans le même fluide, à la même vitesse	$F_D = 3\pi d_d \mu u$
d_{stk}	diamètre de Stokes	Vitesse de chute libre suivant la loi de Stokes ($Re < 0,2$)	$d_{stk}^2 = d_v^3 / d_d$
d_A	diamètre de maille	Passage à travers de la même ouverture carrée	

Avec :

$$Re_t = \frac{\rho U_t d}{\eta}$$

Re_t : Nombre de Reynolds
 ρ : la masse volumique du grain
 U_t : une vitesse terminale constante
 d : le diamètre
 η : la viscosité du fluide

IV.2 Facteurs de forme :

La notion de sphère équivalente (ou cercle) qui permet de représenter des particules de formes quelconques par une seule valeur, est très utilisée mais cette pratique est dans certains cas beaucoup trop réductrice. Pour les particules de formes très irrégulières impliquées dans des procédés où la forme joue un rôle important, il est nécessaire d'affiner la description granulométrique et de décrire le grain non plus à l'aide d'un paramètre unique, mais en lui

adjoignant des paramètres supplémentaires qui tentent de quantifier dans quelle mesure l'objet étudié s'éloigne de la sphère modèle : ce sont les facteurs de forme.

IV.2.1 Coefficients de forme pour une particule de taille caractéristique L :

- Coefficient de forme surfacique : $F_S = \text{surface particule} / L^2$
- Coefficient de forme volumique : $F_V = \text{volume particule} / L^3$

IV.2.2 Facteurs de sphéricité :

On peut définir plusieurs facteurs de sphéricité, selon la sphère équivalente considérée. Les principaux facteurs de sphéricité sont développés ci-dessous. Il en existe d'autres, mais tous se ramènent à l'un de ceux-là ou à l'une de leurs combinaisons. Si les objets considérés sont des sphères, ces facteurs sont égaux à 1.

$$\Psi_v = \frac{\text{surface de la sphère de même volume que le grain}}{\text{surface du grain}}$$

$$\Psi_v = \frac{\pi D_v^2}{\pi D_a^2} = \left(\frac{D_v}{D_a} \right)^2 \quad \text{pour un cube } \Psi_v = 0,81$$

$$\Psi_A = \frac{\text{volume de la sphère de même surface que le grain}}{\text{volume du grain}}$$

$$\Psi_A = \frac{\pi / 6 D_a^3}{\pi / 6 D_v^3} = \left(\frac{D_a}{D_v} \right)^3 \quad \text{pour un cube } \Psi_A = 1,38$$

$$\Psi_a = \frac{\text{volume de la sphère de même surface spécifique que le grain}}{\text{volume du grain}}$$

$$\Psi_a = \frac{\pi / 6 D_{sv}^3}{\pi / 6 D_v^3} = \left(\frac{D_v^3}{D_a^2} \times \frac{1}{D_v} \right)^3 \quad \text{pour un cube } \Psi_a = 0,53$$

IV.3 Traitement granulométrique d'un ensemble de particules dans un système dispersé:

Dans un système dispersé, sa phase interne contient généralement un très grand nombre d'entités (une entité est un ensemble de particules qui ont une ou plusieurs caractéristiques communes. Dans ce cas il s'agit de la taille).

IV.3.1 Division en classes de tailles

Une analyse granulométrique suppose un « tri » préalable, appelé division en classes de tailles. On distingue trois types de division possibles :

Aléatoire : c'est le cas du tamisage lorsque l'on empile des tamis. Quatre tamis définissent cinq classes de tailles.

Progression arithmétique : $X_{i+1} = X_i + Cte$, pour les distributions de tailles étroites,

Largeur de classe : $\Delta X = Cte$ et La résolution : $\frac{\Delta X}{X_i} = \text{variable}$

Progression géométrique : $X_{i+1} = X_i \cdot Cte$, pour les distributions larges, la largeur de classe :

□ X est variable et de résolution : $\frac{\Delta X}{X_i} = Cte$

IV.3.2 Les fréquences

Une fois le tri effectué et les classes déterminées, on peut soit dénombrer les particules soit les mesurer (peser dans le cas du tamisage ou de la sédimentation, mesurer une intensité lumineuse dans le cas des méthodes optiques ...). On appelle fréquence, notée f , le rapport entre la quantité mesurée par classe (ou le nombre de particules) et la largeur de la classe [22].

$$f = \frac{F = \text{quantité mesurée par } i^{\text{ème}} \text{ classe (nombre, masse, volume, surface, \dots)}}{\text{largeur de la classe}(\Delta X_i)}$$

Elle peut être normée par la quantité totale. Les fréquences en masse et en volume sont équivalentes, elles seront notées f_M ou f_V . Les fréquences en surface, en longueur et en nombre sont respectivement notées f_S , f_L et f_N .

Prenons l'exemple d'une granulométrie par tamisage, où les tailles sont discrétisées en n classes et exprimons la fréquence en masse, normée, de chaque classe de taille i .

$$f_{M(i)} = \frac{\text{masse totale de particules dans la classe } i}{\text{masse totale} * \text{largeur de la classe } i} = \frac{M_i}{M_{\text{tot}} * \Delta x_i}$$

IV.3.3 Représentations graphiques :

Les distributions obtenues par la mesure et le calcul des fréquences sont représentées soit en traçant la fréquence en fonction de la taille (taille moyenne de chaque classe considérée), soit par un histogramme différentiel en portant en abscisse les limites des classes, soit par la courbe des fréquences cumulées. Ces trois types de représentations sont tracés sur la figure (IV.1) suivante.

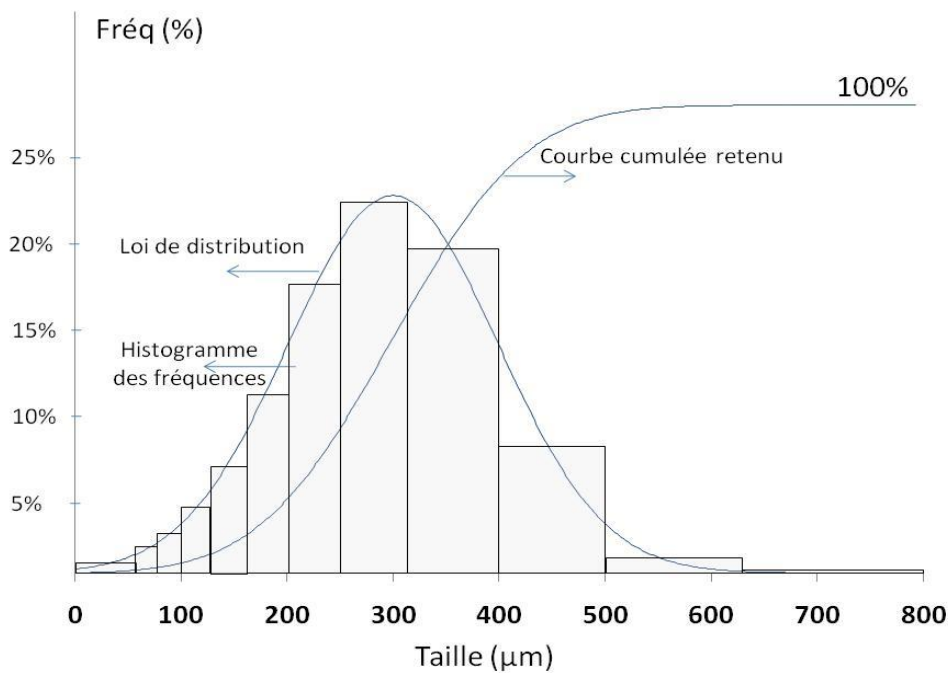


Figure (IV.1) : Présentations de la répartition granulométrique

IV.3.4 Dimensions moyennes :

La représentation graphique d'une distribution n'est pas très maniable, il est souvent utile de déterminer un ou plusieurs paramètres caractéristiques de la distribution, que l'on nomme de façon générique, valeurs numériques représentatives. Le diamètre moyen arithmétique (d_a) correspond, pour un échantillon fractionné en n classes de diamètres représentatifs x_i et des valeurs de la caractéristique mesurées (masse $m_i = \rho v_i = \rho n_i x_i^3$ ou en nombre n_i) :

a) Moyenne arithmétique en nombre
$$d_n = \frac{\sum_{i=1}^n n_i x_i}{\sum_{i=1}^n n_i}$$

b) Moyenne arithmétique en masse ou en volume :
$$d_m = \frac{\sum_{i=1}^n m_i x_i}{\sum_{i=1}^n m_i} = \frac{\sum_{i=1}^n n_i x_i^4}{\sum_{i=1}^n n_i x_i^3}$$

c) Moyenne arithmétique en surface :
$$d_s = \frac{\sum_{i=1}^n s_i x_i}{\sum_{i=1}^n s_i} = \frac{\sum_{i=1}^n n_i x_i^3}{\sum_{i=1}^n n_i x_i^2}$$

d) En longueur
$$d_l = \left(\frac{\sum_{i=1}^n n_i x_i^2}{\sum_{i=1}^n n_i x_i^1} \right)$$

D'autres paramètres, que le

diamètre moyen, peuvent exprimer la tendance centrale d'une distribution. Leurs définitions sont proposées ci-après.

e) Le Mode

Le mode de la distribution est le diamètre moyen de la classe la plus fréquentée (voir figure (IV.2)). Il correspond au maximum de la courbe des fréquences relatives, et au point d'inflexion de la courbe des fréquences cumulées. Si la courbe des fréquences relative possède plusieurs maxima, la distribution est dite multi-modale.

