

DÉTERMINATION SIMULTANÉE DE LA SPHÉRICITÉ ET DE LA MASSE VOLUMIQUE APPARENTE DE MATÉRIAUX ARGILEUX PAR UNE MÉTHODE DYNAMIQUE

M. BENZINA, A. BELLAGI

École nationale d'ingénieurs de Gabès, 6029 Gabès (Tunisie)

RÉSUMÉ : Dans ce travail nous présentons une méthode dynamique de détermination simultanée de deux caractéristiques importantes d'un lit granulaire à savoir la masse volumique et la sphéricité des grains. Cette méthode est basée sur la mesure des pertes de charge subies par un gaz lors de son passage à travers une couche fixe du solide à étudier. Les résultats ont été testés en les comparant avec ceux obtenus à l'aide de la méthode pycnométrique classique, dans le cas de trois échantillons d'argile naturelle, et prouvent que la méthode peut être utilisée avantageusement.

I. Introduction

De nombreuses opérations unitaires de l'industrie chimique que ce soient des opérations purement physiques (filtration, échange thermique, sédimentation, etc.), physico-chimiques (adsorption, séchage, etc.) ou des processus réactionnels (réactions hétérogènes fluide-solide, réactions catalytiques, etc.) nécessitent la mise en contact d'un solide granulaire et d'un fluide.

Parmi les caractéristiques du solide indispensables au dimensionnement de l'appareillage au sein duquel ces opérations sont effectuées, la masse volumique réelle, ρ_s , la masse volumique de grains, ρ_p , et – dans le cas de particules de forme complexe – le facteur de forme, ϕ_p , revêtent une importance particulière.

Dans la pratique courante, ρ_p est évalué par pycnométrie en utilisant le plus souvent le mercure comme liquide non mouillant, et le facteur de forme, ϕ_p , est déduit des mesures des pertes de charge subies par un fluide lors de son passage au travers d'un lit granulaire.

Il a été montré [1, 2, 3] qu'à partir de ces mêmes mesures de perte de charge, il est en principe possible de déterminer aussi bien ρ_p que ϕ_p . C'est là la base d'une méthode alternative que nous appellerons méthode dynamique.

Dans cette publication, nous présentons cette nouvelle approche et comparons les résultats aux-

quels elle aboutit à ceux obtenus par pycnométrie dans le cas d'un matériau granulaire et poreux et de géométrie aléatoire : les argiles naturelles broyées.

II. Définitions et rappels.

Masse volumique.

Pour un matériau solide on distingue [4, 5] :
– la masse volumique réelle ou vraie, ρ_s , qui caractérise sa matrice non poreuse et
– la masse volumique de grains ou de contour, ρ_p , qui se rapporte à son volume externe.

Les valeurs de ρ_s et ρ_p , égales pour un matériau compact, sont d'autant plus différentes que la porosité interne du solide, χ , est plus importante.

$$(1) \quad \rho_p = (1 - \chi)\rho_s$$

Pour caractériser l'état de tassement d'un lit granulaire, on définit parfois aussi la masse volumique de la couche, dite aussi apparente, ρ_A , et qui prend en compte la porosité, ε , du lit ($\varepsilon = \text{volume interstitiel/volume de la couche}$) :

$$(2) \quad \rho_A = \varepsilon\rho_G + (1 - \varepsilon)\rho_p$$

Dans cette équation, ρ_G désigne la masse volumique du fluide occupant le vide entre les grains. Comme la relation (2) le montre, la connaissance

de ε et ρ_p suffit pour caractériser l'état mécanique de la couche. Aussi aucune référence explicite à ρ_A ne sera faite dans ce qui va suivre.

La détermination expérimentale de la densité d'un solide compact se fait d'habitude sans difficultés par pycnométrie, en se servant d'un liquide qui ne dissout pas le solide. Pour un matériau poreux consolidé, le problème est plus complexe : la valeur de la masse volumique ainsi déterminée va dépendre de la pénétration plus ou moins importante du fluide pycnométrique dans l'espace poreux et peut varier entre les deux limites que représentent ρ_p (pénétration nulle) et ρ_s (remplissage total des pores par le fluide).

