HAL
open science

Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé multi-étapes de méthanisation en voie sèche

Victor Ruys

To cite this version:

Victor Ruys. Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé multi-étapes de méthanisation en voie sèche. Sciences agricoles. Université Grenoble Alpes, 2017. Français. NNT : 2017GREAI064 . tel-02308463

HAL Id: tel-02308463

https://theses.hal.science/tel-02308463v1

Submitted on 8 Oct 2019

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

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

Communauté UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Mécanique des Fluides, Procédés, Energétique**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Victor RUYS

Thèse dirigée par **Albert MAGNIN** et
Codirigée par **Nadia EL KISSI**
Co-encadré par **Hassen BENBELKACEM**

préparée au sein du **Laboratoire de Rhéologie et Procédés UMR 5520**
dans **l'École Doctorale Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production**

Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé multi-étapes de méthanisation en voie sèche

Thèse soutenue publiquement le 25 juillet 2017,
devant le jury composé de :

M. Pierre BUFFIERE
PR INSA de Lyon, Président
M. Renaud ESCUDIE
DR, INRA Rapporteur
M. Nicolas ROCHE
PU, Université Aix Marseille, Rapporteur
M. Albert MAGNIN
DR, CNRS, Directeur de thèse
M. Nadia EL KISSI
DR, CNRS, Co-Directrice de thèse
M. Hassen BENBELKACEM
MCF INSA de LYON, Co-encadreur
M. Stéphane HATTOU
Responsable de Service, Arkolia, Invité
M. Laurent JOSSIC
MCF INP-Grenoble, Invité

CONFIDENTIEL

Communauté UNIVERSITÉ Grenoble Alpes

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Mécanique des Fluides, Procédés, Energétique**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Victor RUYS

Thèse dirigée par **Albert MAGNIN** et
Co-dirigée par **Nadia EL KISSI**
Co-encadré par **Hassen BENBELKACEM**

préparée au sein du **Laboratoire de Rhéologie et Procédés UMR 5520**
dans **l'École Doctorale Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production**

Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé multi-étapes de méthanisation en voie

Thèse soutenue publiquement le 25 juillet 2017,
devant le jury composé de :

M. Pierre BUFFIERE
PR INSA de Lyon, Président
M. Renaud ESCUDIE
DR, INRA Rapporteur
M. Nicolas ROCHE
PU, Université Aix Marseille, Rapporteur
M. Albert MAGNIN
DR, CNRS, Directeur de thèse
M. Nadia EL KISSI
DR, CNRS, Co-Directrice de thèse
M. Hassen BENBELKACEM
MCF INSA de LYON, Co-encadreur
M. Stéphane HATTOU
Responsable de Service, Arkolia, Invité
M. Laurent JOSSIC
MCF INP-Grenoble, Invité

CONFIDENTIEL

Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé de méthanisation par voie sèche multi-étapes.

Résumé

Le procédé Arkométha® utilise à profit l'injection de biogaz pour mélanger les résidus agricoles (fumier, lisier, ensilage, etc…) lors d'un procédé de méthanisation en voie sèche dans lequel la matière est épaisse. La connaissance des propriétés rhéologiques de ces matériaux, rarement étudiés dans la littérature, notamment à l'échelle industrielle, est un élément indispensable pour maitriser et contrôler le processus de mélange. Cette thèse a pour objectif de développer la compréhension des évolutions physiques et rhéologiques de ces matériaux lors de la méthanisation. La revue bibliographique détaillée dans le deuxième chapitre, a montré la nécessité de disposer d'un rhéomètre capable de mesurer les propriétés rhéologiques de ces produits à l'échelle industrielle. Pour cela, un cahier de charge a été établi à partir des contraintes scientifiques et techniques imposées par ces matériaux considérés comme des suspensions concentrées en fibres de dimensions importantes. Sur cette base, un rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats, nommé RGDS, a été construit, validé et mis en service sur site industriel. La technique de scissométrie était utilisée pour mesurer le seuil d'écoulement et des pales type mélangeur, étalonnées en utilisant l'analogie de Couette, permettent de mesurer les propriétés sous écoulement. Dans le troisième chapitre nous avons montré la limite de l'utilisation du taux de matière sèche (MS%) traditionnellement utilisé comme un paramètre contrôlant la rhéologie, comme par exemple, le seuil d'écoulement de ces matériaux. Nous avons montré qu'il est plus pertinent de maitriser la répartition de l'eau dans la suspension pour contrôler les propriétés rhéologiques en prenant en compte le caractère spongieux de la matière lignocellulosique. Nous avons montré comment déterminer les concentrations critiques qui séparent les régimes semi-concentré, concentré, milieu triphasique non saturé en liquide jusqu'à un milieu granulaire humide et leurs relations avec le seuil d'écoulement. Dans le quatrième chapitre nous avons étudié l'effet de l'évolution des paramètres opératoires du procédé de méthanisation comme la taille des fibres, la température et le taux de matière sèche sur les propriétés rhéologiques des matériaux. Plusieurs modèles et lois ont été proposés pour quantifier l'intérêt d'effectuer des modifications des paramètres opératoires sur la rhéologie de ces matériaux.

Mots clés :

Rhéologie, méthanisation en voie sèche, fumier, déchets végétaux, suspensions, fibres

Rheology of agricultural residues for a multi-stage dry anaerobic digestion process.

Abstract

The Arkometha® process uses biogas injections to mix agricultural residues (manure, slurry, silage, straw) in a dry anaerobic digestion process. Knowledge of the rheological properties of these materials, rarely studied in the literature, and especially not on an industrial scale, is an essential element to supervise and control the mixing process. This thesis aims to improve the understanding of the physical and rheological evolutions of these materials along the anaerobic digestion process. The literature showed the need for a rheometer able to measure the rheological properties of these products at the industrial scale. For this purpose, specifications were established based on the scientific and technical constraints imposed by these materials, which are considered as fiber concentrated suspensions. On this basis, a large rheometer for substrates, called RGDS (for Rheometer Grand Dimensions for the Substrate), was built, validated and commissioned on an industrial site. The van test technique was used to measure the yield stress and mixer blades, calibrated using the Couette analogy, were used to measure shear stresses. In the third chapter we have shown the utilization limits of the total solids (TS%), traditionally used as the main parameter for rheology controlling. In this chapter we treated the yield stress of these materials as a rheological parameter example. We have shown that it is more appropriate to control the water distribution in order to control the rheological properties of theses suspensions by taking into account the spongy nature of the lignocellulosic material. We have shown how to determine the critical concentrations separating the semi-concentrated, concentrated, triphasic and the wet granular behaviors and their relationship with yield stress. In the fourth chapter, we studied the effect of changes in the anaerobic digestion operating parameters, such as fiber size, temperature and TS on the rheological properties of materials. Several models and empirical equations have been proposed to quantify the advantage of making changes in the operating parameters on the rheology of these materials.

Keywords:

Rheology, dry methanisation, manure, vegetal waste, suspensions, fibers

Remerciements

Tout d'abord, je remercie la société Arkolia Energies et Stéphane Hattou, Responsable de la R et D, le laboratoire Rhéologie et Procédés (LRP) et sa Directrice Nadia El Kissi et le laboratoire Déchets, Eau, Environnement et Pollutions (DEEP) et son Directeur Pierre Buffière à l'INSA de Lyon pour leurs accueils tout au long de cette thèse.

Je remercie la société Arkolia d'avoir financé cette thèse et Stéphane Hattou qui a suivi cette thèse pour l'entreprise et qui m'a fait prendre conscience de la réalité du fonctionnement des entreprises françaises

Je n'ai pas assez de mots pour remercier Albert Magnin, Directeur de Recherche au CNRS, pour m'avoir fait confiance malgré les connaissances imparfaites que j'avais au début de la thèse sur la rhéologie, puis pour m'avoir guidé et consacré le temps nécessaire pendant toute la durée de la thèse.

Mes remerciements vont également à Hassen Benbelkacem, Maître de Conférence à l'INSA et Nadia El-Kissi, Directrice de Recherche au CNRS, pour leur gentillesse et leurs nombreux conseils pertinentes lors du co-encadrement de ma thèse, et je leurs en suis très reconnaissant.

Je remercie les membres de mon jury.

- Pierre Buffière, Professeur à l'INSA qui a accepté de présider mon jury.

- Renaud Escudié, Directeur de Recherche à l'INRA et Nicolas Roche, Professeur à l'Université Aix-Marseille d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse.

- Laurent Jossic, Maitre de Conférence à l'INP-Grenoble d'avoir accepté de participé à mon jury.

Je remercie également Michel Bonhomme, le directeur de Métha-ENR, pour sa gentillesse, son inspiration et son accompagnement au début de la thèse.

Un grand merci à l'équipe technique du laboratoire Rhéologie et Procédés notamment pour la conception et le montage du RGDS. Didier Blésès, Ingénieur d'études, Fréderic Hugenell, Ingénieur de recherche, Mohamed Karrouch et Éric Faivre, techniciens, je vous remercie beaucoup.

Un grand merci également à Hélène Galliard, Ingénieur de recherche, pour m'avoir guidé pour la rhéométrie

Je remercie Raphaël Passas ainsi que Martine Rueff pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire LGP2 lors de la caractérisation granulométriques des fibres, et pour les conseils stimulants que j'ai eu l'honneur de recevoir de leur part.

Je suis également reconnaissant de Frédéric Dufour et Jean-Benoît Toni du Laboratoire 3SR pour avoir donné accès au mélangeur à argile de leur laboratoire

Mes remerciements vont également à tous les collègues des deux laboratoires et de l'entreprise Arkolia, doctorants, stagiaires, salariés et personnels techniques. Je mentionne notamment :

Maxime pour avoir partagé des moments agréables autour des fermenteurs à l'INSA et lors des prélèvements de fumier.

Frédéric Blanc, Ingénieur Arkolia, pour les discussions techniques

Olivier pour son aide lors des expériences effectuées au LRP et le site de Napagèse sur le RGDS.

Ziemihori et Fiacre pour leurs aides lors de travaux expérimentaux au LRP.

Ruben avec qui j'ai partagé le bureau au laboratoire DEEP.

Ola d'avoir partagé quelques conversations amicales.

Bien sûr sans oublier Boram, Bruno, Lucie, Manon, Marta, Rémy, Salma du laboratoire DEEP et, Ahlem, Alexis, Ayoub, Candice, Moctar et Nabil au LRP.

Pour leurs encouragements et leur assistance aussi bien matérielle que morale qui m'ont permis de faire cette thèse dans de bonnes conditions, je remercie chaudement Diaa Abosaleh, ma mère et Faysal Ruz, mon père.

Je consacre le plus grand remerciement pour la patiente, et compatissante, la lune qui a éclairci mes nuits, mon accompagnatrice dans cette vie, mon épouse Rasha. Merci beaucoup pour le courage avec lequel tu t'occupes de notre petite famille pendant mes nombreuses absences à la maison pour finir cette thèse.

Enfin, je remercie les deux étoiles qui ont dû supporter les états d'âme d'un Papa qui partait toujours lancer des « manips » et qui revenait fatigué. Leurs sourires insouciants m'ont toujours redonnés courage.

Victor

Liste de communications relatives à cette thèse

Communications orales

Sami RUZ[1]. Evolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux pour la méthanisation en voie sèche en fonction de la distribution de la phase liquid. 5ème journée de la méthanisation, 6-8 Décembre 2016, Chambéry, France.

RUZ S. et al. Evolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux en fonction de la distribution de l'eau dans un procédé de méthanisation en voie sèche. Journée scientifique du COmité de DÉveloppement du GÉnie des Procédés en Rhône-Alpes Auvergne (CODEGEPRA), Novembre 2016, Grenoble, France.

Communications affichées

RUZ S. et al. Evolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux en fonction de la distribution de l'eau dans un procédé de méthanisation en voie sèche. Journée scientifique du CODEGEPRA, Novembre 2016, Grenoble, France.

[1] Sami RUZ s'agit de mon prénom et nom avant l'obtention de la nationalité française.