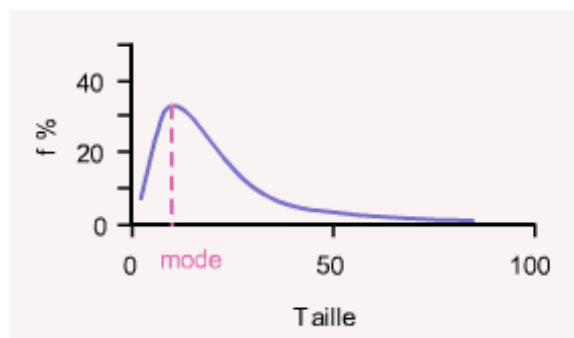


Figure (IV.2) Représentation du mode d'une distribution granulométrique

f) La Médiane

La médiane est le diamètre qui divise la distribution en deux parties d'aires égales, figure(IV.3). On la note d_{50} . Si la distribution est volumique, on peut dire que 50% du volume total des particules correspond au volume des particules de diamètres inférieur au d_{50} . Si la distribution est en nombre on peut dire que 50% des particules ont une taille inférieure au d_{50} . Les diamètres d_{10} et d_{90} sont aussi beaucoup utilisés. Ils sont définis de la même manière que le d_{50} .

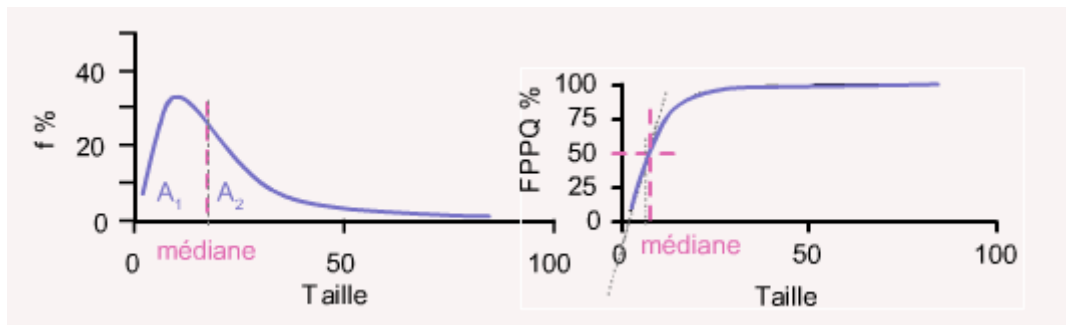


Figure (IV.3) Représentation graphique de la médiane dans une distribution granulométrique

Par ailleurs, il est intéressant de connaître comment les différentes valeurs sont dispersées autour de la tendance centrale.

IV.4 Les méthodes de mesure granulométrique :

Certaines méthodes d'analyses granulométriques sont dites ensemblistes, où des données globales sont récupérées et traitées à l'aide d'un modèle, et d'autres séparatives, les particules sont alors triées puis mesurées ou comptées. La classification choisie ici est fondée sur les principes de mesure des appareils, notons que dans le cas des mesures indirectes un modèle est nécessaire au calcul de la taille des objets. On distingue ainsi :

- ✓ Les méthodes basées sur la dispersion de la lumière par le milieu à caractériser,
- ✓ Les méthodes séparatives comme la sédimentation, la centrifugation et la chromatographie hydrodynamique,
- ✓ Les compteurs à variation de résistance (dits à zone électrique sensible) où les particules coupent un faisceau laser,
- ✓ Les méthodes de visualisation couplées à des algorithmes d'analyse d'image.

IV.4.1 Le tamisage :

Un tamis est constitué d'un cadre cylindrique et d'un fond de toile de fils métalliques entrecroisés. Si le tamis est très fin, la toile métallique est remplacée par du tissu synthétique. Les tamis sont souvent désignés par le nombre de maille par unité de longueur ou « mesh » par pouce linéaire. Ils sont souvent secoués mécaniquement donnant un mouvement circulaire horizontal conjugué à une vibration verticale. Au dessous de 100 μm , le colmatage de la toile rend malaisé l'emploi des tamis. Aussi, avec un courant d'air forcé relativement soufflant et aspirant ou avec une enceinte animée de vibration ultrasonique, on peut tamiser jusqu'à 20 μm à 10 μm . Dans notre travail expérimental, nous avons utilisé ce système pour le fractionnement de la poudre et pour la caractérisation de la distribution granulométrique.

Chapitre V

Matériels et méthodes

Dans ce chapitre, nous décrivons les différentes méthodes utilisées dans la préparation des échantillons ainsi que leurs analyses granulométrique et rhéologique. Les matériels utilisés à cet effet seront également décrits.

V. 1 Caractérisation, fractionnement et granulométrie de la poudre de syloid (dioxyde de silicium) :

V.1.1 Poudre de syloid :

C'est cette poudre qui constitue dans ce travail la phase dispersée, sous forme de particules insolubles dans le milieu aqueux. Il s'agit d'une poudre de dioxyde de silicium, très utilisée dans le domaine pharmaceutique, comme agent d'enrobage qui rentre dans la composition des solutions d'enrobage des comprimés nus. Sa granulométrie n'a pas été spécifiée par le fournisseur, mais, sachant son application, nous avons déduit que c'est une poudre qui présente une granulométrie dans le domaine des suspensions. Donc, probablement, le mode est dans les environs de 50 μ m, au risque de présenter des problèmes graves de sédimentation dans la solution d'enrobage. C'est une poudre qui est insoluble dans l'eau, de couleur blanche, ses particules présentent une morphologie dont le facteur de sphéricité est assez proche de 1, et donc le forme est relativement proche de la sphère, figure (V.1), d'où son choix, comme poudre modèle, constituant la phase dispersée.

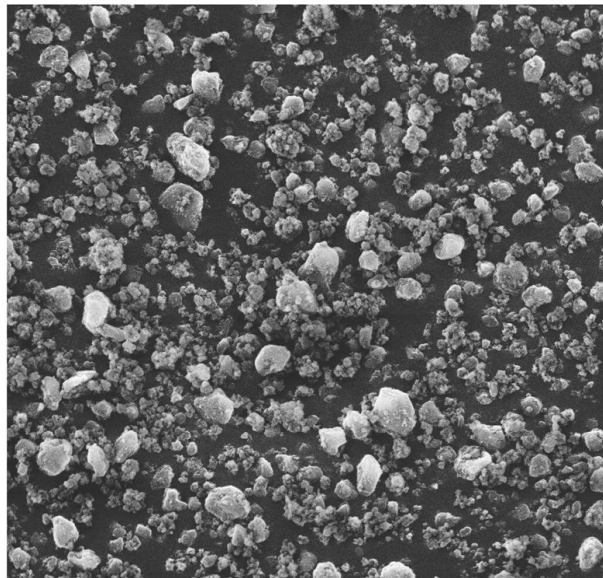


Figure (V.1) photo microscopique des particules de la poudre de SYLOID®

V.1.2 : Granulomètre à tamis :

C'est un tamiseur électrique de type AS200 qui fonctionne avec un système de propulsion électromagnétique patenté par RETSCH (EP 0642844) [23]. Ce système assure un mouvement tridimensionnel qui répartit l'échantillon régulièrement sur toute la surface du tamis. Son avantage réside dans sa grande capacité, une très faible émission sonore et des temps de tamisage courts accompagnés d'une haute précision des séparations. Le réglage du temps de tamisage et de l'amplitude est analogique.

Pour les classes ciblées, nous avons utilisé des tamis dont l'ouverture est comprise entre 30 μm à 100 μm , ce qui a permis de fractionner la poudre en huit classes présentant des distributions monomodales avec des spectres relativement étroits.

V.1.3 Méthode de fractionnement:

100 g de la poudre de SYLOID® est pesée et placée sur le tamis ayant la plus grande ouverture, 100 μm . Les tamis superposés verticalement selon l'ordre croissant en ouverture (du bas en haut : 30 μm , 45 μm , 50 μm , 63 μm , 70 μm , 90 μm , 100 μm) sont mis en place. On met le couvercle et on encastre l'étrier de fixation dans la première paire de rainures libres au-dessus du bloc de tamisage. Le temps de tamisage est réglé à $t = 60\text{mn}$ et l'amplitude de vibration à $V = 1\text{mg/mn}$, ensuite on met l'appareil en marche. A la fin du tamisage, on prend les tamis un par un et on pèse les refus à l'aide d'une balance analytique. Les résultats trouvés seront présentés par des courbes et la reproductibilité doit être vérifiée, en répétant l'essai plusieurs fois.

V. 2 Préparation du milieu suspendant newtonien de la suspension :

Pour des raisons bibliographiques, citées dans la partie théorique relative à la rhéologie des suspensions, notre intérêt s'est porté sur des dispersions dont la phase suspendante est aqueuse et présente un comportement newtonien. Ce milieu newtonien ne peut être constitué que de l'eau, à cause de la très faible viscosité de celle-ci qui est de 1mPa.s à 20°C et qui ne permet pas de ralentir la sédimentation et l'agglomération des particules de la poudre du SYLOID®. Dans cette situation, on aurait des systèmes très instables et l'étude de leur comportement rhéologique serait impossible.

Afin d'augmenter la viscosité dynamique de la phase continue, du HEC, hydroxyle éthyle de cellulose est utilisé comme additif viscosifiant à diverses concentrations. Le but de cette variation est d'identifier la concentration critique, au-delà de laquelle on basculera du régime dilué au régime semi-dilué et auquel cas, le comportement rhéologique devient non

newtonien. Dans le cas où la stabilité physique des suspensions ne sera pas suffisante, suite à cet ajustement de viscosité par le HEC, on rajoutera alors du saccharose afin d'arriver à une stabilité satisfaisante qui permettrait d'entreprendre une caractérisation rhéologique.

A noter que le HEC est un polymère hydrophile, et non ionique. Nous l'avons choisi du fait qu'il est soluble d'eau et qu'il n'a pas d'influence notable sur le caractère ionique des particules du SYLOID®.