Diamètre équivalent et facteur de forme

La taille d'un grain sphérique ou de forme géométrique simple peut être donnée avec précision en indiquant sa ou ses dimensions caractéristiques. Pour des particules de forme complexe, comme celles obtenues par broyage ou lors d'une opération de cristallisation, la définition de la taille est tributaire de la méthode utilisée pour la mesurer (tamisage, microscopie...) et différentes valeurs peuvent être données pour un même grain. En pratique, deux grandeurs associées servent généralement à caractériser la grosseur d'une particule dans ce genre de situation :

- le diamètre équivalent, d_p , défini comme étant celui de la sphère qui se comporterait comme le grain sous les mêmes conditions et
- le facteur de forme, ϕ , qui exprime l'écart de sa forme par rapport à celle de la sphère.

Parmi les différentes définitions de ces deux paramètres proposées dans la bibliographie [cf. par exemple 4 et 5], nous retenons les deux suivantes :

(a) Pour un grain de volume V_p et de surface externe A_p , le diamètre équivalent, d_s , est pris égal à celui de la sphère de même volume. Le facteur de forme, ψ_s , est défini alors comme étant le rapport de leurs surfaces A_s et A_p :

$$(3) \quad \psi = \frac{A_s}{A_p}$$

ce qui permet d'écrire pour le quotient A_p/V_p des deux paramètres du grain expérimentalement mesurables avec précision :

$$(4) \quad \frac{A_p}{V_p} = \frac{6}{\psi_s d_s}$$

(b) La taille d'une particule peut être déterminée aussi, et c'est la procédure la plus répandue et celle adoptée dans ce travail, par tamisage. Le diamètre équivalent est alors la moyenne arithmétique des ouvertures des mailles des deux tamis, l'un laissant juste passer le grain et l'autre le retenant. Le facteur de forme associé, F , est dit dans ce cas de surface volumique [4]. Pour le rapport A_p/V_p , il vient :

$$(5) \quad \frac{A_p}{V_p} = \frac{F}{d_p}$$

Afin de mettre (5) sous une forme analogue à celle de la rel. (4), on peut remplacer F par le facteur équivalent $\phi_p = 6/F$. On a alors :

$$(6) \quad \frac{A_p}{V_p} = \frac{6}{\phi_s d_s}$$

et

$$(7) \quad \phi_p d_p = \psi_s d_s$$

d_p peut être interprété maintenant comme étant le diamètre de la sphère qui serait retenue sur le même tamis que le grain considéré, et ϕ_p le facteur de forme correspondant.

III. Présentation de la méthode.

Considérons un fût cylindrique de section droite Ω , disposé verticalement et contenant un lit granulaire de hauteur L et de porosité ε , le diamètre équivalent des grains étant d_s . Pour la masse, M , de la couche solide on peut écrire :

$$(8) \quad M = (\Omega L)(1 - \varepsilon)\rho_p$$

La perte de charge, ΔP , subie par un fluide incompressible à la traversée de cette couche est donnée par la relation de Leva [6] :

$$(9) \quad \Delta P = f \cdot (\rho_G u^2) \left[\frac{(1 - \varepsilon)^{3-n}}{\varepsilon} \right] \frac{L}{\psi_s d_s}$$

dans laquelle u est la vitesse en fût vide du fluide et f le facteur de frottement qui peut être mis généralement sous la forme :

$$(10) \quad f = \frac{a}{Re^n}$$

où Re est le critère de Reynolds rapporté à la dimension du grain :

$$(11) \quad Re = \frac{d_s \rho_G u}{\eta}$$

η désignant la viscosité dynamique du fluide.