Table des matières

Remerciements 7
Liste de communications relatives à cette thèse 9
Table des matières 11
Liste des figures 15
Liste des tableaux 19

Chapitre I : Introduction générale, Etat de l'art et Objectifs de la thèse 21
Table des matières du chapitre I 23
I.1. Contexte de l'étude 26
I.2. La méthanisation 26
I.3. Différents procédés de méthanisation : avantages et inconvénients 27
I.3.1. Méthanisation en voie humide continue : réacteur infiniment mélangé 27
I.3.2. Méthanisation des matières épaisses, dite aussi « en voie sèche », discontinue 29
I.3.3. Méthanisation en voie sèche semi-continue (piston) 30
I.3.3.1. Mélange mécanique : 30
I.3.3.2. Mélange par biogaz comprimé 31
I.4. Procédé Arkométha® 32
I.4.1. Arkolia Energies en quelques mots 32
I.4.2. Principe du procédé Arkomètha® 32
I.4.3. Problématiques du procédé Arkométha® 34
I.5. Définition des termes 35
I.6. Description physique et rhéologique des matériaux étudiés 36
I.7. Objectifs et plan de la thèse 41
I.8. Références bibliographiques 43

Chapitre II : Rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS) 45

Table des matières du chapitre II 47
Notations et symboles du chapitre II 49
II.1. Introduction 51
II.2. Cahier des charges scientifique et technique : 54
II.3. Principe retenu et conception de l'appareil 56
II.4. Equations pour les mesures rhéométriques 63
II.4.1. Principe de mesure de seuil par scissomètre 63
II.4.2. Analogie de Couette 65
II.4.2.1. Principe d'analogie de Couette 65
II.4.2.2. Détermination du régime laminaire pour un mélangeur de proximité 67

II.4.2.3. Influence de la rhéofluidification dans l'analogie du Couette 68
II.5. Etalonnage du RGDS 70
II.5.1. Etalonnage de l'ensemble couplemètre, paliers et axe 70
II.5.2. Validation de mesure de seuil par scissométrie 72
II.5.3. Validation des mesures de viscosité par l'analogie de Couette 74
II.5.3.1. Détermination de k_τ et $k\gamma v$ 74
II.5.3.2. Détermination du régime laminaire des géométries utilisées 76
II.5.3.3. Validation de k_τ et de $k\gamma v$ 78
II.6. Rhéologie des matières agricoles avec le RGDS 82
II.6.1. Mesure de seuil par scissométrie 83
II.6.1.1. Seuil d'écoulement de l'intrant 83
II.6.1.2. Seuil d'écoulement de digestat 85
II.6.2. Mesure de la viscosité par une pale à ailettes 90° 86
II.7. Conclusions et perspectives 89
II.8. Références bibliographiques 90
Annexe II.1 : Mode d'emploi RGDS 94
AII.1.1. Présentation du logiciel RGDS : 94
AII.1.2. La préparation et le déroulement de test 96
AII.1.2.1. Préparations du récipient et de la procédure : 96
AII.1.2.2. Le déroulement du test : 97
AII.1.2.3. Vidange et nettoyage : 98
AII.1.3. Consignes de sécurités : 98
Annexe II.2 : les protocoles suivis lors d'essais de scissométrie de l'argile avec le rhéomètre de laboratoire et le RGDS 99
Annexe II.3 : calculs des incertitudes du taux de cisaillement et des contraintes de cisaillement lors des mesures par le RGDS 101
Annexe II.4 : Protocole suivi pour la préparation du Carbopol d'étalonnage à concentration massique de 1,5 % 105

Chapitre III : Évolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux en fonction de la distribution de la phase liquide 107
Table des matières du chapitre III 109
Notations et symboles du chapitre III 111
III.1. Introduction 113
III.2. Matériaux étudiés 115
III.2.1. Description des matériaux étudiés et leur problématique 115
III.2.2. Présentation des matériaux étudiés 117
III.3. Méthodes expérimentales 119

III.3.1. Caractérisations massique, volumique et granulométrique 119
III.3.1.1. Fractions massiques et volumiques 119
III.3.1.2. Caractérisation granulométrique 121
III.3.2. Mesure du seuil par scissométrie 122
III.3.2.1. Principe de mesure du scissomètre 122
III.3.2.2. Appareils utilisés : 123
III.3.3. Distribution des états de l'eau dans la matière par séchage 125
III.3.3.1. Principe de la technique de séchage à température constante 125
III.3.3.2. Appareil utilisé et essais effectués 127
III.4. Résultats et discussions 128
III.4.1. Granulométrie et morphologie des suspensions étudiées 128
III.4.1.1. Granulométrie du lisier et d'ensilage 128
III.4.1.2. La fraction volumique maximale de fibres ($F_{v\ max\ fibre}$) 131
III.4.2. Évolution du seuil et de la MS_{wc} en fonction des fractions des différents constituants 132
III.4.3. Évolution du seuil en fonction de la MS, de la $F_{v\ fibre\ humide}$, et de la $F_{m\ eau\ libre}$ pour un échantillon donné 133
III.4.3.1. Résultats rhéométriques 133
III.4.3.2. Description de l'évolution physique du milieu lors des évolutions de MS et de la $F_{v\ fibre\ humide}$ 135
III.4.3.3. Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la fraction massique d'eau libre 140
III.4.4. Méthodologie pour prédire la fraction d'eau ajoutée nécessaire pour atteindre MS_{c2} 141
III.4.5. Lois de prédiction du seuil en fonction de la MS entre MS_{c1} et MS_{c2} 142
III.4.5.1. Revue bibliographique 142
III.4.5.2. Résultats et discussions 144
III.4.6. Correspondance entre MS_{c2} et MS_{wc} 146
III.5. Conclusions 147
III.6. Références bibliographiques 148
III.7. Annexes 152
III.7.1. Annexe III.1 : Influence de la masse de l'échantillon sur la teneur en eau liée (WC) 152
III.7.2. Annexe III.2 : Protocole d'essai de séchage 156
III.7.3. Annexe III.3 : Caractéristiques granulométriques du lisier et de l'ensilage 157
III.7.4. Annexe III.4 : Etude bibliographique de l'effet du rapport d'aspect (r_p) sur la fraction volumique maximale des fibres. 158
III.7.5. Annexe III.5. Protocole du test de scissométrie 162

III.7.6. Annexe III.6 : Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la fraction volumique du mélange N.4 163
III.7.7. Annexe III.7 : Exemple numérique pour la prédiction de la fraction d'eau ajoutée pour atteindre MS_{c2} 164

Chapitre IV : Effets des paramètres opératoires sur la rhéologie des substrats agricoles issus des fumiers pailleux dans un procédé de méthanisation piston en voie sèche : taille, température et matière sèche 165
Table des matières du chapitre IV 167
Notations et symboles du chapitre IV 169
IV.1. Introduction 171
IV.2. Matériaux utilisés et leurs préparations 173
IV.3. Méthodes utilisées 175
IV.3.1. Méthodologie de hachage 175
IV.3.2. Rhéométrie 176
IV.3.2.1. Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS) 176
IV.3.2.2. Rhéomètre de laboratoire 176
IV.4. Caractérisations massique, volumique et granulométrique des matières 180
IV.5. Effet de la taille des fibres végétales 181
IV.5.1. Revue bibliographique 181
IV.5.2. Résultats et discussions 184
IV.5.2.1. Propriétés rhéométriques 184
IV.5.2.2. Impacte de hachage sur la granulométrie des fibres de la matière 2 190
IV.5.2.3. Influence de la taille du hachage sur la teneur en eau liée et l'impact sur la rhéologie des matériaux. Etude réalisé sur la matière 2. 192
IV.6. Effet de la température 193
IV.6.1. Revue bibliographique 193
IV.6.2. Résultats et discussions 196
IV.7. Effet de la MS et/ou la fraction volumique des fibres 201
IV.7.1. Revue bibliographique 201
IV.7.2. Résultats et discussions 206
IV.8. Conclusions et perspectives 212
IV.9. Références bibliographiques 213
Annexe IV.1. Comparaison des mesures du seuil d'écoulement de la matière 2 avec le CLEAG et un scissomètre 215

Chapitre V : Conclusions générales, perspectives et applications industrielles ……..219

Liste des figures

Figures chapitre I

Figure I.1 : Représentation schématique des étapes de la méthanisation 26
Figure I.2 : Réacteur infiniment mélangé. Source : http://www.enerzine.com/12/12381+projet-de-methanisation-a-cleden-poher-finistere+.html 27
Figure I.3 : Méthaniseur garage. Source : http://www.aveniragricole.net/011-9827-Des-poulets-chauffes-au-biogaz.html 28
Figure I.4 : Réacteur piston voie sèche. Source : Ineval Environnement 29
Figure I.5 : Réacteur Valorga - agitation par biogaz injecté. Source : Valorgainternational.fr 30
Figure I.6 : Réacteur Napagèse conçu avec le procédé Arkométha®. Source : présentation salon biogaz Europe – Nantes le 19 mars 2015 31
Figure I.7 : Mouvement de matière lors de l'injection de biogaz dans le procédé Arkométha®. Source : Présentation salon biogaz Europe – Nantes le 19 mars 2015 32
Figure I.8 : Exemple de la distribution des cheminées en procédé Arkométha®. Les lignes pointillées représentent un exemple des limites souhaitées de chaque compartiment. Vue en coupe au niveau de la trappe. 33
Figure I.9 : Photographies du lisier pailleux (en haut à gauche), du fumier (en haut à droite) et de l'ensilage (en bas) utilisés à l'INSA lorsque leurs prélèvements de la ferme..... 37
Figure I.10 : Photographie de l'ensilage sec après déchiquetage. 37

Figures chapitre II

Figure II.1 : Illustration du Rhéomètre de Grande Dimension pour les Substrats (RGDS) ... 57
Figure II.2 : Photographie du RGDS lors de l'étalonnage de la grande pale de scissométrie en utilisant une pâte d'argile. 58
Figure II.3 : Photographie du RGDS lors de mesure de viscosité d'un digestat sur le site industriel de Napagèse 58
Figure II.4 : Photographie des différentes géométries utilisées au RGDS : De gauche à droite : pale à ailettes, pale hélice et les trois pales de scissomètre..... 59
Figure II.5 : Le grand récipient avec la lame à ailettes (90°) et le système d'anti glissement sur la paroi. 60
Figure II.6 : Exemple d'évolution du couple mesuré par le RGDS en fonction du temps lors d'un essai de scissométrie sur des déchets agricoles..... 63
Figure II.7 : Schéma de principe de fonctionnement d'une pale à quatre lames 64

Figure II.8 : Principe de l'analogie de Couette (L. Choplin & Marchal, 2007) 66
Figure II.9 : Evolution de kγv (appelé ici Ks) obtenu suite au calcul (Guillaume Delaplace et al., 2006), en fonction de n. Caractérisation de la pale hélice et le système d'agitation sont : 0,12 > d > 0,103 ; N_r = 2 ; 2,15 > s/d > 0,55 ; 0,223 > w/d > 0,084 ; 0,123 > c/d > 0,033) utilisé par (Takahashie al., 1984). Symboles sont utilisés pour distinguer plusieurs systèmes d'agitation par pale hélice..... 69
Figure II.10 : Evolution de kγv (appelé ici K_s) en fonction de n pour une pale hélice. (Brito de la Fuente et al., 1992) , (La Fuente et al., 1998). Cette figure est retirée de l'article (Guillaume Delaplace et al., 2006)..... 69
Figure II.11 : Couple mesuré et celui appliqué pour la gamme entre 0 et 10 N.m (A) et entre 0 et 100 N.m (B)..... 70
Figure II.12 : oscillation du couple lors de la rotation à vide en appliquant plusieurs vitesses 71
Figure II.13 : Incertitude des mesures liée au frottement des paliers en fonction des vitesses appliquées..... 72
Figure II.14 : Mélangeur des fluides pâteux "Réf : France Machine type M150" au laboratoire 3SR..... 73
Figure II.15 : Evolutions de **kγv** (●) et k_τ (▲) en fonction de N. Mesures effectuées en utilisant un fluide newtonien (du glucose pure à 40 °C) par A : la pale hélice, B : la pale à ailettes à 90° et C : la pale à ailettes à 45°. 75
Figure II.16 : Np en fonction de Re_n lors des mesures sur de Carbopol par la pale à hélice (A) et la pale à ailettes (B) 77
Figure II.17 : Les points expérimentaux des mesures rhéologiques du Carbopol 1,5 %, pH= 5,5 pour le DHR3 (+,X) et pour RGDS en utilisant A : pale hélice (●), B : pale à ailettes 90° (■) et C : pale à ailettes 45° (♦). 80
Figure II.18 : RGDS lors des mesures rhéométriques à Napagèse..... 82
Figure II.19 : Photographies des ingrédients de l'intrant : 1 : fumier ovin, 2 : fumier équin, 3 : ensilage d'herbe et 4 : déchets céréales..... 84
Figure II.20 : Présence de biogaz dans l'échantillon après un brassage du fermenteur industriel bar biogaz comprimé..... 86
Figure II.21 : Courbes d'écoulement pour un digestat de Napagèse à 14,3 % de MS 87
Figure II.22: Outil de fixation des récipients sur le rhéomètre de laboratoire..... 99
Figure II.23 : à gauche : le récipient rempli par l'argile. Au milieu : le scissomètre introduit dans l'échantillon. À droite : le tassage de l'échantillon après l'introduction du scissomètre 100
Figure II.24 : l'évolution de la viscosité de la solution du glucose pure en fonction de la température..... 103