Pour la préparation de la solution mère de HEC, on met 20g de ce polymère dans une fiole puis on complète avec un volume d'eau distillée jusqu'à 1000 ml. La dispersion reste sous agitation pendant dix jours jusqu'à obtention d'une solution limpide, preuve d'une dissolution complète du HEC. On range alors la solution dans le réfrigérateur, avant sa dilution à diverses concentrations et l'entame de l'étude rhéologique.

Pour les différentes solutions obtenues à partir de la solution mère à 2g/100ml, on procède à des dilutions à 10%, 20%,...90% et 100%. On obtient alors des concentrations de : 0.2g/100ml, 0.4g/100ml,...,1.8g/100ml et 2g/100ml.

V.3 Caractérisation rhéologique des échantillons :

V.3.1 Rhéomètre :

Le rhéomètre qui est dédié à l'étude rhéologique est de marque HAAKE RheoStress 600, de la société Thermo Electron. Il est muni d'unité de contrôle à affichage LCD qui permet la commande manuelle de l'ascenseur, le réglage de l'entrefer, ainsi que la sélection du gradient de vitesse. L'unité de contrôle permet de choisir et d'afficher des données rhéologiques et instrumentales sur l'écran couleur à cristaux liquides. Les grandeurs mesurées peuvent être représentées sous forme numérique ou graphique. Des séquences de mesure complexes ainsi que la sauvegarde de données peuvent être réalisées très simplement sans recours à un ordinateur. Pour le contrôle de la température de mesure, le rhéomètre est muni d'un système de régulation de température à Effet Peltier et d'une circulation de fluide.



Figure (V.2) Image du rhéomètre rheostress 600 HAAKE

Pour la partie software, un logiciel de marque HAAKE RheoSoft est utilisé pour le contrôle et la commande du rhéomètre et pour effectuer des analyses programmées ainsi que pour l'acquisition des données et leur traitement[24].

Le système de mesure emprunté est de type cône-plan, CP, n° RS300, de diamètre 60mm présentant une conicité, $\theta = 2^\circ$, figure (V.3).

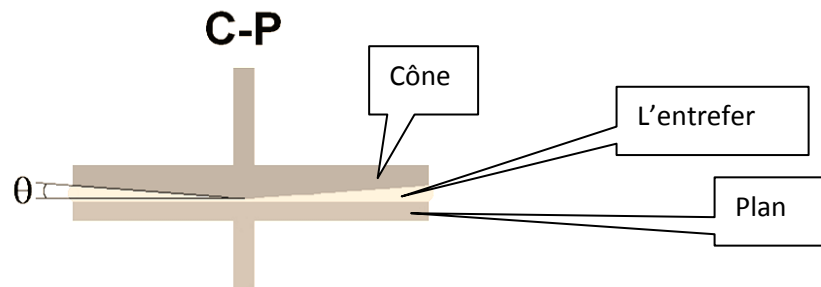


Figure (V.3) Système de mesure cône – plan

V.3.2 Protocole expérimental de caractérisation:

De prime abord, on ajuste le zéro du rhéomètre, par le réglage de la hauteur à 0.1 mm, entre le sommet du cône et du plan du système de mesure. Suite à cela, on libère l'espace de l'entrefer par l'ascension du cône. On met alors, délicatement, 3ml de l'échantillon sur la partie plane. On fait rabattre le cône vers le plan pour permettre un étalement fin de l'échantillon dans l'entrefer. Une fois la température de consigne atteinte, à savoir, 20°C , on lance le programme de cisaillement pour obtenir les courbes d'écoulement. Les conditions opératoires d'obtention de ces courbes sont :

Plage imposée de la vitesse de cisaillement : $\dot{\gamma}_{min} = 0,1 \text{ s}^{-1}$ et $\dot{\gamma}_{max} = 1000 \text{ s}^{-1}$.

$T = 20^\circ\text{C}$

Temps d'acquisition pour chaque point = 20s

Nombre de points = 20

Réalisation d'une rampe croissante puis décroissante en cisaillement.

Acquisition des valeurs de la contrainte de cisaillement $\dot{\gamma}$, et de la viscosité apparente, μ_{app} .

Tracer des courbes d'écoulement en termes de contrainte et de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement.

V.3.2 Modélisation rhéologique:

Les courbes d'écoulement expérimentales sont soumises à une modélisation rhéologique, par un ensemble de lois constitutives usuelles, telles que les lois, de Newton, de Casson, d'Ostwald, de Sisko,...

Modèle d'Ostwald (1925) / de Waele (1923) ou loi en puissance:

$$\tau = K \dot{\gamma}^n$$

n : est un exposant à déterminer mais toujours inférieur à 1 pour le comportement rhéofluidifiant et supérieur à 1 pour le rhéoépaississant. Il traduit l'écart avec le comportement newtonien pour le quel $n = 1$ et est appelé indice de structure.

K : indice de consistance à déterminer également.

Modèle de Sisko :

$$\tau = \mu_{\infty} \dot{\gamma} + K \dot{\gamma}^n$$

où μ_{∞} représente la viscosité à cisaillement infini, K est un indice de consistance du fluide et n est l'indice de structure.

La loi de Casson :

$$\tau^{1/2} = \tau_c^{1/2} + \mu_c^{1/2} \dot{\gamma}^{1/2} \quad \tau > \tau_c$$

$$\dot{\gamma} = 0 \quad \tau < \tau_c$$

Puis un modèle sera retenu, en tenant compte des critères de représentativité, au sens d'explication de la variance, par appréciation du coefficient de détermination, R^2 .

La modélisation consiste à utiliser une des méthodes d'optimisation non linéaire, qui sont :

Simplexe

Quasi-newton

Simplexe et quasi-Newton

Déplacement de la structure de Hooke Jeeves

Hooke-Jeeves et quasi-Newton

Rosebroock et quasi-Newton.

Et qui sont préprogrammées dans le logiciel « STATISTICA » au niveau du module « estimation non linéaire ».

Le choix d'une de ces méthodes s'avère nécessaire, quant à la convergence du système de résolution. En effet ces méthodes se basent sur un processus de calcul itératif, avec un choix judicieux préalable du vecteur initial.

V.6 Préparation des suspensions en fonction de la fraction volumique et de la distribution granulométrique :

V.6.1 En fonction de la fraction volumique :

Dans la préparation des suspensions, on tient compte de la variation de la fraction volumique de la phase dispersée, à savoir les particules de la poudre du SYLOID®.

- ✓ Du tween 80 est utilisé comme agent mouillant, de part sa propriété tensioactive et de son caractère non ionique qui lui confère une certaine neutralité vis-à-vis du système.
- ✓ La phase continue est constituée d'une solution de HEC et si besoin du saccharose pour ajuster la viscosité dynamique.
- ✓ Le procédé de préparation de la suspension consiste à prendre une des fractions considérées (1% ,5%, 12.5% ,15%, 25%, 30%, 40%, 50%), présentant une distribution ciblée, monomodale, bimodale, trimodale ou polydisperse, de la poudre, et d'y rajouter progressivement une mixture constituée des constituants suivants:
 - 0.6g /100ml de la solution de HEC qui correspond à la concentration critique, au-delà de laquelle on bascule dans le régime semi-dilué et le comportement deviendra non newtonien.
 - Si nécessaire, pour augmenter la viscosité dynamique, une quantité maximale de saccharose que l'on peut mettre dans la suspension et qui a été trouvée égale à 25g/100ml.
 - 1g/100 ml de tween 80
 - QSP (quantité suffisante pour) 100 ml d'eau distillée.

Le mélange est maintenu sous agitation, jusqu'à une dispersion totale des particules.

V.6.2 Choix de la distribution granulométrique des suspensions:

La distribution granulométrique des suspensions dépend de la polydispersité et des classes de la poudre. Son choix, dans cette étude, est conditionné du type du régime de la dispersion. Dans le tableau (V.1) sont regroupées les distributions imposées aux suspensions en fonction de la nature du régime.

Tableau(V.1) : Modes et classes imposées des suspensions en fonction du type du régime et de la fraction volumique.

Type du régime de la suspension	Fraction volumique φ g/100ml	Modes et Classes (μm) imposés
Dilué	1 – 5	Monomodale : [30-45]
	1 – 5	Monomodale : [90-100]
	5	Bimodale : [30-45] + [90-100]
	5	Trimodale : [30-45] + [63-70]+[90-100]
	5	Polydisperse [30-45] + [45-50] + [50-63] + [63-70] + [70-90]+[90-100] + [> 100]
Semidilué	15-20- 25	Monomodale : [30-45]
	15-20- 25	Monomodale : [90-100]
	25	Bimodale : [30-45] + [90-100]
	25	Trimodale : [30-45] + [63-70]+[90-100]
	25	Polydisperse [30-45] + [45-50]+[50-63]+ [63-70] + [70-90]+[90-100] + [> 100]
Concentré	30 - 40 - 50	Monomodale : [30-45]
	30 - 40 - 50	Monomodale : [90-100]
	50	Bimodale : [30-45] + [90-100]
	50	Trimodale : [30-45] + [63-70]+[90-100]
	50	Polydisperse [30-45] + [45-50]+[50-63]+ [63-70] + [70-90]+[90-100] + [> 100]

Chapitre VI

Résultats et discussions

VI. 1 Fractionnement et granulométrie de la poudre de SYLOID® (dioxyde de silicium) :

Pour tenir compte de la reproductibilité de la méthode de fractionnement par tamisage, il a été réalisé quatre essais. Les résultats de ces essais en termes des valeurs des masses de la poudre mise dans le tamis ainsi que celles des masses cumulées, somme des refus, à la fin de l'opération de tamisage sont regroupées dans le tableau (VI.1).