En régime d'écoulement laminaire ($Re < 10$), les valeurs de a et n sont respectivement 200 et 1, et l'équation (9) devient :

$$(12) \quad \Delta P = 200 \eta u \left[\frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3} \right] \frac{L}{(\psi_s d_s)^2}$$

soit encore, en prenant en considération (7).

$$(13) \quad \Delta P = 200 \eta u \left[\frac{(1 - \varepsilon)^2}{\varepsilon^3} \right] \frac{L}{(\phi_s d_s)^2}$$

L'élimination de la porosité ε entre (8) et (13) aboutit – après quelques transformations – à une relation qui sera à la base de la détermination de ρ_p et ϕ_p .

$$(14) \quad \left[\frac{200 \eta u}{\Delta P d_p^2 L} \right]^{1/3} = (\Omega/M)^{2/3} (\rho_p \phi_p)^{2/3} - (M/E)^{1/3} \left(\frac{\phi_p^2}{\rho_p} \right)^{1/3} \left[\frac{1}{L} \right]$$

Comme cette équation le montre, le membre gauche est une fonction linéaire en $1/L$. Sa représentation graphique donne une droite de pente, S :

$$(15) \quad S = - (M/E)^{1/3} \left(\frac{\phi_p^2}{\rho_p} \right)^{1/3}$$

et donnée à l'origine, I :

$$(16) \quad I = (\Omega/M)^{2/3} (\rho_p \phi_p)^{2/3}$$

A partir des valeurs expérimentales de S et I, on peut évaluer ρ_p et ϕ_p à l'aide des formules :

$$(17) \quad \rho_p = - \left(\frac{I}{S} \right) \cdot \left(\frac{M}{\Omega} \right)$$

$$(18) \quad \phi_p = - S \sqrt{I}$$

IV. Etude expérimentale.

1) Présentation du matériau solide.

L'étude a été menée sur trois semoules d'argiles naturelles que nous désignerons par les lettres G, V et R, pour simplifier. Le tableau I en donne comme caractéristiques les masses volumiques vraies, déterminées par pycnométrie à l'eau et au benzène, liquides généralement utilisés pour ce genre de matériaux [7].

Argile	G	V	R
$\rho_{s, \text{eau}} (\text{g cm}^{-3})$	2,75	2,68	2,76
$\rho_{s, \text{benz}} (\text{g cm}^{-3})$	2,82	2,78	2,70

TABLEAU I : Masses volumiques réelles des argiles utilisées.

L'étude minéralogique montre que l'argile G est une smectite, et V et R sont deux minéraux complexes formés essentiellement de phases kaoliniques et illitiques et qui se distinguent par une couleur et une dureté différentes.

Avant les mesures proprement dites, les argiles sont broyées, mélangées et soumises à un classement par tamisage. Seule la fraction comprise entre les tamis de module NF 30 et NF 31, correspondant à un diamètre équivalent.

$$0,8 < d_p (\text{mm}) < 1$$

est retenue pour notre étude. Les échantillons sont ensuite séchés pendant plusieurs jours dans une étuve portée à 110°C.

2) Procédure expérimentale.

Comme la relation (14) le montre, ρ_p et ϕ_p peuvent être déduits des valeurs de pertes de charge mesurées en fonction du débit fluide et à différents tassements de la couche. Le montage expérimental, schématisé sur la figure 1, est conçu pour répondre à cet objectif : le gaz (N_2) fourni par bouteille est débarrassé de son humidité résiduelle en le faisant traverser une couche de silicagel. Après réglage de son débit, il est introduit dans la colonne (diamètre interne : 25 mm ; hauteur 45 cm) contenant le lit granuleux et munie d'un manomètre incliné pour la mesure de ΔP et d'un repère permettant de déterminer la hauteur de la couche par simple lecture.

Dans le but de standardiser la procédure expérimentale, le lit est d'abord homogénéisé par fluidisation. Ensuite, et à partir de la hauteur correspondant à l'état de fluidisation minimale, on lui confrère la porosité désirée.