Figures chapitre III

Figure III.1 : Déchiqueteur à cisailles rotative « Broyeur déchiqueteur BB230 » 117
Figure III.2 : La pale et la cellule utilisées pour les mesures du seuil par ARG2. Système d'anti glissement collé sur les parois de la cellule..... 124
Figure III.3 : Présentation schématique de la courbe de séchage 126
Figure III.4 : Photographies de la caractérisation du lisier et de l'ensilage sous le microscope. 129
Figure III.5 : Largeur en fonction de la longueur pour les fibres issues du lisier [A1 et A2 (échelle plus petite)] et d'ensilage (B). 130
Figure III.6 : Classification des fibres selon r_p pour le lisier (A) et l'ensilage (B). 130
Figure III.7 : Seuil de contrainte mesuré à 37 °C (A) et la MS_{wc} (B) pour les 3 mélanges.. 132
Figure III.8 : Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la $F_{v\ fibres\ humides}$ pour le mélange N.3 134
Figure III.9 : Evolution physique du milieu lors des évolutions de MS et de la fraction volumique des fibres 135
Figure III.10 : Interaction entre les fibres dans le régime concentré. À gauche : contact continu entre les fibres, à droite : enchevêtrement..... 138
Figure III.11 : Evolution du seuil de contrainte en fonction de la $F_{m\ eau\ libre}$ pour le mélange N.3 140
Figure III.12 : données expérimentales des mesures de seuil en fonction de MS, pour le mélange N.3 et 4, avec leur ajustement en utilisant les équations 13, 14 et 15 145
Figure III.13 : MS_{wc} pour plusieurs poids du mélange N.4 (échantillon hydrolysé)..... 154
Figure III.14 : La fraction de nombre de fibres en fonction de la longueur et le diamètre pour le lisier (A et B) et l'ensilage (C et D) 157
Figure III.15 : Fraction volumique maximum des fibres en fonction du r_p (Toll, 1998) 159
Figure III.16 : Fraction volumique maximum des fibres en fonction du r_p (Martinie et al., 2010) 159
Figure III.17 : l'évolution de la porosité en fonction du rapport d'aspect pour plusieurs auteurs 160
Figure III.18 : Fraction volumique maximum des fibres en fonction du rp ici noté α par les auteurs selon A) (Wouterse et al., 2009) et B) (Williams & Philipse, 2003)..... 161
Figure III.19 : Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la Fv fibres humides pour le mélange N.4 163

Figure chapitre IV

Figure IV.1 : A : moule de silicone utilisé pour préparer les matières avant le hachage ; B : moules remplis et congelés ; C : Barres des substrats congelées et démontées ; D : Substrats après le hachage. 176

Figure IV.2 : Géométrie Couette Large Entrefer Anti-Glissement (CLEAG) pour les matières hachées 177

Figure IV.3 : La distribution de la longueur des fibres pour a) la pâte de bois et b) la suspension de fibres de nylon synthétique (Bennington et al., 1990)..... 183

Figure IV.4 : courbes d'écoulement de la matière 1 à plusieurs tailles de hachage. Les points et les courbes représentent les mesures expérimentales et l'ajustement par le modèle d'HB respectivement. **A** : τ en fonction de γ, **B** : μ_{app} en fonction de γ 185

Figure IV.5 : Organisation des fibres selon le taux de cisaillement..... 186

Figure IV.6 : Mesures rhéomètriques du seuil d'écoulement (A) et de la viscosité apparente (B) de la matière 1 en fonction de la taille de hachage. Pour les deux figures les points représentent les mesures rhéomètriques et les lignes pointillées représentent les ajustement mathématiques..... 187

Figure IV.7 : Seuil d'écoulement de la matière 2 mesuré par le CLEAG. Les points représentent les mesures expérimentales et la ligne représente l'ajustement avec l'Eq 7. 189

Figure IV.8 : Fraction de nombre des fibres de la matière 2 en fonction de la longueur 191

Figure IV.9 : Courbes d'écoulement de la matière 1 pour des températures diverses 196

Figure IV.10 : Seuil d'écoulement de la matière 3 à diverses températures. 197

Figure IV.11 : Ajustement de l'évolution du seuil de la matière 1 (A) et 3 (B) en fonction de la température en utilisant la loi d'Arrhenius..... 198

Figure IV.12 : Ajustement de l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la température pour la matière 1 en utilisant la loi d'Arrhenius et pour plusieurs taux de cisaillement. Les points représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les ajustement mathématiques..... 199

Figure IV.13 : Courbes d'écoulement de la matière 4 à MS divers. Les points representent les mesures expérimentales et les courbes representent l'ajustement par le modèle d'HB..... 207

Figure IV.14 : Evolution du Seuil (A), k (B) et n (C) en fonction de la MS et la $F_{v\ \text{fibre humide}}$ pour la matière 4..... 208

Figure IV.15 : Ajustement du seuil d'écoulement en utilisant le modèle de percolation Eq 11 210

Figure IV.16 : Seuil d'écoulement de la matière 2 mesuré par la scissométrie et la géométrie CLEAG..... 215

Figure IV.16 : Résultats expérimentaux des contraintes de cisaillement en fonction du taux de cisaillement après les corrections effectuées par la CLEAG et un plan-plan 216

Liste des tableaux

Tableaux chapitre II

Tableau II.1 : Rapport (entrefer / L_{fibre}) utilisé dans les études bibliographiques traitant de suspensions fibreuses 55

Tableau II.2: Les dimensions des récipients et des pales du RGDS 61

Tableau II.3: Résultats des mesures du seuil d'écoulement de suspensions argile par DHR3 et RGDS 74

Tableau II.4 : Valeurs moyennes de k_τ et de $k\gamma v$ pour la pale hélice et celle à ailettes 76

Tableau II.5: Paramètres rhéologiques du Carbopol 1,5 %, pH = 5,5 mesurés en utilisant une géométrie plan-plan 79

Tableau II.6 : Les constituants de l'intrant brut de Napagèse 83

Tableau II.7 : Seuil d'intrant de Napagèse à deux températures 85

Tableau II.8 : Les constituants de l'intrant composant les digestats étudiés 85

Tableaux chapitre III

Tableau III.1 : fraction massique (F_m) et MS pour les constituants des mélanges N.1,2 et 3 118

Tableau III.2 : Constituants de l'intrant du mélange N.4, leurs MS et F_m 118

Tableau III.3 : Dimensions de la pale et de la cellule utilisées pour les mesures du seuil d'écoulement par scissomètre en utilisant l'ARG2 123

Tableau III.4 : dimensions de la pale et du récipient utilisés pour les tests de cissomètrie par RGDS 124

Tableau III.5 : Rapport d'aspect r_p moyens des fibres du lisier et de l'ensilage 131

Tableau III.6 : Classification des régimes d'écoulement des suspensions selon Nc 137

Tableau III.7 : a, b et le seuil de contrainte cités dans la bibliographie pour quelques suspensions fibreuses 143

Tableau III.8 : Résultats de l'ajustement des points expérimentaux par les équations 13, 14 et 15 145

Tableau III.9 : MS_{c2} et MS_{wc} pour les mélanges N.3 et 4. 146

Tableau III.10 : Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-type (valeur moyenne estimée du point WC) 153

Tableau III.11 : Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-types (valeur maximale estimée du point WC)..... 153
Tableau III.12 : Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-type (valeur minimale estimée du point WC)..... 154

Tableaux chapitre IV

Tableau IV.1 : Constituants de l'entrant de la matière 1, leur MS et F_m..... 173
Tableau IV.2 : Constituants des matières 2,3 et 4. leurs MS et F_m..... 174
Tableau IV.3 : Seuil, k et n pour la matière 1..... 186
Tableau IV.4 : Valeurs de j et u pour la matière 1 aux taux de cisaillement divers avec L exprimé en m..... 188
Tableau IV.5 : Caractéristiques granulométriques de la matière 2 avant et après le hachage 191
Tableau IV.6 : Taux d'eau liée (WC) pour la matière 2..... 192
Tableau IV.7 : Revue bibliographique des travaux concernant l'effet de la température sur la rhéologie des biomasses. Les valeurs citées de la viscosité apparente sont calculées à °γ = 100 s^{-1} 194
Tableau IV.8 : seuil, k et n en fonction de la température pour la matière 1..... 197
Tableau IV.9 : μ_{app} de la matière 1 à température et taux de cisaillement divers..... 198
Tableau IV.10 : Energie d'activation pour la matière 1 199
Tableau IV.11 : Revues de la littérature pour l'effet de la MS sur les propriétés rhéologiques des biomasses 202
Tableau IV.12 : La $F_{v\ fibres\ humides}$ (en %) en fonction de la MS pour la matière 4 206
Tableau IV.13 : Seuil, k et n en fonction de la MS ou la $F_{V\ fibres\ humides}$ pour les matières 4 . 208
Tableau IV.14 : les paramètres v et w du modèle de percolation de la partie visqueuse (Eq 12) pour la matière 4 à divers taux de cisaillement 210
Tableau IV.15 : Mesure du seuil par scissomètre en fonction de la vitesse de rotation..... 216

Chapitre I : Introduction générale, Etat de l'art et Objectifs de la thèse

Table des matières du chapitre I

Chapitre I : Introduction générale, Etat de l'art et Objectifs de la thèse 21
Table des matières du chapitre I 23
I.1. Contexte de l'étude 25
I.2. La méthanisation 25
I.3. Différents procédés de méthanisation : avantages et inconvénients 26
I.3.1. Méthanisation en voie humide continue : réacteur infiniment mélangé 26
I.3.2. Méthanisation des matières épaisses, dite aussi « en voie sèche », discontinue 28
I.3.3. Méthanisation en voie sèche semi-continue (piston) 29
I.3.3.1. Mélange mécanique : 29
I.3.3.2. Mélange par biogaz comprimé 30
I.4. Procédé Arkométha® 31
I.4.1. Arkolia Energies en quelques mots 31
I.4.2. Principe du procédé Arkomètha® 31
I.4.3. Problématiques du procédé Arkométha® 33
I.5. Définition des termes 34
I.6. Description physique et rhéologique des matériaux étudiés 35
I.7. Objectifs et plan de la thèse 40
I.8. Références bibliographiques 42

I.1. Contexte de l'étude

Ce travail de thèse a été financé par l'entreprise Arkolia Energies dans le cadre d'une convention CIFRE (n°2014/0055) actant la collaboration d'Arkolia Energies, du Laboratoire Rhéologie et Procédés, du laboratoire DEEP de l'INSA de Lyon et de l'ANRT. Elle entre dans les actions de recherche lancées par Arkolia Energie sur le développement de leur technologie brevetée Arkometha®. Arkolia Energies a financé la thèse de Maxime Dooms (Dooms, 2017) qui a travaillé sous la direction de Pierre Buffière et Hassen Benbelkacem au laboratoire DEEP à l'INSA de Lyon sur les aspects biologiques du procédé. La présente thèse est consacrée à l'aspect rhéologique du procédé. Les travaux se sont déroulés au Laboratoire Rhéologie et Procédés, sous la direction d'Albert Magnin et Nadia El Kissi en collaboration avec Hassen Benbelkacem, en utilisant, principalement, les matériaux utilisés par Maxime Dooms. Pour aider Arkolia Energies dans ses recherches à maitriser le procédé Arkomètha® l'état français soutient Arkolia Energies par une subvention classifiée dans le programme des Investissements d'Avenir.