Tableau(VI.1) Valeurs des masses fractionnées et cumulées lors du tamisage

	M1	M2	M3	M4
Masse fractionnée	102g	100g	100g	120g
Masse cumulée	102,9g	98,67g	100,89g	120,69g
$\Delta M / M$ (%)	-0,87	1,34	-0,88	-0,57

Au regard de ces valeurs, il apparait clairement que les variations des masses sont relativement très faibles, n'excédant pas 2 %, ce qui argumente les faibles pertes de masse lors du tamisage.

Nous notons, par ailleurs, une difficulté au niveau de la précision des résultats qui peut être justifiée par analyse du coefficient de variation, Cv , en fonction du diamètre, représentée dans la figure (VI.1). Le coefficient de variation est défini comme le rapport entre l'écart-type σ et la moyenne \bar{M} : $Cv = \sigma / \bar{M}$. (VI. 1)

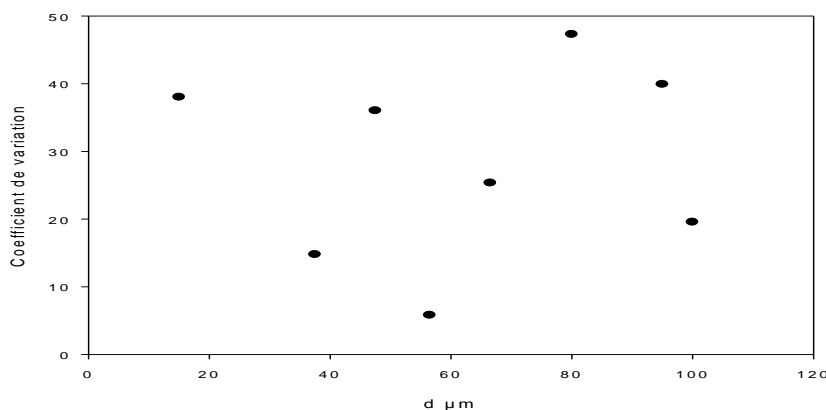


Figure (VI.1) Variation du coefficient de variation des quatre essais en fonction du diamètre.

En effet, au regard de cette figure(V.1), le constat d'une mauvaise reproductibilité des résultats est inéluctablement établi, à cause des valeurs très grandes de ce coefficient.

Vraisemblablement, la méthode de tamisage peut être incriminée dans la qualité médiocre de la reproductibilité, car en fait, le tamiseur n'est pas muni d'un système d'aspiration avec de l'air dont la fonction est d'empêcher le problème de colmatage des particules au niveau des ouvertures. Sachant que les tailles des tamis sont très petites et nécessitent, par ce fait, ce système d'aspiration.

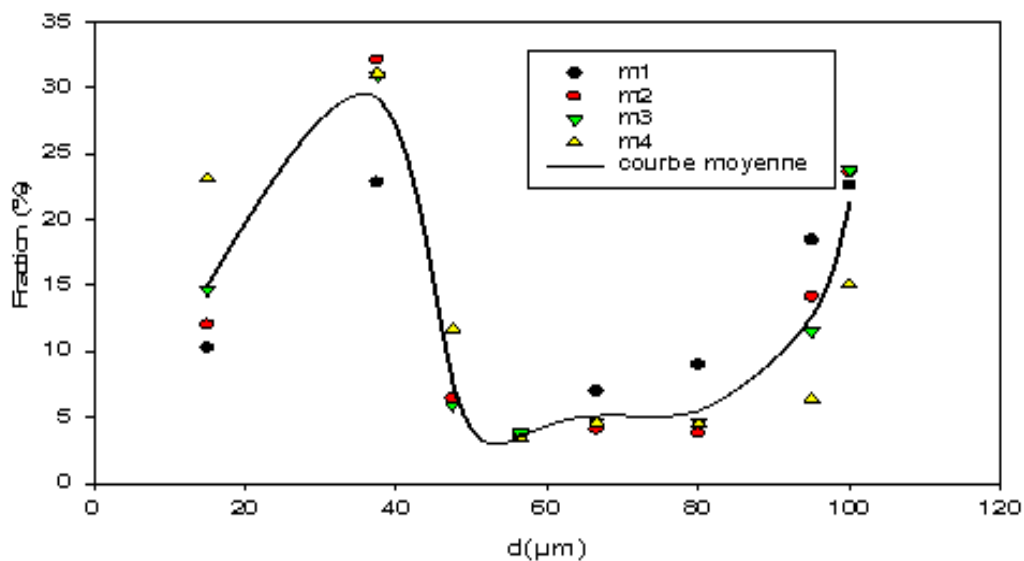


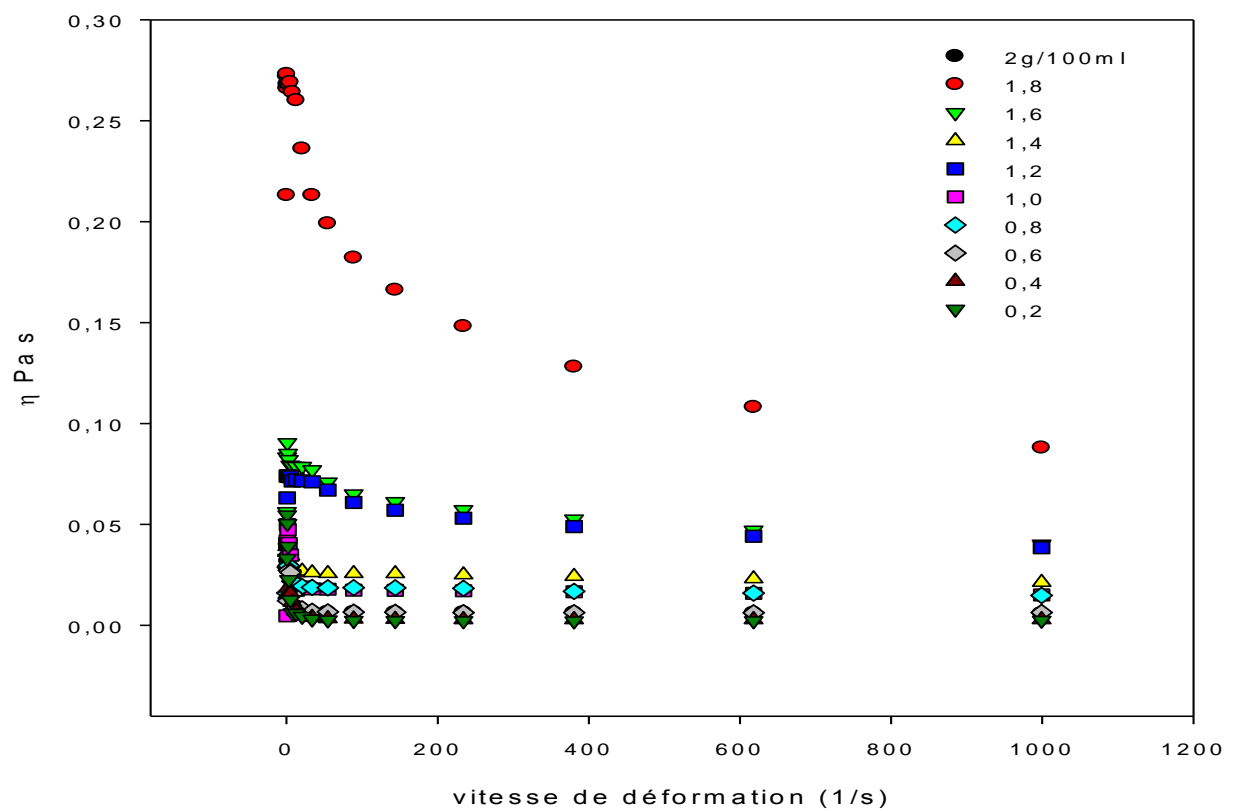
Figure VI. 2: Courbes expérimentales et moyenne de la fraction des particules du SYLOID®, en fonction du diamètre moyen associé à chaque classe.

Les courbes expérimentales de fractionnement, et donc de distribution granulométrique paraissent présenter une même allure : Un semblant d'une cloche dans le domaine 10µm – 60µm, puis une dérive croissante de la taille jusqu'à 100µm. On peut déduire que la distribution granulométrique de la poudre de SYLOID® est bimodale avec deux modes, 40µm pour le premier et 100µm pour le deuxième environ. Ce deuxième mode n'est pas possible, dans le cas de cette poudre, à cause de sa fonction d'origine comme agent enrobant des comprimés, sinon, elle sédimenterait très rapidement dans la solution d'enrobage. Ce deuxième mode a probablement pris naissance lors du tamisage, par mécanisme d'agglomération. En effet, si les particules trouvent des difficultés à passer à travers d'un tamis, alors leur collision, par effet de vibration du tamiseur, favorise, dans le temps, leur agglomération.

Au terme de cette phase de fractionnement de la poudre, nous avons obtenu différentes classes qui se présentent sous forme de particule primaire, pour les plus petites et des agglomérats, pour les grosses.

VI. 2 Rhéologie des solutions suspendantes de HEC:

Sur la figure (VI.3) sont présentées les courbes d'écoulement de la viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement, à diverses concentrations de HEC. Les valeurs de ces courbes sont consignées dans le tableau 2 dans l'annexe B.



Figure(VI. 3) Viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement des solutions de HEC à différentes concentrations, $T = 20^{\circ}\text{C}$.