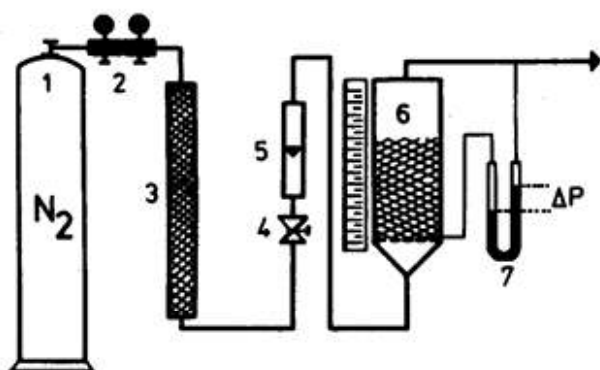


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental

- 1 : Alimentation en gaz (N₂)
- 2 : Détendeur
- 3 : Colonne de silicagel
- 4 : Régulateur de débit
- 5 : Débitmètre à flotteur
- 6 : Lit granulaire
- 7 : Manomètre

3) Résultats.

Nous allons illustrer la démarche expérimentale et les différentes étapes du calcul à l'exemple de l'argile R. Le tableau II montre les valeurs des pertes de charge ΔP , en fonction du critère de Reynolds Re' , pour différents tassements d'une couche de 0,120 kg de solide. En régime d'écoulement laminaire, ΔP est proportionnel à la vitesse superficielle du gaz, u :

$$(19) \quad \Delta P = \alpha \cdot u$$

Le coefficient de proportionnalité α étant constant pour une hauteur donnée du lit et des conditions opératoires inchangées.

La méthode de regression linéaire, appliquée à chaque série de mesure du tableau II, permet

u (m/s)	Re'	$\Delta P1$	$\Delta P2$	$\Delta P3$	$\Delta P4$
		(Pa) L1=183m	(Pa) L2=187m	(Pa) L3=191	(Pa) L4=195m
0.04	2.55	287.90	275.02	226.78	211.02
0.06	3.94	439.54	419.68	345.28	320.97
0.09	5.41	598.16	570.84	468.54	435.12
0.11	6.90	745.85	720.04	589.63	547.02
0.13	8.26	895.74	854.05	697.91	646.89
0.15	9.30	1001.74	954.80	778.99	721.55
0.17	10.64	1136.23	1082.53	881.39	815.67
0.19	11.85	1255.21	1195.43	971.53	898.37
0.21	13.22	1388.50	1321.80	1071.97	990.34
0.23	13.95	1458.92	1388.52	1124.81	1038.64

TABLEAU II : Résultats des mesures pour l'argile R. Conditions opératoires : M = 0,120 kg; $d_p = 9 \cdot 10^{-4}$ m; T = 288.7 K.

i	L _i (m)	α_i (sPa/m)	r ²
1	0.183	7113.011	0.994
2	0.187	6801.967	0.996
3	0.191	5636.955	0.993
4	0.195	5236.955	0.996

TABLEAU III : Calcul intermédiaire pour l'argile R. Détermination de α dans la relation : $\Delta P = \alpha u$. Conditions opératoires : les mêmes que celles du tab. II r² : coefficient de corrélation de la régression linéaire.

d'obtenir les valeurs de α pour les différents tassements de la couche (tableau III). La prise en considération de (19) dans la relation (14) aboutit à:

$$(14') \quad \left[\frac{200 \eta u}{\alpha_p d_p^2 L_i} \right]^{1/3} = (\Omega/M)^{2/3} (\rho_p \phi_p)^{2/3} - (M/\Omega)^{1/3} \left(\frac{\phi_p^2}{\rho_p} \right)^{1/3} \left[\frac{1}{L_i} \right]$$

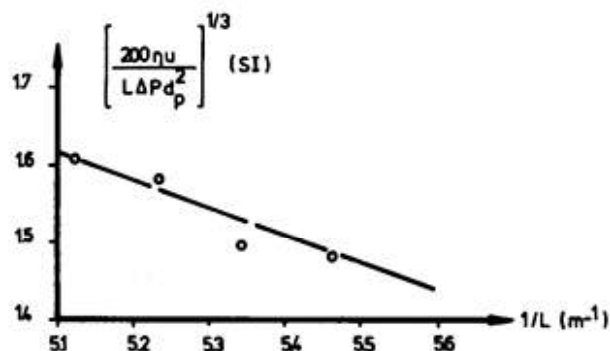


Figure 2 : Représentation de la droite d'équation (14') pour l'argile R.