I.2. La méthanisation

La méthanisation (appelée aussi fermentation) est une technologie basée sur la dégradation de la matière organique par des micro-organismes en conditions contrôlées et en l'absence d'oxygène (réaction en milieu anaérobie). La décomposition de la matière organique conduit à la production de biogaz suite à l'équation de Buswell :

$$C_nH_aO_b + (n - a/4 - b/2)\ H_2O \rightarrow (n/2+a/8-b/4)\ CH_4 + (n/2-a/8+b/4)\ CO_2$$

Ce biogaz peut ensuite être valorisé de nombreuses façons (production électrique, carburant, production de chaleur, cogénération, injection dans le réseau de gaz naturel, biocarburant etc.).

La méthanisation de déchets organiques présente de nombreux avantages comme la valorisation de la matière organique doublée de la production d'énergie, la diminution de la quantité de déchets organiques à traiter par rapport à d'autres filières, la diminution des émissions de gaz à effet de serre par substitution à l'usage d'énergies fossiles ou d'engrais chimiques, et la limitation des émissions d'odeurs, etc…

Le procédé de méthanisation se déroule en plusieurs étapes montrées en **figure I.1**. Pour optimiser ce procédé, il faut fournir les conditions optimales en pH et température pour chaque étape indépendamment. Ces conditions peuvent être différentes d'une étape à l'autre. La thèse de Maxime Dooms (Dooms, 2017) traite en détails les étapes de la méthanisation du procédé Arkométha® et leurs conditions optimales d'un point de vue biologique.

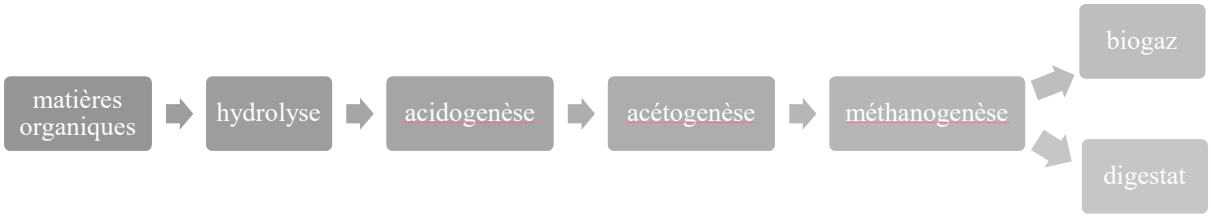


Figure I.1 : *Représentation schématique des étapes de la méthanisation*

I.3. Différents procédés de méthanisation : avantages et inconvénients

Deux méthodes classiques de méthanisation sont assez connues actuellement : la méthanisation en voie humide continue et en voie sèche discontinue. Chacune offrant des avantages et des inconvénients.

I.3.1. Méthanisation en voie humide[1] continue : réacteur infiniment mélangé

Ce procédé repose sur le mélange uniforme des déchets fortement dilués (MS inférieure à 10 % et matière plutôt liquide) dans un seul réacteur (**figure I.2**). Cette technologie est connue par la simplicité du fonctionnement et la stabilité de la production de biogaz.

[1] Voie humide ou liquide < à 10% de matière sèche (MS). Substrat semi-liquide à MS entre 15 et 20%. Voie épaisse ou sèche > à 20% de MS [(Bolzonella et al., 2003) ; (D. Bolzonella et al., 2006) ; (Forster-Carneiro et al., 2008)]. Ces indicateurs sont très approximatifs dans la mesure où la consistance du milieu dépend de nombreux facteurs (la structure, l'hydrolyse, la température, la densité, la quantité de gaz piégé, etc...).

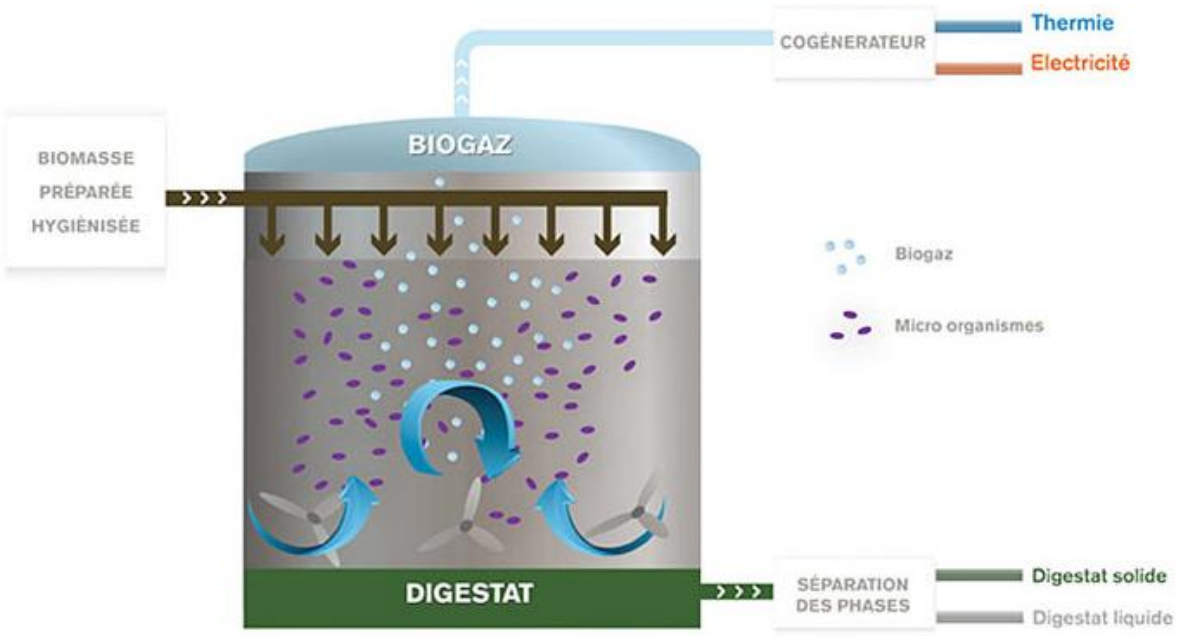


Figure I.2 *: Réacteur infiniment mélangé. Source : http://www.enerzine.com/12/12381+projet-de-methanisation-a-cleden-poher-finistere+.html*

Malgré ces avantages, ce procédé entraîne plusieurs inconvénients :

1. Une séparation de phase rapide entre le liquide et le solide qui nécessite un brassage important et continu du milieu.
2. Une dilution importante des matières organiques qui engendre :
    - Une augmentation du volume réactionnel et du flux de matière sortant du digesteur.
    - Une nécessité de stockage et d'un traitement important des effluents digérés.
    - Une réduction de l'activité bactérienne rapportée à l'unité de volume du réacteur.
3. Un mélange uniforme, ce qui empêche de différencier dans l'espace les étapes de la méthanisation. Cela ne permet pas donc de fournir des conditions optimales pour chaque étape (pH et température).
4. Des problèmes liés au mélangeur mécanique qui est la méthode traditionnelle pour mélanger les différents composants. Les inconvénients principaux incluent la consommation énergétique élevée, le besoin de maintenances régulières qui nécessitent d'arrêter le système et finalement l'arrêt total du procédé en cas de casse du mélangeur.

I.3.2. Méthanisation des matières épaisses, dite aussi « en voie sèche », discontinue

Ce type de méthanisation est également appelé « batch » ou « garage » où la matière est placée dans un conteneur fermé et non mélangé (**figure I.3**). Le réacteur dans ce cas doit être vidé de temps en temps et une période de démarrage est obligatoire après chaque remplissage.

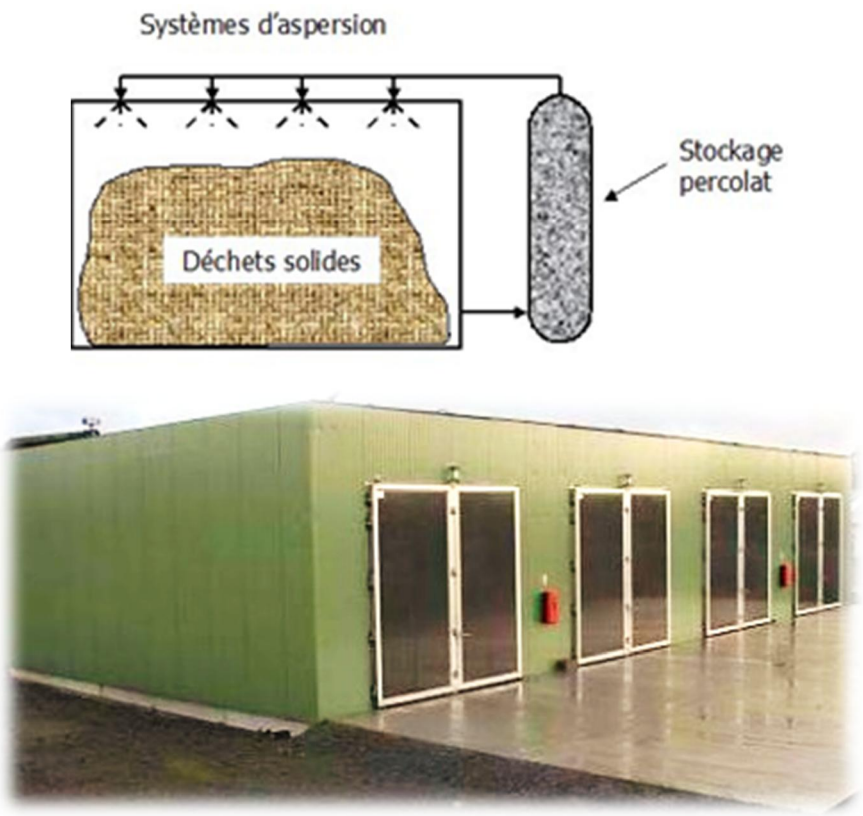


Figure I.3 *: Méthaniseur garage. Source : http://www.aveniragricole.net/011-9827-Des-poulets-chauffes-au-biogaz.html*

Ce procédé possède plusieurs avantages par rapport au procédé en voie humide :

1. La matière est peu diluée : Le volume réactionnel est donc moins important.
2. Il n'y a pas de séparation de phases.
3. Le procédé ne nécessite pas l'application d'un mélangeur mécanique dans le fermenteur. Ce système évite donc les problèmes liés à ces mélangeurs. Le contact entre les solides et le liquide se passe grâce à la recirculation des percolats.

Ce système engendre par contre quelques inconvénients comme l'instabilité de production du biogaz ; le temps de séjour des matières organiques dans le fermenteur est important ; les chemins préférentiels du liquide circulant et le faible rendement.

I.3.3. Méthanisation en voie sèche semi-continue (piston)

Afin de regrouper les avantages des voies humide et épaisse, de nouvelles possibilités techniques existent. En particulier, la digestion en voie sèche semi-continue, dite « piston », qui est relativement peu développée dans le domaine agricole, bien qu'elle puisse apporter une gestion beaucoup plus simple des installations.

Contrairement à la méthanisation en voie humide où l'eau assure le contact entre les bactéries et la matière organique, c'est le mouvement de la matière en voie épaisse qui assume ce rôle. C'est pour cela que la qualité du mélange est un élément important dans la méthanisation en voie sèche semi-continue. Plusieurs technologies ont été mises en place selon la méthode de mélange.

I.3.3.1. Mélange mécanique :

Dans ce cas, les déchets épais seront mélangés grâce aux agitateurs mécaniques (**figure I.4**). Ce type de mélangeur existe pour des réacteurs placés verticalement ou horizontalement.