Au vu de ces courbes d'écoulement, on déduit que le comportement rhéologique des solutions colloïdales de HEC est sensible à la concentration :

- Pour les faibles concentrations, le comportement est quasiment newtonien, où l'on note une viscosité constante sur presque tout l'intervalle de cisaillement. Ce comportement rhéologique est lié certainement à la structure de la solution, sur le plan physicochimique : Le polymère HEC adopte une conformation de pelote statique, par effet d'interaction intramoléculaire de ses groupements lipophiles. Les distances intermacromoléculaires sont si importantes, en régime dilué, que les interactions associées sont nulles. Par ce fait, la structure ne subit pas de modification notable, sous cisaillement variable. Ainsi la viscosité reste constante qui résulte de la résistance à l'écoulement de ces colloïdes isolés.
- Le comportement rhéologique devient non newtonien de type rhéofluidifiant aux fortes concentrations, auquel cas, la viscosité apparente diminue avec l'augmentation du cisaillement. Dans cette situation, les distances intermacromoléculaires se réduisent et les interactions associatives de lipophilie se font sentir ainsi que les interactions attractives de Van Der Waals qui prennent naissance, à cause du caractère non ionique. Le régime deviendra forcément semi-dilué, avec formation des agrégats qui font augmenter la viscosité aux faibles cisaillements et se désagrègent, sous fort cisaillement faisant chuter par la même la viscosité.

Le modèle d'Ostwald paraît être le plus adapté à ce type de variation de comportement rhéologique. Le coefficient de détermination R^2 de toutes les courbes prédictives par le modèle, a été trouvé supérieur à 99%. Aussi, on représente sur le graphique de la figure (VI.4), la variation de ses paramètres caractéristiques, à savoir K et n , en fonction de la concentration de HEC en solution. Il apparaît clairement le changement du comportement rhéologique, à la concentration critique de 0.6g/100ml pour laquelle l'indice de structure, n , devient inférieur à 1, synonyme du début de comportement rhéofluidifiant.

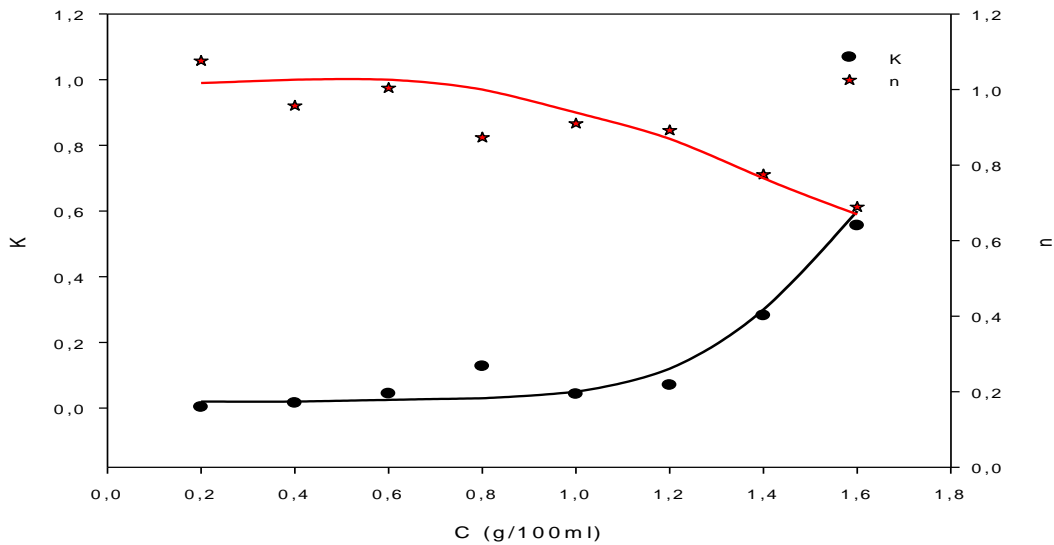


Figure (VI.4): Variation de n et K en fonction de la concentration du HEC en solution

VI.3 Rhéologie des suspensions en fonction de la fraction volumique, sans saccharose :

La phase continue des suspensions est constituée de la solution de HEC fixée à la concentration critique de 0.6g/100ml, pour laquelle le comportement rhéologique est newtonien.

La poudre du SYLOID® optée dans cette étude est celle qui présente une distribution granulométrique monomodale dans la classe [30 μ m - 45 μ m]. Nous avons porté notre intérêt à cette classe, du fait qu'elle présente le mode associée à la population la plus fréquente.

Suite à la variation de la fraction volumique de la phase dispersée, de 1g/100ml à 50g/100ml, balayant ainsi les trois régimes des suspensions : dilué, semi-dilué et concentré et à l'issue des analyses rhéologiques réalisées, suivant le protocole décrit dans le chapitre matériels et méthodes, on présente les courbes d'écoulements expérimentale de viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement, figure(VI.5).

On peut d'ores et déjà établir un constat négatif quant à la qualité de ces résultats expérimentaux qui sont très fluctuants d'une part et qui n'obéissent à aucune logique de tendance en référence à la variation de la fraction volumique φ de la suspension. Par ailleurs toutes les valeurs de viscosité enregistrées sont petites, frôlant ainsi, la limite critique de perception du rhéomètre, en matière de viscosité. Aussi, on s'abstient quant-à-la discussion de ces résultats et on rajoute à la phase continue un additif viscosifiant qui est le saccharose qui

permet de rehausser ces valeurs de viscosité et par conséquent rentrer dans le domaine de perception du rhéomètre et ainsi affiner la précision.

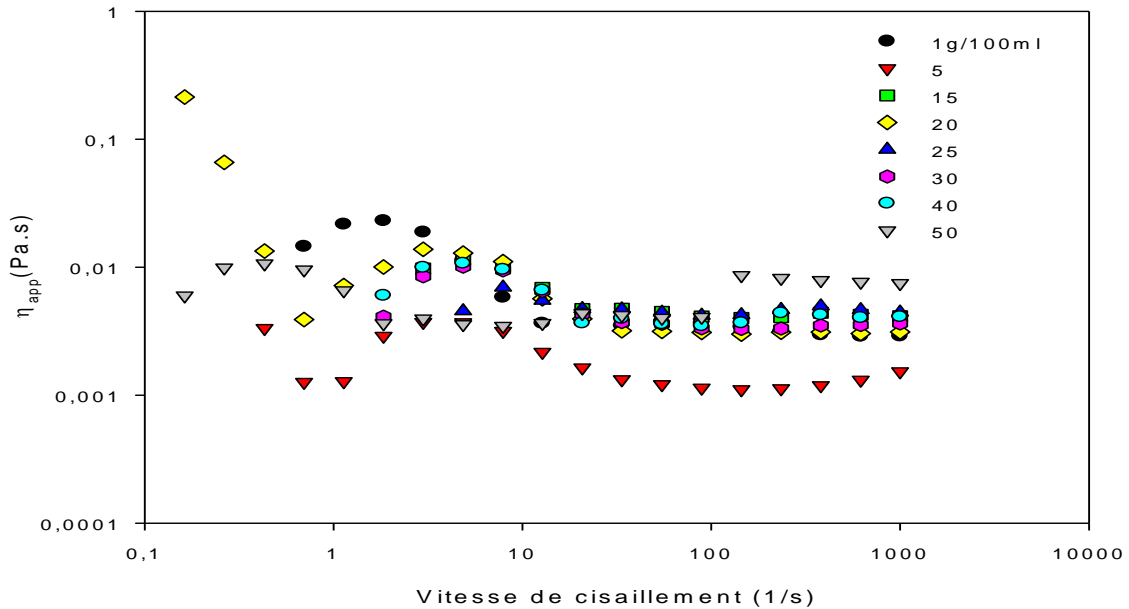


Figure (VI.5) : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC, à diverses fractions volumiques, φ dans la classe $[30\mu\text{m}-45\mu\text{m}]$, $T=20^\circ\text{C}$.

VI.4 Rhéologie des suspensions en fonction de la fraction volumique, avec saccharose.

Dans ce cas, la viscosité du milieu suspendant est augmentée, par rajout de 25g/100ml de saccharose, ce qui permet d'entrevoir une qualité meilleure des résultats de rhéométrie. Au terme de la variation de la fraction volumique de la phase dispersée dans les trois régimes et suite aux analyses rhéologiques, les courbes d'écoulement de viscosité apparente en fonction de la vitesse de cisaillement, sont illustrées dans les figures (VI.6) et (VI.7) associées respectivement aux classes $[30\mu\text{m} - 45\mu\text{m}]$ et $[90\mu\text{m} - 100\mu\text{m}]$.

On peut remarquer, nonobstant l'ajout du saccharose, des variabilités au niveau des courbes expérimentales de viscosité et leur faible valeur aux cisaillements extrêmes. Néanmoins, la hiérarchie a été pour-ainsi-dire respectée en rapport à la variation de la fraction volumique, essentiellement aux faibles cisaillements. Aux forts cisaillements, quasiment, les courbes se joignent à des valeurs basses, aux alentours de 510^{-3} Pa.s, du fait de la vigoureuse dispersion des particules dans ce domaine et de l'aplatissement et alignement des macromolécules de

HEC suivant le sens du cisaillement. Dans cet état, le comportement rhéologique de toutes les suspensions deviendra inévitablement newtonien.