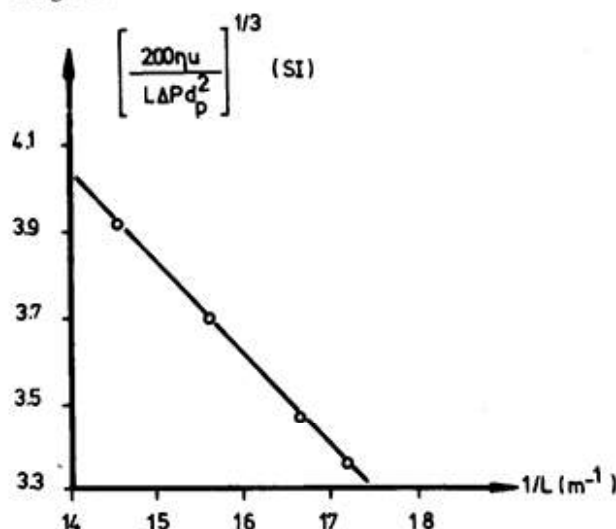


Figure 3 : Représentation de la droite d'équation (14') pour l'argile G.

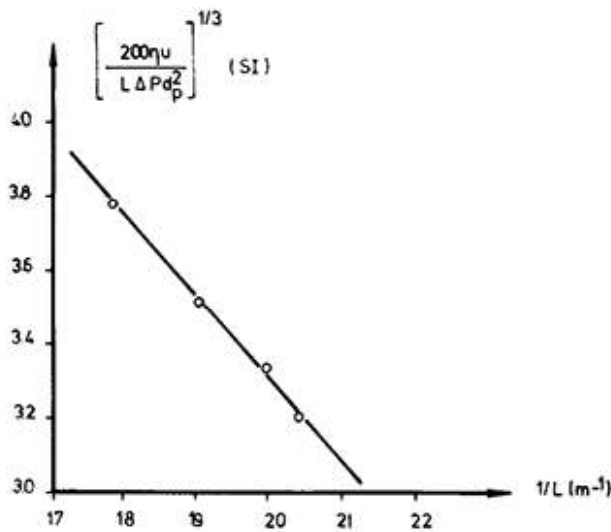


Figure 4 : Représentation de la droite d'équation (14') pour l'argile V.

Argile	G	V	R
ρ_p (gcm ⁻³)	2,066	2,144	2,225
ϕ_p	0,532	0,608	0,780

TABLEAU IV : Résultats finaux de la méthode dynamique.

En portant le membre gauche de (14') en fonction de 1/L pour les quatre hauteurs de couche réalisées, on obtient à la droite représentée sur la figure 2. Les figures 3 et 4 montrent les droites similaires relatives aux argiles G et V, et le tableau IV contient l'ensemble des résultats obtenus.

Discussion.

La fiabilité de la méthode dynamique présentée dans ce travail a été testée en comparant les résultats auxquels elle aboutit à ceux obtenus par les procédures standards, la pycnométrie représentant la méthode de référence pour la mesure de la masse volumique.