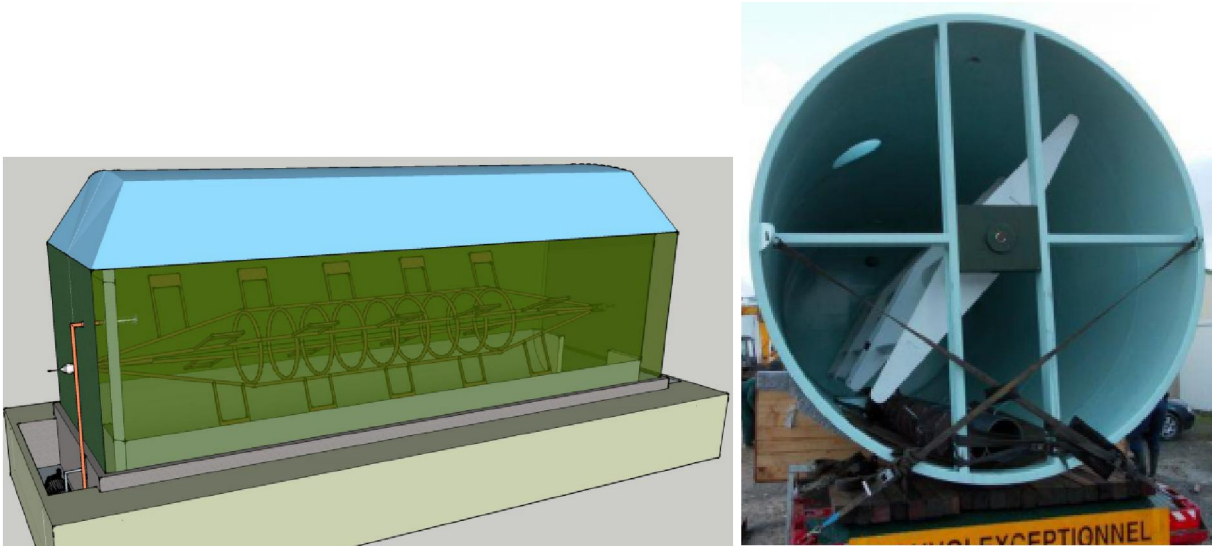


Figure I.4 *: Réacteur piston voie sèche. Source : Ineval Environnement*

Les inconvénients de ce réacteur sont la nécessité de l'arrêter à cause de la panne des mélangeurs de temps en temps et la faible accessibilité aux pièces.

I.3.3.2. Mélange par biogaz comprimé

Valorga était une des premières entreprises qui ont mis en place la technique de mélange à l'aide de biogaz. Leur procédé est basé sur l'injection du biogaz comprimé à travers des diffuseurs placés au fond du méthaniseur de déchets ménagers (**figure I.5**).

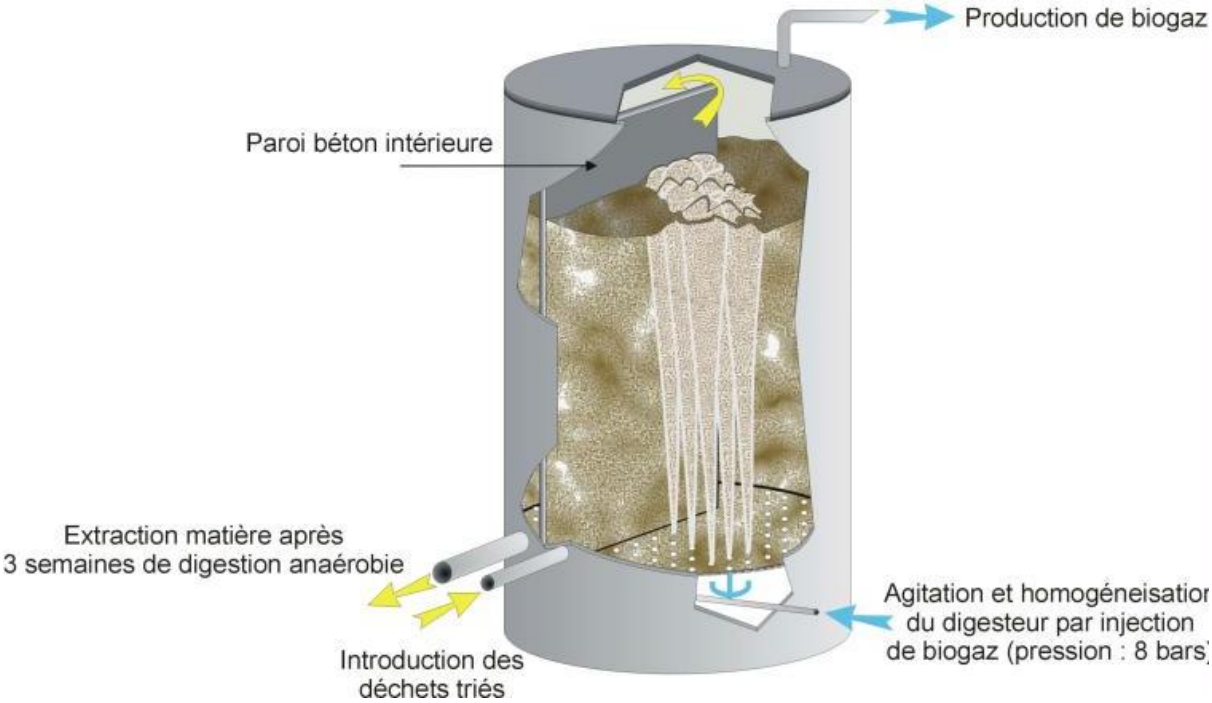


Figure I.5 *: Réacteur Valorga - agitation par biogaz injecté. Source : Valorgainternational.fr*

L'avantage de cette solution est l'élimination des pièces mécaniques en mouvement à l'intérieur du réacteur avec tous leurs problèmes potentiels. Cependant, il reste encore un inconvénient représenté par l'accumulation des déchets qui deviennent de plus en plus compacts dans les zones non agitées au fond du réacteur et, notamment, autour des diffuseurs à cause de la direction unique du biogaz. De plus, cette technique n'est pas adaptée aux méthaniseurs pistons des déchets agricoles en voie sèche à cause des fortes consistances de ces matériaux.

Afin de remédier ces inconvénients, Arkolia Energies a développé et breveté le procédé Arkométha® détaillé ci-dessous.

I.4. Procédé Arkométha®

I.4.1. Arkolia Energies en quelques mots

Arkolia Energies est une PME spécialisée en production d'énergies renouvelables. Avec un hausse de 45% par rapport à 2014, Arkolia Energies a atteint 50 M€ en CA réalisé en 2016 à partir de la construction de centrales électriques et de la revente d'électricité. Après un développement fort dans le secteur du photovoltaïque, Arkolia a choisi en 2013 de se tourner également vers la méthanisation avec la création d'une très petite entreprise (TPE) nommée Métha-ENR et absorbée par Arkolia Energies début 2016. A la lumière du procédé Valorga, Métha-ENR a breveté le procédé Arkométha® décrit au paragraphe suivant. Arkolia Energies continue son développement dans le domaine des énergies renouvelables en attaquant le secteur éolien depuis 2016.

I.4.2. Principe du procédé Arkomètha®

Le procédé Arkométha breveté par Métha-ENR est un procédé de méthanisation en voie sèche piston multi-étapes. L'avantage le plus important de ce système est le fonctionnement en plusieurs étapes qui permet de tendre vers un fonctionnement optimisé de chaque grande phase de la méthanisation (**Figure I.1**). Mais au-delà de cet avantage, le fonctionnement multi-étapes implique un fonctionnement qui se rapproche du flux « piston » dont la meilleure efficacité cinétique est bien connue.

Le site de Napagèse est le 1er méthaniseur conçu, en utilisant cette méthode (**Figure I.6**), pour dégrader les déchets agricoles.

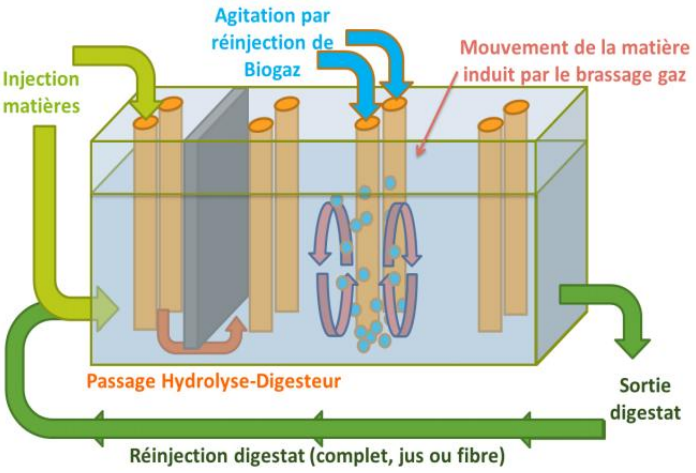


Figure I.6 *: Réacteur Napagèse conçu avec le procédé Arkométha®. Source : présentation salon biogaz Europe – Nantes le 19 mars 2015*

Il est séparé physiquement en deux secteurs. Le 1er est dédié à l'hydrolyse avec une température d'environ T = 65 °C et un temps de séjour (TDS) de 4 jours et le deuxième pour les autres étapes de la méthanisation avec une T = 55 °C et TDS = 16 jours.

L'introduction de l'intrant dans le 1er secteur se fait après un processus de chauffage dans une trémie chauffante et malaxante. La matière traverse une trappe de 70*70 cm pour passer dans le 2ème secteur. Le mélange de la matière se fait, dans les deux secteurs, par l'injection de biogaz comprimé comme dans le procédé Valorga mais avec une différence clé, représentée par l'utilisation de cheminées verticales, au lieu de diffuseurs. Ces cheminées traversent le plafond du réacteur, plongent dans la matière et se terminent à quelques centimètres du plancher. La réduction du nombre de sorties du biogaz par rapport au procédé Valorga a été compensée par le volume important de biogaz injecté dans chaque cheminée. Au-delà de cette compensation en volume, le regroupement du biogaz injecté dans un endroit précis crée une force importante, capable de mettre ce type de matière épaisse en mouvement. Le biogaz en sortie de cheminée heurte le plancher et forme un disque de biogaz qui remonte rapidement, emportant la matière au-dessus et produisant un mouvement représenté dans la **figure I.7**.

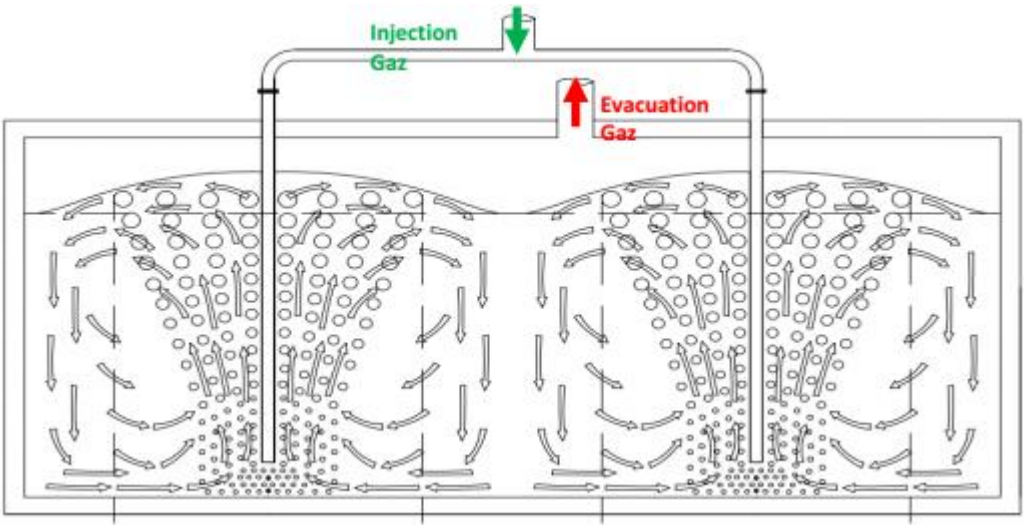


Figure I.7 *: Mouvement de matière lors de l'injection de biogaz dans le procédé Arkométha®.*
Source : Présentation salon biogaz Europe – Nantes le 19 mars 2015

Cette direction de biogaz représentée dans la **figure I.7** crée un mouvement convectif de la matière en forme de cylindre, représenté par des flèches dans la **figure I.7**, de plusieurs mètres de diamètre autour de la cheminée. Ce mouvement de brassage présente deux avantages :

- Réduire les zones mortes.
- Compartimenter le secteur lui-même afin d'arriver à séparer les trois étapes générées dans le 2ème secteur (acidogenèse, acétogenèse et méthanogenèse) sans avoir besoin de séparateurs physiques (parois).