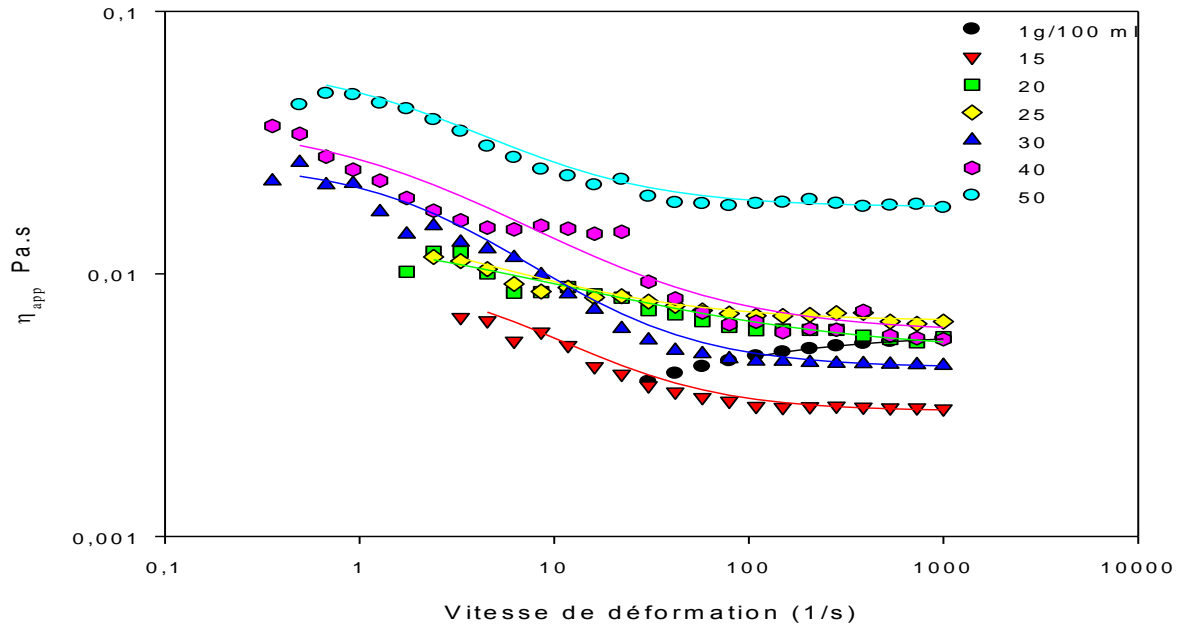


Figure VI.6 : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC et de saccharose, à diverses fractions volumiques, ϕ dans la classe [30 μ m-45 μ m], T=20°C. Les courbes en continue représentent leur ajustement par le modèle structural de Cross.

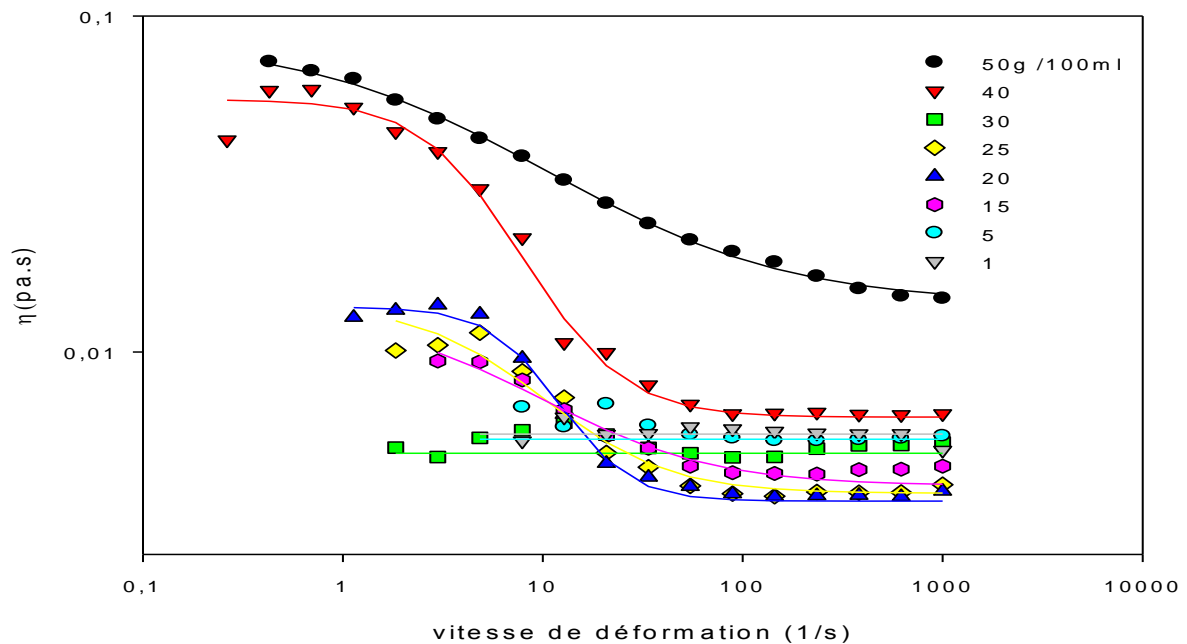


Figure VI.7 : Courbes d'écoulement de la suspension à base de solution de HEC et de saccharose, à diverses fractions volumiques, φ dans la classe $[90\mu\text{m}-100\mu\text{m}]$, $T=20^\circ\text{C}$. Les courbes en continue représentent leur ajustement par le modèle structural de Cross.

Deux comportements principaux ressortent de ces courbes d'écoulement, et cela pour les deux figures (VI.8 et VI.7) :

- a) Un comportement newtonien, auquel cas on note une viscosité constante dans tous le domaine de cisaillement, associé exclusivement aux faibles fractions volumiques.
- b) Un comportement non newtonien de type structural, présentant deux régions newtoniennes et une région rhéofluidifiante.
 - La première région newtonienne est caractérisée par une viscosité au cisaillement nul, μ_0 . Dans cette région les particules forment certainement des agglomérats qui ne subissent pas de modifications notables au niveau de leur structure, face aux faibles cisaillements imposés. Aussi, la viscosité reste constante dans cette zone.
 - Au-delà d'un cisaillement critique, le comportement rhéologique devient rhéofluidifiant, où l'on note une baisse de la viscosité avec l'accroissement de $\dot{\gamma}$. Ici, les agglomérats seront soumis à des forces de répulsion de cisaillement plus importantes que leur force de cohésion.

- Dans la troisième zone, les particules sont complètement dispersées, générant un système déstructuré avec une viscosité constante.

Le modèle rhéologique le plus représentatif qui tient compte de ces trois régions, est celui de Cross d'écriture :

$$\frac{\eta - \eta_{\infty}}{\eta_0 - \eta_{\infty}} = \frac{1}{1 + (K\dot{\gamma})^P} \quad (\text{VI.2})$$

$$\frac{\mu - \mu_{\infty}}{\mu_0 - \mu_{\infty}} = \frac{1}{1 + (k\dot{\gamma})^P} =$$

Avec : η_0 : viscosité à $\dot{\gamma} \rightarrow 0$, η_{∞} : viscosité à $\dot{\gamma} \rightarrow \infty$, K : constante de Cross et P : exposant de Cross $P > 0$.

A l'issue des ajustements des courbes d'écoulement par ce modèle, nous avons noté que la valeur la plus basse du coefficient de détermination, R^2 , expliquant la portion de la variance, est de 93%, ce qui justifie la qualité du fit.

Aussi, on se propose de présenter la sensibilité des paramètres η_0 , et η_{∞} figure (VI.8) à la variation de la fraction volumique de la suspension. Quant aux deux autres paramètres du modèle, à savoir, K et n , ceux-ci ne seront pas analysés du fait de leur grande variabilité et surtout parce qu'ils n'offrent pas de justificatif physique, en référence à la structure de la phase dispersée.

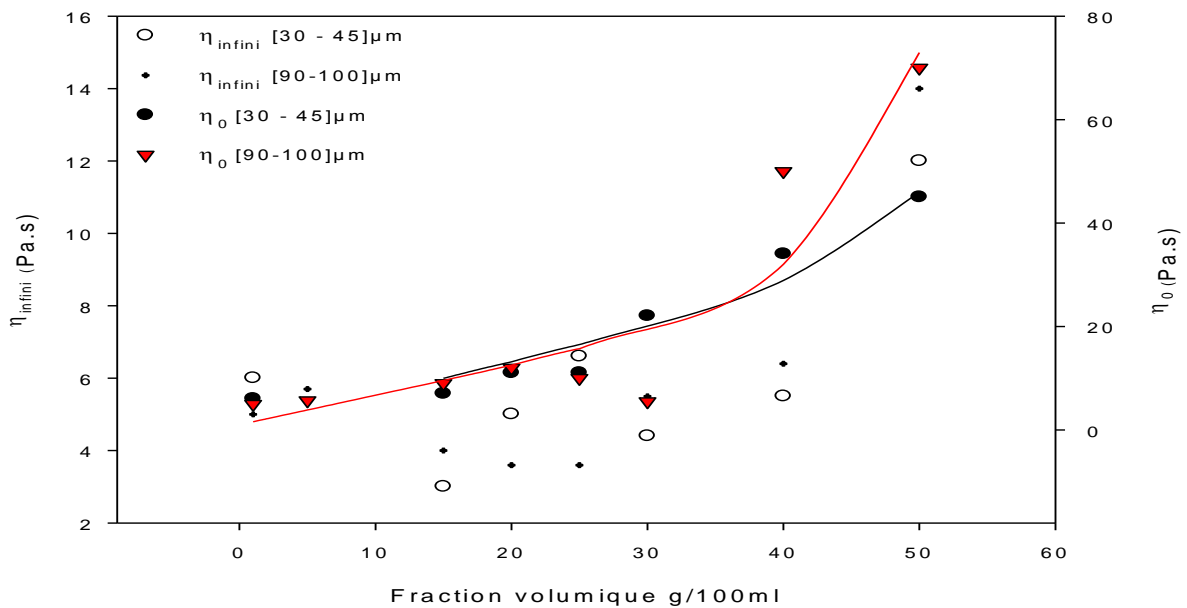


Figure (VI.8) : Courbe de Sensibilité des paramètres structuraux η_0 , et η_{∞} du modèle de Cross à la variation de la fraction volumique de la suspension pour des dispersions monomodales pour les classes [30 – 40] μm et [90 – 100] μm

Pour la viscosité au taux de cisaillement zero, η_0 , il apparait une certaine constance de ce paramètre dans la majorité du domaine de la fraction volumique, puis une brutale augmentation pour une fraction volumique de 50g/100ml, laquelle s'approche de la concentration d'empilement compact qui est de 64g/100ml et pour laquelle la viscosité tend vers l'infini. Cette tendance que nous avons tenté de modéliser par une loi de type : $\eta_0 = 1 + a * \varphi + c * \varphi^2 + d * \exp(e * \varphi)$, ressemblant à l'équation proposée par Thomas en (1965) [7], a donné une portion d'explication de la variance de 80%. On peut noter une légère augmentation des valeurs de η_0 pour la classe des grosses particules.