Dans le tableau V se trouvent confrontées les valeurs de ρ_p trouvées en adoptant ces deux procé-

Argile	G	V	R
ρ_{p1} (gcm ⁻³)	1,98	1,97	2,05
ρ_{p2} (gcm ⁻³)	1,99	2,07	2,17
$\langle \rho_p \rangle$ (gcm ⁻³)	1,99	2,07	2,10
ρ_p (gcm ⁻³)	2,07	2,14	2,23
$\Delta\rho_p/\rho_p$ (%)	4,0	4,5	6,0

TABLEAU V : Comparaison des masses volumiques des argiles déterminées par différentes méthodes :

ρ_{p1} : pycnométrie à mercure
 ρ_{p2} : pycnométrie à méthanol/grains enrobés de paraffine
 ρ_p : méthode dynamique

dés expérimentaux : les deux premières colonnes présentent les ρ_p déterminées par pycnométrie au mercure et à l'éthanol. Afin d'éviter dans ce dernier cas le prévisible remplissage des pores par l'alcool, les grains d'argile sont enrobés au préalable d'une fine pellicule de paraffine en les plongeant dans un bain de cire fondue. Les résultats de ces deux procédures, en très bon accord entre eux du reste, sont à l'origine des valeurs de référence de la colonne 3, obtenues en prenant leurs moyennes arithmétiques.

Comme le montrent les colonnes 4 et 5 du même tableau, les masses volumiques trouvées par la méthode dynamique concordent bien, dans les limites de la précision expérimentale (erreur rel. max. 6.2%), avec les résultats de la pycnométrie.

Une confirmation supplémentaire de la procédure présentée dans ce travail a été trouvée en comparant les vitesses de fluidisation minimale expérimentales, d'un côté, et calculées en utilisant les valeurs de ρ_p et ϕ_p obtenues plus haut, de l'autre. En effet, à partir de l'équation (9) et en prenant en considération la relation d'Ergun [8] :

$$(20) \quad f = 200 \frac{1 - \epsilon}{\phi_p Re'} + 1.75$$

ainsi que la condition fondamentale de mise en fluidisation, soit :

$$(21) \quad \Delta P_{mf} = L_{mf} (1 - \epsilon_{mf})(\rho_p - \rho_p)g$$

on aboutit à une équation du second degré en Re'_{mf} .

$$(22) \quad 1.75 \frac{Re'^2_{mf}}{\phi_p \epsilon_{mf}^2} + 200 \frac{(1 - \epsilon_{mf})Re'_{mf}}{(\phi_p \epsilon_{mf}^3)} = Ar$$

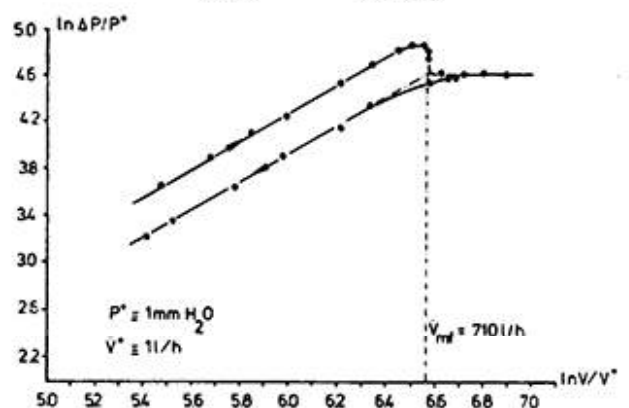


Figure 5 : Détermination du débit volumique de l'azote au seuil de fluidisation.

Argile R.
 T = 298.2 K; P = 1 atm

dans laquelle Ar est le critère d'Archimède ($= d_p g (\rho_p - \rho_G) \rho_G / \eta^2$) et dont la résolution nous livre Re'_{mf} et u_{mf} [9].

Dans le cas l'argile R, fluidisée par l'azote sous les conditions standards, la valeur calculée de u_{mf} est 0.42 m/s. La vitesse expérimentale du gaz au seuil de fluidation, déterminée à l'aide du même appareillage décrit plus haut, est 0.40 m/s (fig.5).

Conclusion.