La diminution progressive de la consistance des matériaux dès l'entrée jusqu'à la sortie montre l'intérêt d'avoir d'injections réglables et contrôlables. D'une part, elles doivent être assez efficaces pour mettre en mouvement la totalité de la matière dans le compartiment concerné et d'autre part, elles doivent être contrôlées pour ne pas mélanger les matières de deux compartiments voisins (**figure I.8**). Le contrôle des paramètres d'injection, volume et pression, du biogaz sont des éléments clés pour fournir un mélange certes efficace mais aussi contrôlé pour les matières dans le procédé Arkométha®.

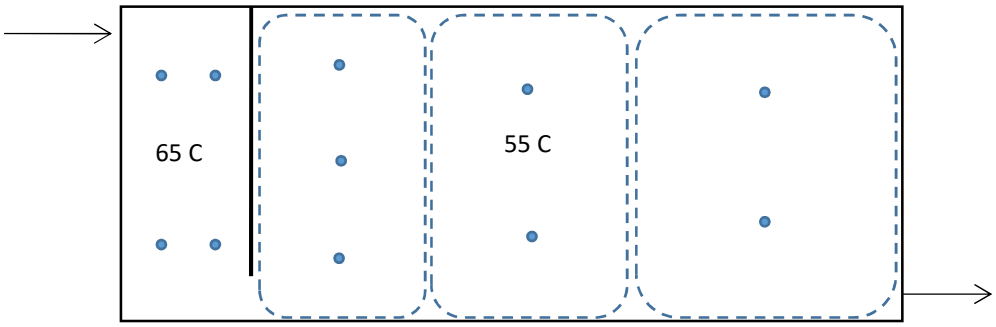


Figure I.8 : *Exemple de la distribution des cheminées en procédé Arkométha®. Les lignes pointillées représentent un exemple des limites souhaitées de chaque compartiment. Vue en coupe au niveau de la trappe.*

I.4.3. Problématiques du procédé Arkométha®

Le contrôle du mouvement de la matière dans le procédé Arkométha®, ou dans d'autres procédés de mélange de matières pâteuses, repose principalement sur la maîtrise de l'évolution de la structure physique et de la rhéologie des milieux en fonction des conditions physico-chimiques et thermiques. Ces éléments sont relativement méconnus dans un procédé de méthanisation de résidus agricoles en voie sèche. Les revues bibliographiques, détaillées dans chaque chapitre de ce manuscrit, montrent que les matériaux traités dans cette thèse tel qu'un mélange de fumier, lisier, ensilage, paille, etc… sont rarement étudiés pour eux-mêmes et encore moins dans le contexte de la méthanisation agricole, surtout à l'échelle industrielle.

Pour dépasser le seuil d'expérience actuel des opérateurs, nous voulons établir des connaissances novatrices sur la rhéologie des résidus agricoles et leurs mélanges pour contribuer à maîtriser les procédés de méthanisation hautement technologiques auxquels il est demandé d'assurer de hauts rendements en production de biogaz. La société Arkolia souhaite mettre en œuvre également de la modélisation numérique pour prédire les écoulements. Les mesures rhéologiques doivent donc servir à construire des lois de comportement rigoureuses des matériaux. Les mesures rhéométriques doivent être suffisamment contrôlées pour permettre la détermination des fonctions viscosimétriques afin de bâtir une loi de comportement. Les méthodes empiriques doivent être évitées.

I.5. Définition des termes

Lors de la thèse, plusieurs termes seront utilisés dont il est utile dès maintenant de donner la définition.

- **L'intrant** : c'est la matière qui entre dans la première phase du fermenteur. Il est constitué principalement :
    - de <u>lisier</u> : c'est un effluent agricole, mélange de déjections animales d'élevage (urines, excréments) et d'eau, dans lequel domine l'élément liquide. Il peut également contenir des résidus de paille en faible quantité.
    - de <u>fumier</u> : il s'agit d'un mélange de lisier et paille.
    - des <u>résidus agricoles</u> variables selon la saison, paille sèche, ensilage d'herbe ou de maïs (déchets lignocellulosiques partiellement fermentés à cause des conditions anaérobies lors du stockage), feuille des arbres, etc.
- **Le digestat** : c'est le produit résidu de la méthanisation, composé essentiellement de matières organiques non biodégradables (lignine), de matières minérales (azote, phosphore) et d'eau.
- **Brut :** c'est un adjectif que nous allons utiliser pour les matériaux non hachés.
- **La matière sèche (MS%) :** c'est le rapport entre la masse de l'échantillon sèche (105 °C, 24 heures) et la masse de l'échantillon humide avant le séchage.

I.6. Description physique et rhéologique des matériaux étudiés

Nous avons voulu rassembler en préambule les éléments clés et les analyses sur lesquelles reposent cette thèse. Notamment nous avons considéré nos matériaux comme des suspensions fibreuses concentrées de fortes granulométries. Grace à ce schéma et à la bibliographie sur les suspensions de fibres, nous avons pu orienter le travail et proposer des analyses pour comprendre nos résultats.

Les matériaux considérés dans cette thèse sont des mélanges de fumier, lisier, déchets agricoles et de l'eau. Ils sont composés principalement de :

- Matrice liquide : eau, urine, etc...
- Matière solide : qui peut être des :
    - Particules organiques solides fibreuses : paille, ensilage, etc...
    - Particules organiques solides non fibreuses (non végétales) : composées principalement des bactéries.
    - Minéraux : sable, cailloux, etc.
- Gaz : Air ou biogaz.

Dans cette thèse, deux types de matériaux vont être employés :

- Des matériaux prélevés du méthaniseur industriel « Napagèse » qui seront caractérisés dans leur état d'origine sans réduire la taille de leurs fibres. Ces matériaux sont généralement triphasiques mais de nature différente. L'intrant peut être composé de solide, de liquide et d'air. Il peut être chargé en fibres et végétaux au point que le milieu ne soit plus saturé en liquide. Le substrat, par contre, est composé de solide, de liquide et de biogaz distribué dans la suspension liquide + solide.
- Des matériaux prélevés des réacteurs de l'INSA utilisés par Maxime Dooms lors de son doctorat au laboratoire DEEP (Dooms, 2017). Ces échantillons ont subi un déchiquetage pour que la taille des fibres de ces matériaux soit adaptée aux dimensions des réacteurs de laboratoire. Ces matériaux sont généralement biphasiques au moment des mesures rhéométriques. Les intrants et les substrats sont composés de solide et liquide. Ils sont généralement saturés en liquide sans présence de biogaz. En effet, il n'y avait pas de

biogaz dans l'intrant car il n'était pas encore en fermentation. Il n'y avait pas non plus de biogaz dans les échantillons lors de leurs analyses rhéométriques. Pour cela, l'aspect gazeux n'est pas une problématique traitée dans cette thèse.

Au-delà de cette brève description, plusieurs caractéristiques vont gouverner l'orientation de la thèse :

- L'hétérogénéité, la nature épaisse et la forte concentration en fibres de taille importante

Les matériaux traités dans la thèse sont des suspensions fibreuses épaisses. Elles se présentent sous une forme pâteuse caractérisée par la présence d'un seuil d'écoulement. La présence de ce seuil d'écoulement va introduire également la problématique du glissement à la paroi, lors des mesures rhéométriques, qu'il va falloir maitriser.

Les observations visuelles des mélanges prélevés du site industriel de Napagèse montrent la présence d'agrégats de taille plus ou moins importante selon le type de matière : intrant ou digestat. Pour diminuer l'hétérogénéité spatiale de ces composants, Arkolia a mis en place une trémie mélangeuse. Malgré la présence de cette trémie, l'intrant et également le substrat possèdent des agrégats d'une taille de plusieurs centimètres. Cette taille sera prise en compte dans la thèse.

Dans les méthaniseurs industriels, les fibres possèdent des longueurs importantes avec une moyenne de l'ordre de plusieurs centimètres (**Figure I.9**). Par contre, ceux utilisés à l'INSA de Lyon possèdent des fibres avec 1 ou 2 cm de longueur moyenne après le déchiquetage (**Figure I.10**). Ces tailles centimétriques imposent des méthodologies spécifiques dans les caractérisations rhéologiques pour conserver raisonnablement les hypothèses des milieux continus afin d'avoir accès aux propriétés rhéologiques contrôlées de volume.

Figure I.9 : *Photographies du lisier pailleux (en haut à gauche), du fumier (en haut à droite) et de l'ensilage (en bas) utilisés à l'INSA lorsque leurs prélèvements de la ferme.*

Figure I.10 : *Photographie de l'ensilage sec après déchiquetage.*

Les méthodes utilisées actuellement pour caractériser ces matériaux sont généralement empiriques. Elles ne donnent pas accès aux propriétés rhéologiques de ces matériaux. (Devaux & Gaillard, 2006), (Projet AAP CAS DAR n°9109/9027) (Denoroy et al., 2011) ont cité la plupart de ces outils/méthodes dont les principales sont le fluidimètre, l'essai d'affaissement, le pénétromètre, la boîte de Casagrande pour mesurer l'angle de frottement interne, la Foëne et le tire-bouchon pour mesurer la force d'extraction d'un outil planté dans le tas de fumier, etc.

Quelques rares auteurs ont mesuré les propriétés rhéologiques des matériaux similaires :

- ✓ (Landry et al., 2004) ont utilisé une boîte de cisaillement pour mesurer l'angle de frottement interne des fumiers prélevés de plusieurs espèces d'élevage (bovin, montant, porc et volaille). Ils ont utilisé également une géométrie Couette à grande échelle (85 L) et à l'échelle de laboratoire (0,5 L) pour mesurer les propriétés d'écoulement de leurs fumiers. Le glissement aux parois n'était pas pris en compte dans le choix de leur géométrie ni dans les analyses de leurs résultats où ils n'ont pas traité le seuil d'écoulement.
- ✓ (Garcia-Bernet et al., 2011) ont utilisé un essai d'affaissement pour mesurer le seuil d'écoulement des biodéchets et des ordures ménagères résiduelles prélevés dans des méthaniseurs fonctionnant en voie épaisse.
- ✓ Plusieurs auteurs (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992) ; (Viamajala et al., 2009) ; (Wiman et al., 2011) ; (Tian et al., 2014), etc… ont mesuré les propriétés en écoulement des matériaux de structure proches des mélanges de lisier, fumier et déchets agricoles utilisés dans cette thèse. Ces auteurs ont utilisé un scissomètre ou une géométrie de Couette pour faire leurs mesures. Ils ont broyé leurs produits pour adapter la taille des particules solides à la taille d'entrefer de leurs outils rhéométriques. Si la nature de leurs matériaux est proche des matériaux de notre thèse, le broyage important et les changements structurels que cela engendrent les éloignent.

Il n'y a pas d'appareil capable de mesurer le seuil d'écoulement et les propriétés en écoulement (viscosité) des matériaux étudiés dans cette thèse à cause de la forte concentration en fibres de taille importante. Pour cela, une instrumentation spécifique doit être développée, ce qui est détaillé en chapitre II.

- la spongiosité des matériaux

Bien que le lisier, le fumier et les déchets agricoles soient des éléments standards dans les mélanges à méthaniser, ces éléments possèdent des variabilités. Par exemple le lisier varie d'un lisier liquide qui est peu pailleux avec une MS de 7% au lisier pailleux avec une MS d'environ 13%. C'est idem pour le fumier. Les résidus agricoles possèdent des variabilités plus notables à cause de la variation saisonnière depuis les pailles de blé très sèches jusqu'à l'ensilage d'herbes humide et partiellement fermenté.

Le caractère spongieux est important dans les particules lignocellulosiques à cause de leurs structures poreuses absorbant de l'eau. La distribution de l'eau sera prise en compte dans cette thèse.

La diversité importante de ces matériaux et leur caractère spongieux, qui est plus ou moins remarquable selon le constituant, nous imposent de trouver, au-delà de la MS, des paramètres pertinents pour caractériser ces matériaux. Cette problématique a été traitée dans le chapitre III.

- La séparation des phases

Dans ces mélanges, la phase liquide a tendance à se séparer de la phase solide notamment lors de cisaillement moyen ou fort. Cette problématique a été soigneusement explorée dans le chapitre IV.