En ce qui concerne le deuxième paramètre, η_{∞} , on constate également une oscillation de sa valeur autour de 5mPa.s, puis un saut qualitatif pour des fractions volumiques élevées.

I.5 Rhéologie des suspensions en fonction de la polydispersité.

Dans cette partie d'étude, on s'intéresse à la sensibilité du comportement rhéologique à la polydispersité (mono – bi – tri et poly modales) du système en fonction du type de régime de la suspension, dilué (5g/100ml), semi-dilué (25g/100mg) et concentré -50g§100ml). Les

figures (VI.9), (VI.10) et (VI.12) illustrent les différentes courbes de viscosité apparentes en fonction du cisaillement.

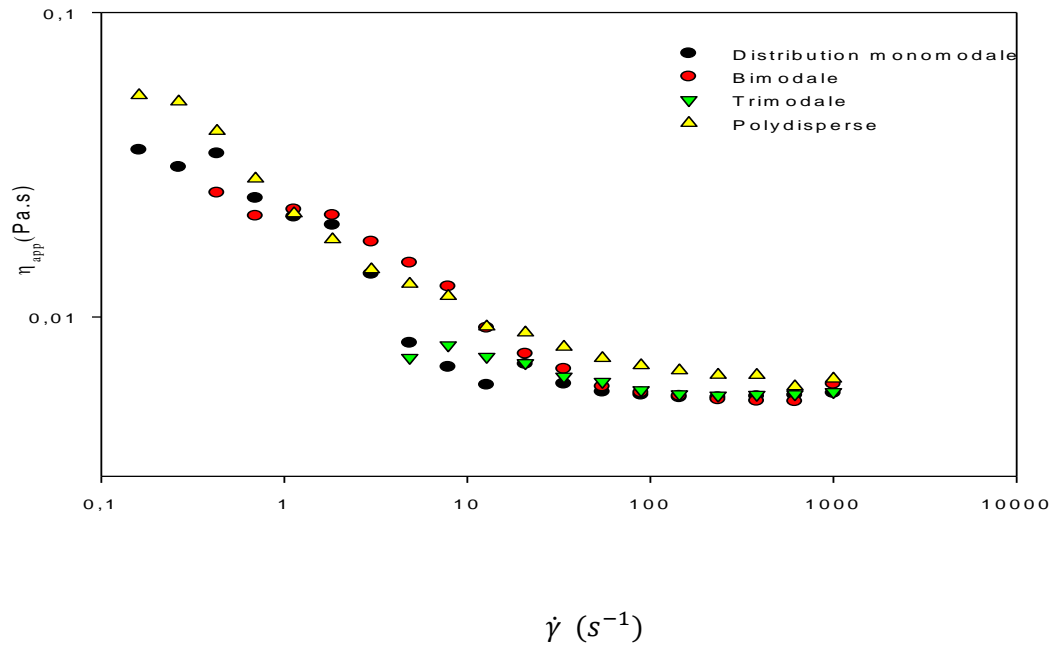


Figure VI. 9 Courbes d'écoulement des suspensions en fonction de la dispersité à $\varphi = 5g/100ml$ (régime dilué). T = 20°C.

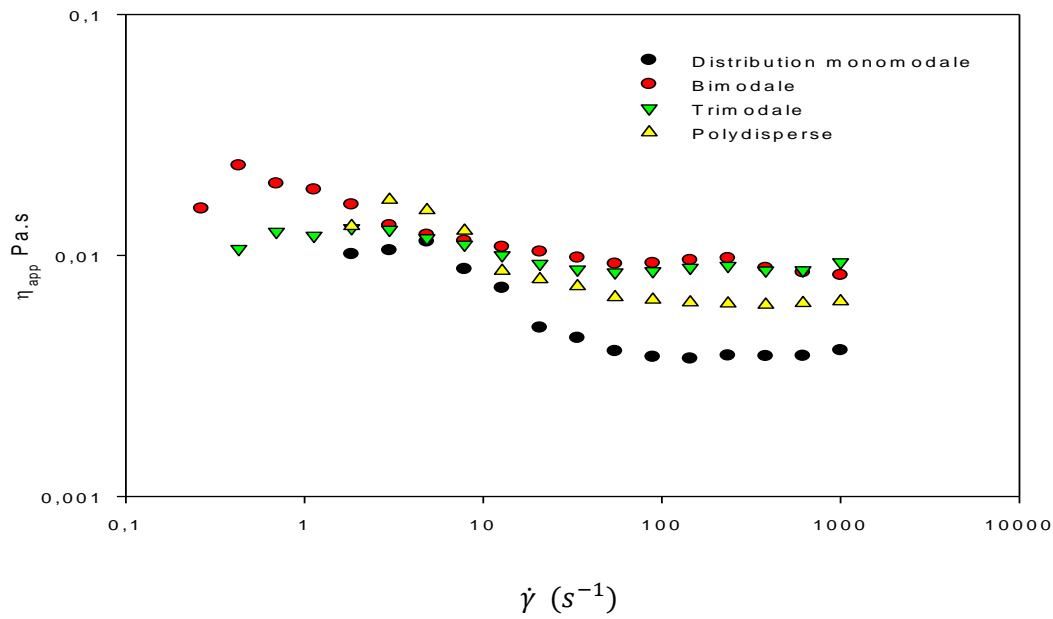


Figure VI. 9 Courbes d'écoulement des suspensions en fonction de la dispersité $\phi = 25\text{g}/100\text{ml}$ (régime semi-dilué). $T = 20^\circ\text{C}$.

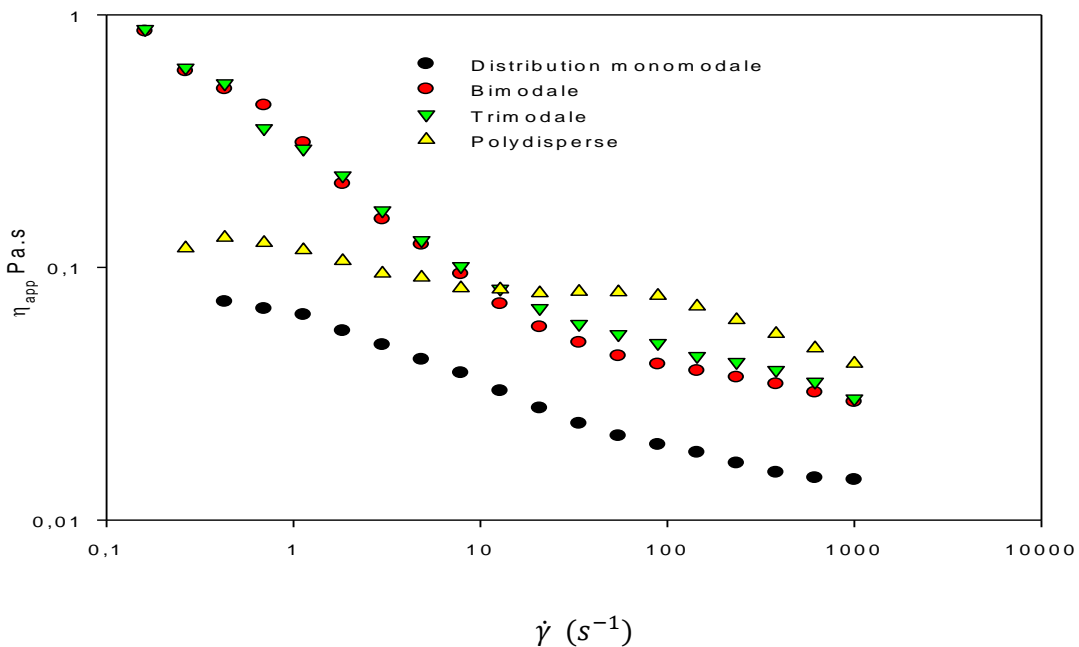


Figure VI. 10 Courbes d'écoulements en fonction de la polydispersité $\phi = 50\text{g}/100\text{ml}$ (régime semi-dilué). $T = 20^\circ\text{C}$.

La figure (VI.9) montre clairement une non sensibilité de la polydispersité sur les courbes de viscosité, en régime dilué. Ces courbes sont pratiquement indissociables et obéissent au comportement rhéologique structural de Cross, avec ses trois régions (deux newtoniennes et

une rhéofluidifiante). Ce résultat peut être plausible, car les particules dans ce type de régime forment des flocculats qui sont facilement redispersibles. En conséquence l'écoulement de ces suspensions reste aisé. Le même constat peut être établi dans le cas du régime semi-dilué, figure (VI.11).

Dans la figure (VI.12), associée au régime concentré, on remarque clairement un démarquage du comportement rhéologique des systèmes ayant une distribution granulométrique trimodale et bimodale, où la viscosité apparente aux faibles cisaillements tend vers l'infini. Ceci traduit un comportement d'un solide présentant une plasticité qui se manifeste par la présence d'une contrainte seuil. Pour ces deux suspensions, en régime concentré, les particules forment un réseau rigide qui confère ce comportement plastique et l'écoulement qui découle devient difficile. Ce n'est pas le cas des suspensions monomodale et polydisperse qui présentent un comportement de type de Cross et donc leur écoulement est aisé. Nonobstant le nombre important des particules présentes dans ces suspensions, le système polydisperse offre un comportement intéressant, qui se traduit par le roulement des petites particules sur les grosses.