Nous avons présenté dans ce travail une méthode dynamique permettant la détermination simultanée de deux propriétés importantes d'un échantillon solide granulaire, la masse volumique et le facteur de forme, basée sur des mesures des pertes de charge subies par un fluide à la traversée d'un lit fixe du solide. Appliqué à trois échantillons d'argiles naturelles, cette procédure expérimentale a abouti à des valeurs des masses volumiques comparables à celles trouvées par pycnométrie.

Il est à remarquer, toutefois, que cette méthode, globalement simple et présentant l'avantage d'éviter le maniement du mercure, fait appel à une quantité importante de solide, ce qui pourrait constituer un inconvénient dans certains cas.

Mais elle peut être mise avantageusement à profit chaque fois où les deux paramètres, ρ_p et ϕ_p , doivent être connus, puisque dans ce cas la masse volumique se déduit des mêmes mesures effectuées pour la détermination du facteur de forme.

Notons finalement, qu'à cause de la relation (7), la procédure présentée dans ce travail peut être indifféremment utilisée pour évaluer ϕ_p ou ψ_s suivant que l'on travaille avec le diamètre équivalent d_p ou d_s .

NOTATION ET SYMBOLES

a	: Constante
A_p	: Surface externe de la particule
A_s	: Surface externe de la sphère de même volume
Ar	: Nombre d'Archimède
d_p	: Diamètre équivalent du grain
d_s	: Diamètre de la sphère de volume V_p
f	: Facteur de frottement
F	: Facteur de forme (de surface volumique)
g	: Accélération due à la pesanteur
I	: Ordonnée à l'origine de la droite d'équation (14)

L	: Hauteur de la couche de grains
L_{mf}	: Hauteur de la couche au seuil de fluidisation
M	: Masse de la couche
n	: Constante
P^+	: Unité de pression (= 1 mm H ₂ O) sur la figure 5
Re'	: Critère de Reynolds de la particule
Re'_{mf}	: Critère de Reynolds au seuil de fluidisation
S	: Pente de la droite d'équation (14)
u	: Vitesse en fût vide
V^+	: Unité de V (= l/h) sur la figure 5
V_{mf}	: Débit volumique du gaz au seuil de fluidisation
V_p	: Volume du grain
α	: Coefficient dans l'équation (19)
ΔP	: Perte de charge du gaz
ΔP_{mf}	: Perte de charge au minimum de fluidation
ϵ	: Porosité de la couche
ϵ_{mf}	: Porosité de la couche au seuil de fluidisation
ϕ, ψ	: Facteurs de forme
η	: Viscosité dynamique du gaz
χ	: Porosité interne du grain
ρ_G	: Masse volumique du gaz
ρ_p	: Masse volumique du solide
ρ_A	: Masse volumique de la couche
ρ_S	: Masse volumique vraie du solide
Ω	: Section droite du fût contenant la couche

Soumis en avril 1988 – Accepté en mai 1989

RÉFÉRENCES

1. Hymore K., *Adsorption en lit fluidisé*. Thèse de docteur-ingénieur, I.G.C., Toulouse (France), 1980.
2. Ergun S. – *Anal. Chem.*, 1951, **23**, 1:151.
3. Ergun S. – *Anal. Chem.*, 1952, **24**, 2:388.
4. Laguerie C. – "Techniques de mises en contact entre phases solides et gazeuses". *Techniques de l'ingénieur*, Paris, 1988, A. 10.
5. Goudere J.-P., Riba J.-P. – "Mises en contact de phases liquide et solide". *Techniques de l'ingénieur*, Paris, 1988, A. 10.
6. Leva M. – *Fluidisation*. McGraw Hill, New York (USA), (1959).
7. Caillère S., Hémin S., Rautureau M. – "Minéralogie des argiles" Ed. Masson, Paris (France), 1982, I.
8. Ergun S. – *Chem. Ing. Prog.*, 1952, **48**, 189.
9. Bellagi A. – *Contribution à l'étude de la méthanation du monoxyde de carbone en lit fluidisé*. Thèse ès-sciences physiques, Aix-la-Chapelle (RFA), 1979.