I.7. Objectifs et plan de la thèse

Pour construire une base solide de la rhéologie des résidus agricoles en répondant aux contraintes imposées par ces matériaux et donner accès à des caractéristiques rhéologiques maîtrisées, nous avons décomposé notre travail en trois chapitres principaux où chacun prend une forme d'article et représente un projet d'article.

Le chapitre II sera consacré à la conception, l'étalonnage, la validation et la mise en service d'un Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS) capable de mesurer de manière contrôlée les propriétés rhéologiques des résidus agricoles utilisés à l'échelle industrielle, sans avoir besoin de réduire la taille des fibres. Dans ce chapitre nous détaillerons, tout d'abord, les contraintes imposées par les matériaux tels que la forte granulométrie des particules, le glissement aux parois, etc…. Un cahier des charges sera alors établi qui aboutira à retenir le principe d'un rhéomètre rotatif. Nous décrirons les théories des méthodologies rhéométriques adoptées : seuil d'écoulement par scissométrie et viscosité par l'analogie de Couette. Puis, nous détaillerons les étapes de l'étalonnage et de la validation des mesures du RGDS. Enfin, nous donnerons quelques exemples des mesures effectuées par le RGDS sur le site du méthaniseur de Napagèse construit par Arkolia Energies.

Dans le **chapitre III** nous traiterons la problématique de la pertinence du choix du taux de matière sèche (MS) comme paramètre de contrôle des propriétés rhéologique des résidus agricoles. En effet, les exploitantes des méthaniseurs constatent que la MS n'est pas un paramètre pertinent mais sans pouvoir vraiment prouver ce constat par des mesures. Ils ont besoins de connaître le(s) paramètre(s) pertinent(s) qui leurs permettraient de maîtriser la rhéologie de leurs produits. C'est dans ce sens-là que nous allons avancer. Nous montrerons dans ce chapitre le rôle déterminant de la distribution de l'eau dans ces suspensions concentrées en matières végétales. On montrera le rôle de la spongiosité de ces matériaux et notamment de la composante lignocellulosique. Ensuite, nous détaillerons la méthode de mesure des teneurs d'eau liée et d'eau libre par un essai de séchage et les techniques rhéomètriques pour mesurer le seuil d'écoulement par scissométrie. Nous montrerons comment déterminer les concentrations critiques qui séparent les régimes semi-concentré, concentré, milieu triphasique non saturé en liquide jusqu'à un milieu granulaire humide et leurs relations au seuil d'écoulement. Plusieurs modèles empiriques seront proposés pour représenter l'évolution du seuil en fonction de la MS ou d'un autre paramètre pertinent.

Dans le **Chapitre IV,** pour compléter l'étude du seuil d'écoulement au chapitre III, l'évolution des propriétés visqueuses de ces matériaux sera abordée en fonction des paramètres opératoires modifiables pour optimiser l'aspect biologique du procédé Arkomètha®. Parmi ces paramètres, nous porterons nos efforts sur la longueur des fibres, la température et le taux de matière sèche. Ne disposant pas à ce moment du RGDS en phase de construction, un autre outil rhéométrique dit Couette large entrefer anti glissement (CLEAG), a été développé pour s'adapter aux tailles des produits hachés grâce à une méthodologie exposée dans ce chapitre. Chaque paramètre opératoire fera l'objet d'une étude spécifique appuyée sur une étude bibliographique. Des lois empiriques seront proposées pour représenter l'évolution du seuil d'écoulement et de la viscosité apparente en fonction de ces paramètres opératoires.

Le **Chapitre V** sera dédié à la synthèse des résultats les plus marquants, leurs applications industrielles et proposera des perspectives futures à court et long termes.

I.8. Références bibliographiques

Achkari-Begdouri, A., & Goodrich, P. R. (1992). Rheological properties of Moroccan dairy cattle manure. *Bioresource technology*, *40*(2), 149–156.

Bolzonella, D., Innocenti, L., Pavan, P., Traverso, P., & Cecchi, F. (2003). Semi-dry thermophilic anaerobic digestion of the organic fraction of municipal solid waste: focusing on the start-up phase. *Bioresource technology*, *86*(2), 123–129.

Bolzonella, D., Pavan, P., Mace, S., & Cecchi, F. (2006). Dry anaerobic digestion of differently sorted organic municipal solid waste: a full-scale experience. *Water Science and Technology*, *53*(8), 23–32.

Denoroy, P., Dieudé-Fauvel, E., Damay, N., Le Roux, C., Gogibus12, J., Lejars14, L., … Valé1, M. (s. d.). Améliorer la caractérisation des effluents d'élevage par des méthodes et des modèles innovants pour une meilleure prise en compte agronomique Butler F., Heurtaux M., Trochard R. 2, Decoopman B. 3, Dezat E. 3, Loussouarn A. 3, Thuriès L. 4, Charpiot A. 5, Lorinquer E. 5, Levasseur P. 6, Aubert C. 7, Machet J.-M. 8, Morvan T. 9, Parnaudeau V. 9. Consulté à l'adresse https://www6.inra.fr/ciag/content/download/5242/40916/file/Vol34-22-Butler.pdf

Devaux, J.-F., & Gaillard, F. (2006). Étude d'outils simplifiés pour la caractérisation physique des fumiers et composts. *Ingénieries-EAT*, (48), p–37.

Dooms, M (2017). *Etude des compartiments d'hydrolyse et de méthanogenèse d'un procédé de méthanisation en voie épaisse multiétapes phasé en température : le procédé Arkométha ®,* Thèse de doctorat, INSA de Lyon.

Forster-Carneiro, T., Pérez, M., & Romero, L. I. (2008). Influence of total solid and inoculum contents on performance of anaerobic reactors treating food waste. *Bioresource technology*, *99*(15), 6994–7002.

Garcia-Bernet, D., Loisel, D., Guizard, G., Buffière, P., Steyer, J. P., & Escudié, R. (2011). Rapid measurement of the yield stress of anaerobically-digested solid waste using slump tests. *Waste management*, *31*(4), 631–635.

Landry, H., Laguë, C., & Roberge, M. (2004). Physical and rheological properties of manure products. *Applied Engineering in Agriculture*, *20*(3), 277.

Projet AAP CAS DAR n°9109/9027 consulté à l'adresse http://www.rmt-fertilisationetenvironnement.org/moodle/pluginfile.php/1810/mod_resource/content/3/Materiel_de_caracterisation.pdf

Tian, L., Shen, F., Yuan, H., Zou, D., Liu, Y., Zhu, B., & Li, X. (2014). Reducing agitation energy-consumption by improving rheological properties of corn stover substrate in anaerobic digestion. *Bioresource technology*, *168*, 86–91.

Viamajala, S., McMillan, J. D., Schell, D. J., & Elander, R. T. (2009). Rheology of corn stover slurries at high solids concentrations–effects of saccharification and particle size. *Bioresource technology*, *100*(2), 925–934.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and bioengineering*, *108*(5), 1031–1041.

Chapitre II : Rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS)

Résumé

Il est essentiel de disposer d'une instrumentation capable de mesurer, de manière contrôlée, les propriétés rhéologiques des résidus agricoles pour conduire et optimiser le processus du mélange dans un procédé de méthanisation en voie sèche piston. Le développement de cette instrumentation a été traité dans ce chapitre en prenant en compte les multiples contraintes imposées par ces matériaux comme l'hétérogénéité, la taille centimétrique des agrégats et des fibres, la forte teneur en fibre, etc… Un rhéomètre rotatif de grandes dimensions, nommé RGDS, a été conçu, étalonné et mis en service sur un site industriel. Des outils de scissométrie ont été validés avec succès pour mesurer le seuil d'écoulement. L'analogie de Couette a été utilisée pour analyser quantitativement les données de couple / vitesse de rotation pour en extraire les courbes de contraintes de cisaillement / taux de cisaillement à l'aide de géométries type mélangeurs. Un fluide newtonien a été utilisé pour effectuer l'étalonnage pour déterminer les coefficients de passage dans l'analogie de Couette. Expérimentalement, l'analyse de Couette a été appliquée avec succès sur un fluide à seuil modèle connu. Enfin, plusieurs exemples de caractérisations des propriétés rhéologiques des résidus agricoles sur le site industriel de Napagèse d'Arkolia Energies ont été présentés dans ce chapitre.

Table des matières du chapitre II

Chapitre II : Rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS) 45
Table des matières du chapitre II 47
Notations et symboles du chapitre II 49
II.1. Introduction 51
II.2. Cahier des charges scientifique et technique : 54
II.3. Principe retenu et conception de l'appareil 56
II.4. Equations pour les mesures rhéométriques 63
II.4.1. Principe de mesure de seuil par scissomètre 63
II.4.2. Analogie de Couette 65
II.4.2.1. Principe d'analogie de Couette 65
II.4.2.2. Détermination du régime laminaire pour un mélangeur de proximité 67
II.4.2.3. Influence de la rhéofluidification dans l'analogie du Couette 68
II.5. Etalonnage du RGDS 70
II.5.1. Etalonnage de l'ensemble couplemètre, paliers et axe 70
II.5.2. Validation de mesure de seuil par scissométrie 72
II.5.3. Validation des mesures de viscosité par l'analogie de Couette 74
II.5.3.1. Détermination de k_τ et $k\gamma v$ 74
II.5.3.2. Détermination du régime laminaire des géométries utilisées 76
II.5.3.3. Validation de k_τ et de $k\gamma v$ 78
II.6. Rhéologie des matières agricoles avec le RGDS 82
II.6.1. Mesure de seuil par scissométrie 83
II.6.1.1. Seuil d'écoulement de l'intrant 83
II.6.1.2. Seuil d'écoulement de digestat 85
II.6.2. Mesure de la viscosité par une pale à ailettes 90° 86
II.7. Conclusions et perspectives 89
II.8. Références bibliographiques 90
Annexe II.1 : Mode d'emploi RGDS 94
AII.1.1. Présentation du logiciel RGDS : 94
AII.1.2. La préparation et le déroulement de test 96
AII.1.2.1. Préparations du récipient et de la procédure : 96
AII.1.2.2. Le déroulement du test : 97
AII.1.2.3. Vidange et nettoyage : 98

AII.1.3. Consignes de sécurités : 98
Annexe II.2 : les protocoles suivis lors d'essais de scissométrie de l'argile avec le rhéomètre de laboratoire et le RGDS 99
Annexe II.3 : calculs des incertitudes du taux de cisaillement et des contraintes de cisaillement lors des mesures par le RGDS 101
Annexe II.4 : Protocole suivi pour la préparation du Carbopol d'étalonnage à concentration massique de 1,5 % 105

Notations et symboles du chapitre II

RGDS Rhéomètre de Grande Dimension pour les Substrats.

MS taux de matière sèche.

MV taux de matière volatile.

C couple (N.m).

K constante de cisaillement d'une pale de scissométrie (m^3).

τ contrainte de cisaillement (Pa).

τ_0 seuil d'écoulement (Pa).

D diamètre de la pale mobile (m).

H hauteur de la pale mobile (m).

H_0 hauteur non immergée de la pale de scissométrie (m).

R_i rayon interne équivalent (m).

R_e rayon du récipient cylindrique (m).

$\dot{\gamma}$ taux de cisaillement (gradient de vitesse) (s^{-1}).

k consistance du fluide ($Pa.s^n$).

n indice de rhéofluidification.

v_θ vitesse tangentielle (m/s).

L longueur de tête mobile du Couette ou de l'agitateur (m).

r rayon géométrie cylindrique (m).

N vitesse de rotation (rad/s).

A constante couple/vitesse de rotation (N.m.s).

η viscosité du fluide newtonien (Pa.s).

$\dot{\gamma}_v$ taux de cisaillement apparent (s^{-1}).

$k_{\dot{\gamma}_v}$ constante du taux de cisaillement apparent. (-).

k_τ constante de la contrainte de cisaillement ($Pa.N^{-1}.m^{-1}$).

P puissance (W).

N_p nombre de puissance.

Re nombre de Reynolds pour les fluides newtonien.

Re_n nombre de Reynolds modifié pour les fluides non newtonien.

TDS temps de séjour des biomasses dans le fermenteur (jour).

T température (°C).

HB Herschel-Bulkley.