Conclusion

Le travail qui est présenté dans ce mémoire n'est qu'une contribution à la compréhension des comportements rhéologiques que peuvent adopter les suspensions en fonction de leur distribution granulométrique et de la fraction volumique de leur phase dispersée.

Nous avons porté notre intérêt seulement aux phases continues dont le comportement est Newtonien. Ce choix, paraissant maîtrisable et facile pour sa non influence sur le comportement des suspensions les a rendues très instables en matière de sédimentation. Cette instabilité a malheureusement compliqué l'entreprise des analyses rhéologiques qui ont été effectuées loin des laboratoires du département de Chimie Industrielle, nécessitant une rhéométrie de précision. Encore une fois, le rhéomètre qui a été dédié à cette étude fine s'est avéré insatisfaisant quant à la qualité recherchée des résultats.

Vraisemblablement, il nous est apparu très difficile d'obtenir en même temps, une phase continue newtonnienne de viscosité élevée qui permet de ralentir le mécanisme de sédimentation et d'agrégation, malgré le rajout au maximum de 25g/100ml de saccharose qui n'a finalement pas augmenté significativement la viscosité.

Au terme de ce travail, les points les plus pertinents qui ressortent sont :

- En régime dilué et semi-dilué, les suspensions dont la phase continue est newtonnienne présentent un comportement rhéologique structural de type de Cross. Leur viscosité est finie au repos, autrement dit, elles sont susceptibles de sédimenter. Ce résultat paraît être valable pour tout type de distribution granulométrique : monomodale, bimodale, trimodale et polydispense.
- En régime concentré, le comportement rhéologique des suspensions dont la phase continue est newtonnienne est tributaire de sa polydispersité : Rigide pour les suspensions à deux ou trois populations est aisé pour les suspensions à une ou plusieurs populations.

Le travail qui a été entrepris nécessite des études approfondies et précises, en matière de reproductibilité et surtout la disponibilité in situ d'un rhéomètre de type R&D (recherche et développement). Les analyses rhéologiques doivent être accompagnées par des observations microscopiques et par des analyses granulométriques par voie liquide (granulomètre à laser). Travaillant dans ces conditions, permettrait de répondre indubitablement à ces questions de subtilité des interactions entre la granulométrie, la

fraction volumique de la phase dispersée et du comportement de la phase continue des suspensions.

Références bibliographiques

- [1] **Elisabeth Guazzelli**, Microhydrodynamique Cours de base sur les suspensions <http://iusti.polytech.univ-mrs.fr/~guazzelli/publiperso/MicroH.pdf> , version 2003.
- [2] **Gilles Ausias**, Maître de Conférences à l'Université de Bretagne-Sud ,laboratoire de Génie Mécanique et Matériaux thèse de doctorat : une rhéologie des suspensions. Applications aux composites à matrices thermoplastiques; 09juillet 2007.
- [3] **Talib Dbouk**, thèse de doctorat : Rheology of concentrated suspension and shear induced migration , **21juin 2013**.
- [4] **Dr John Duffy/Dr Adrian Hill** , Suspension stability: Why particle size, zeta potential and rheology are important; Product Technical Specialists Rheometry Products , 2011.
- [5] **Hong-Minh NGUYEN**; thèse de doctorat : Comportement rhéologique des suspensions concentrées, 2002.
- [6] **Frédéric Coton**, thèse de doctorat : Comportement rhéologique non-linéaire des suspensions concentrées de particules non-colloïdales ; université de Montréal décembre 1998.
- [7] **Gilles Ausias**, thèse de doctorat : une rhéologie des suspensions application aux composites a matrice thermoplastique ;;09 juillet 2007.
- [8] **S. Muler et al**, The rheology of suspension of solid particles; 2010 .
- [9] **A.LE HIR** « pharmacie galénique : Bonne pratique de fabrication des médicaments » 8^{ème} édition, Paris 2006.
- [10] **A.Herbert .A. Ouali,D. Kassa,N. Kheiddam** , « pharmacie galénique » Tome 1,édition office des publications universitaires, 2001.
- [11] **J.L.ZAT** , « physical stability of suspension» J.soc.cosmet.chem, 1985.

- [12] **A.Herbert, Lieberman, M.Martin, Gieger et Gilbert**, Pharmaceutical dosage former: disperse systems volume II Edition Duond, Paris, 1990.
- [13] **GUY.COARRAZE, GEANT LOUIS. GROSSIORD**, initiation à la rhéologie 3^{ème} édition, technique de documentation, 2000.
- [14] **Gilbert, S.Banker , Christopher T.Rhodes** , modern pharmaceutics Fourth edition Revised and expanded New York, 2002.
- [15] Asst.Prof Anongnat Somwangthanaroj ,Rheology and Polymer Characterization, 20 Sep 2010.
- [16] **F. Boyer , O. Guazzeli ,O. Pongligerie** ; rhéologie des suspensions concentrés à pression imposée :un pont entre les suspensions et les écoulements granulaires ; *Aix-Marseille* university ; 2septembre2011.
- [17] **willi Pabst**, Fundamentals considerations on suspension rheology ; *Department of Glass and Ceramics, Institute of Chemical Technology Prague*, 11 November 2003.
- [18] **Jean Philippe Guillemain** ; école nationale supérieurs des mines ; thèse de doctorat : Rhéologie de suspensions concentrées de matériaux énergétiques recyclables – Modélisation du temps de coulée 25 janvier 2008.
- [19] **Enrique Michel-Sanchez** , Impact of Particle Morphology on the Rheology of PCC-Based Coatings, August 2005.
- [20] **G. Matijašič and A. Glasnovič** Faculty of Chemical Engineering and technology, **influence** of dispersed phase characteristics on rheological behaviour of suspensions Original scientific paper; received: March 15, 2002 ;Accepted: October 29, 2002
- [21] **Philippe Mongondry** ,université du Maine , thèse de doctorat : structure et comportement rhéologique des suspensions aqueuse de laponite présence de plusieurs additifs ; 17juin 2003.
- [22] **Emilie ROUECHE** , thèse de doctorat : Influence des paramètres de vibrations sur la rhéologie d'un milieu granulaire :Application au remplissage des fusibles ; 3 Novembre 2005
- .

[23] Dispositif de tamisage de laboratoire, **Numéro de publication** EP0642844 B1, **Type de publication** Octroi, **Numéro de demande** EP19940114272, **Date de publication** 8 avr. 1998, **date de dépôt** 10 sept. 1994, **Date de priorité** 13 sept. 1993.

[24] Haake Rheo Stress 600 the modular High-rheometer , la société :thermo electron corporation www.thermo.com.

Annexes

Annexe A :

Tableau VI. 2 résultat des refus de la première masse fractionnés et cumulés

Taille du tamis (mm)	Intervalle dimensionnel (μm)	Masse retenue (g)	Fraction pondérale (%)	Fraction cumulée (%)
100	> 100	23,10	22,62	77,38
90	90 < d < 100	18,87	18,482	58,899
70	70 < d < 90	9,176	8,987	49,919
63	63 < d < 70	7,129	6,987	42,932
50	50 < d < 63	3,501	3,429	39,503
40	45 < d < 50	6,54	6,405	33,098
35	30 < d < 45	23,30	22,82	10,278
Fond	< 30	10,48	10,26	0,018
Total	//	102,09	100	

Tableau VI. 3 résultat des refus de la deuxième masse fractionnés et cumulés

Taille du tamis (mm)	Intervalle dimensionnel (μm)	Masse retenue (g)	Fraction pondérale (%)	Fraction cumulée (%)
100	> 100	23,309	23,623	76,377
90	90 < d < 100	13,95	14,13	62,247
70	70 < d < 90	3,759	3,801	58,446
63	63 < d < 70	4,048	4,102	54,344
50	50 < d < 63	3,674	3,723	50,621
40	45 < d < 50	6,346	6,431	44,19
35	30 < d < 45	31,708	32,135	12,055
Fond	< 30	11,89	12,05	0,005
Total	//	95,684	100	

Tableau VI. 4 résultat des refus de la troisième masse fractionnés et cumulés

Taille du tamis (mm)	Intervalle dimensionnel	Masse retenue (g)	Fraction pondérale	Fraction cumulée (%)
----------------------	-------------------------	-------------------	--------------------	----------------------

	(μm)		(%)	
100	> 100	24,01	23,79	76,38
90	90 < d < 100	11,60	11,497	64,88
70	70 < d < 90	4,723	4,683	60,2
63	63 < d < 70	4,73	4,687	55,513
50	50 < d < 63	3,83	3,795	51,71
40	45 < d < 50	6,01	5,955	45,768
35	30 < d < 45	31,195	30,913	14,85
Fond	< 30	14,80	14,66	0,195
Total	//	100,89	100	

Tableau VI. 5 résultat des refus de la quatrième masse fractionnés et cumulés

Taille du tamis (mm)	Intervalle dimensionnel (μm)	Masse retenue (g)	Fraction pondérale (%)	Fraction cumulée (%)
100	> 100	18,22	15,096	84,904
90	90 < d < 100	7,69	6,37	78,534
70	70 < d < 90	5,46	4,52	74,014
63	63 < d < 70	5,545	4,59	69,424
50	50 < d < 63	4,083	3,383	66,041
40	45 < d < 50	14,176	11,745	54,296
35	30 < d < 45	37,55	31,112	23,184
Fond	< 30	27,97	23,175	0,009
Total	//	120 ,69	100	

Tableau VI. 6 les fractions pondérales moyennes des refus des quatres masses

d(μm)	X _{moy}
15,0000	15,038
37,5000	29 ,245
47,5000	7,634
56,5000	3,582
66,5000	5,091
80,0000	5,497
95,0000	12,66
100,0000	21,28

Tableau VI. 7 les différentes masses et concentrations de HEC

m(g)	0,2	0,4	0,6	0,8	1	1,2	1,4	1,6	1,8	2
C(%)	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100