II.1. Introduction

La méthanisation en voie sèche en mode continu est un procédé en cours de développement, notamment pour le traitement de résidus agricoles. Les matériaux utilisés dans le procédé qui concernent notre étude sont des mélanges de fumiers pailleux avec des déchets agricoles. Les milieux lors de cette méthanisation et leur évolution rhéologique en fonction des conditions physico-chimiques sont méconnus et encore peu étudiés à l'échelle industrielle.

Pour avancer dans l'optimisation de la formulation des mélanges par rapport aux processus biologiques de traitement ou dans l'optimisation du dimensionnement des méthaniseurs, il est essentiel de caractériser les propriétés rhéologiques de ces mélanges agricoles à méthaniser. La première de ces caractéristiques est le seuil de contrainte de ces suspensions concentrées mais également la viscosité au-delà de ce seuil d'écoulement. En effet la méthanisation en mode continu n'est pas un processus statique qui pourrait être caractérisé uniquement par le seuil d'écoulement, mais un processus dynamique du point de vue hydrodynamique lors du malaxage, du transport et du brassage. Pour établir une loi de comportement qui puisse être utilisée dans le dimensionnement des méthaniseurs ou introduite dans la modélisation numérique pour simuler le comportement des matériaux lors des opérations de brassage par exemple, la caractérisation rhéométrique doit se mener de façon contrôlée du point de vue de la mécanique des milieux continus et des principes de la viscosimétrie. Ces contraintes nécessitent d'éliminer les techniques empiriques non contrôlées et d'obtenir des valeurs absolues des paramètres rhéométriques et pas relatives.

La rhéométrie spécifique à développer doit prendre en compte deux caractéristiques des matériaux.

<u>La nature hétérogène, concentrée en fibres de forte granulométrie :</u> Les produits traités industriellement sont un mélange de fumier, de lisier, des déchets agricoles, des pailles, d'ensilages et de l'eau. Ces mélanges sont complexes, hétérogènes, concentrés en matière solide fibreuse. Ces matériaux sont biphasiques (liquide-solide) voire triphasiques à cause de la présence de biogaz ou d'air. Ils sont notamment composés des agrégats et des particules fibreuses de plusieurs centimètres de long. Ces tailles centimétriques imposent des contraintes dans les caractérisations rhéologiques pour conserver raisonnablement les hypothèses de milieu continu afin d'avoir accès aux propriétés rhéologiques de volume. L'hétérogénéité et la teneur

importante en fibre imposent également la nécessité d'utiliser un volume relativement important, plusieurs litres voire plusieurs dizaines de litres, lors des mesures.

La nature pâteuse des fluides : Les matériaux traités se présentent sous une forme pâteuse caractérisée par la présence d'un seuil d'écoulement. La présence de ce seuil d'écoulement va introduire la problématique du glissement à la paroi qu'il va falloir maitriser. De plus, les matériaux, notamment les intrants, ont des consistances relativement élevées. Cette consistance élevée et la nécessité d'utiliser un volume important lors des mesures vont introduire la nécessité d'avoir une motorisation de puissance adaptée.

La revue bibliographique montre l'existence de quelques rares rhéomètres de grandes dimensions :

- ceux destinés au béton avec des entrefers importants :

- (Lanos & Estellé, 2009) ont conçu un rhéomètre de grandes dimensions équipé d'un scissomètre pour mesurer le seuil et la viscosité. Ses caractéristiques sont : un diamètre du récipient de 35 cm, un entrefer de 10 cm, le couplemètre a une capacité de 100 N.m. La pale de scissométrie n'est pas adaptée pour mesurer la viscosité de nos produits. En effet, cette pale ne peut être utilisée que pour mesurer le seuil d'écoulement de nos matériaux. Les manipulations effectuées en utilisant un scissomètre, pour mesurer la viscosité, ont montré qu'en appliquant une vitesse de rotation importante les particules solides fibreuses migrent vers l'extérieur en ne laissant que du liquide entre les lames. De fait, la vitesse de rotation importante conduit à séparer les phases et donc le produit ne reste pas homogène et les mesures effectuées dans ce cas ne sont pas représentatives.

- RheoCAD 500, RheoCAD 450 et RheoCAD 420 (Daoud, 2013). Les caractéristiques de ses rhéomètres sont : couplemètre (0-10 ± 0,0001 N.m), volume du récipient 11-37 L. Ils sont équipés d'un scissomètre pour mesurer le seuil ou d'une pale en hélice pour mesurer la viscosité tout en préservant l'homogénéité du béton. Plusieurs entrefers existent selon le modèle du rhéomètre. Ce rhéomètre est d'un prix élevé. La forme de la pale hélice n'est pas adaptée aux consistances des produits étudiés. La forme des pâles a été optimisée pour le béton. La cellule de mesures rhéométrique n'est pas thermostatée. Le rhéomètre n'est pas conçu pour travailler dans une ferme. De plus, le

chargement et le déchargement des produits à caractériser ne sont pas aisés, ce qui représente des contraintes particulières pour nos produits.

- Un rhéomètre construit au Laboratoire Rhéologie et Procédés pour accéder aux caractéristiques rhéologiques des boues torrentielles. Il est monté sur une remorque pour se déplacer en montagne et il est mu par un moteur thermique. Il est équipé d'une géométrie Couette avec un intervalle de 20 cm entre les deux cylindres (Coussot, 1993). Le volume de l'échantillon est de 0,5 m^3. L'inconvénient principal de ce rhéomètre par rapport à nos besoins est le type de géométrie. Elle est faite pour des matériaux à granulométrie centimétrique mais moins consistants que les matériaux de la présente étude. La mise en place de l'échantillon ne réclame pas un soin particulier lors de son chargement qui se fait pour les boues torrentielles par pelletage.

Nous constatons que les rhéomètres existants ne permettent pas de mesurer le seuil d'écoulement et la viscosité des produits à caractériser. **La caractérisation rhéologique des déchets végétaux étudiés exige** donc le développement d'une instrumentation adaptée pour répondre aux exigences étendues du cahier des charges de notre étude : mesurer de manière correcte et avec une bonne approximation les propriétés rhéologiques de volume de l'échantillon malgré les nombreuses difficultés posées par le matériau (hétérogénéité, taille importante des fibres, nature pâteuse, bi ou tri phasique et fraction élevée en pailles, …).

Ce chapitre est donc consacré à la mise au point d'un rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS) à travers la caractérisation du seuil d'écoulement, par scissométrie, et la viscosité, à partir de l'analogie de Couette, pour des résidus agricoles utilisés en méthaniseur industriel.

Il est décomposé selon les étapes suivantes :

- L'établissement du cahier des charges scientifique et technique.
- Le principe retenu et les caractéristiques principales de l'appareil.
- Les équations des mesures rhéométriques.
- L'étalonnage du rhéomètre.
- Les mesures rhéométriques des produits agricoles sur le site industriel de Napagèse.

II.2. Cahier des charges scientifique et technique :

La caractérisation rhéométrique des matériaux de notre étude se confronte aux contraintes suivantes :

- Gamme de force ou de couple importante et très variable : les matériaux étudiés peuvent avoir des consistances très variables ce qui impose d'avoir une gamme de mesure étendue. D'autre part, les fortes consistances attendues et les grands volumes de produits mesurés imposent la mise en œuvre de capteur capable de mesurer des valeurs élevées.

- Motorisation et contrôle du déplacement : il est nécessaire de mettre en œuvre une motorisation qui peut travailler avec précision dans une gamme de vitesse étendue pour des mesures de seuil d'écoulement et de la viscosité. Il faut également que, dès le démarrage, le moteur impose très rapidement une vitesse stable sous forte charge. D'autre part, le déplacement (donc les déformations de l'échantillon) doit pouvoir être imposé et contrôlé pour obtenir des mesures fiables. Ces contraintes imposent une motorisation de grande qualité.

- Glissement à la paroi : les échantillons sont de fortes consistances (seuils d'écoulement a priori élevés) et de taille de particules importantes. Il est connu que dans ces conditions il se crée sous cisaillement un glissement à la paroi perturbateur de la mesure de viscosité (Tabuteau et al., 2004) ; (Wiman et al., 2011) et (Stickel et al., 2009). Ce phénomène doit être totalement contrôlé et évité.

- Forte granulométrie : les particules des matériaux étudiés ont des tailles d'agrégats et des particules solides fibreuses relativement élevées : typiquement celles utilisées dans les réacteurs d'INSA lors du doctorat de Maxime Dooms (Dooms, 2017) sont (après broyage) à 1 cm en moyenne alors que celles des échantillons prélevés des sites industriels peuvent avoir une taille de 5 cm en moyenne avec un diamètre moyen des fibres inférieur à 0,5 cm. Pour obtenir des grandeurs rhéologiques qui sont représentatives des propriétés de volume des matériaux, il faut que la taille des particules des matériaux soit beaucoup plus petite que l'entrefer du rhéomètre où se déroule le cisaillement. Cette condition nous oblige à utiliser des larges entrefers ce qui nécessite de travailler avec des quantités de produits relativement élevées donc des grands volumes pour le récipient de mesures. Le **tableau II.1** représente des exemples tirés de la bibliographie du rapport entrefer des géométries de mesures / longueur des fibres

(entrefer / L_{fibre}) considéré par des auteurs travaillant sur la rhéologie des suspensions fibreuses.

Tableau II.1 : *rapport (entrefer / L_{fibre}) utilisé dans les études bibliographiques traitant de suspensions fibreuses*

Auteur	Géométrie Couette	Géométrie plan-plan	Scissomètre
(Sepehr, Ausias, & Carreau, 2004)		15 mm / 2,5 mm	
(Thalen & Wahren, 1964)		10,1 mm / 2,5 mm	
Thalen & Wahren, 1964)	> 1		
(Swerin, Powell, & Ödberg, 1992)	10 mm / 2,5 mm		
(Dalpke & Kerekes, 2005)			50 mm / 3 mm
(Bennington, Kerekes, & Grace, 1990)	20 mm / 3 mm		

L'analyse du **tableau II.1** montre que le rapport entrefer/ L_{fibre} doit être supérieur à 1 et qu'il est favorable de maximiser ce rapport autant que possible. Il faut donc prendre au moins un rapport entrefer/ L_{fibre} = 1.

- Géométries et récipients adaptés : les matériaux étudiés sont hétérogènes avec des composants de densités et de tailles différentes. Lors de la mise en place de l'échantillon dans le rhéomètre, pendant les mesures et sous cisaillement, nous cherchons à respecter l'état original des matériaux traités. Pour cela, il faut des géométries et des configurations qui permettent : de mettre en place aisément des produits pailleux consistants, de contrôler le tassement de l'échantillon à la mise en place, de ne pas créer un effort axial excessif pouvant détruire les pales et les capteurs, de pouvoir maintenir la matière en suspension lors de la rotation de la pale au moment de la mesure de viscosité.

- Températures contrôlées : les échantillons doivent être testés dans des récipients thermostatés à des températures contrôlées entre 35 et 72°C, correspondant aux températures maximales et minimales des résidus agricoles dans le fermenteur.

- Conditions spécifiques d'utilisation : l'appareil doit pouvoir être utilisé sur le « terrain » en usine comme à la ferme. Cet environnement impose de multiples contraintes : faciliter le chargement/déchargement des échantillons, mise en sécurité de l'opérateur, lavage facile du récipient de mesure, étanchéité à l'eau des éléments électriques, protections des éléments sensibles (couplemètre, paliers), etc.

II.3. Principe retenu et conception de l'appareil

Le principe retenu est un rhéomètre rotatif. La configuration de mesure est constituée d'un cylindre extérieur (cuve ou récipient) fixe contenant le matériau et d'une géométrie rotative (pale) à l'intérieur. Le cisaillement de l'échantillon est généré principalement entre le cylindre extérieur et la géométrie rotative. La mesure du couple sur la géométrie intérieure donne accès à la contrainte de cisaillement et la mesure de la vitesse de rotation donne accès au taux de cisaillement.

Ce rhéomètre est dénommé « RGDS » pour Rhéomètre de Grandes Dimensions pour Substrats

La **figure II.1** montre le rhéomètre (RGDS) conçu par le Laboratoire Rhéologie et Procédés. Les **figures II.2** et **II.3** montrent le RGDS lors de son étalonnage au Laboratoire et lors de son fonctionnement sur le site industriel de Napagèse respectivement.

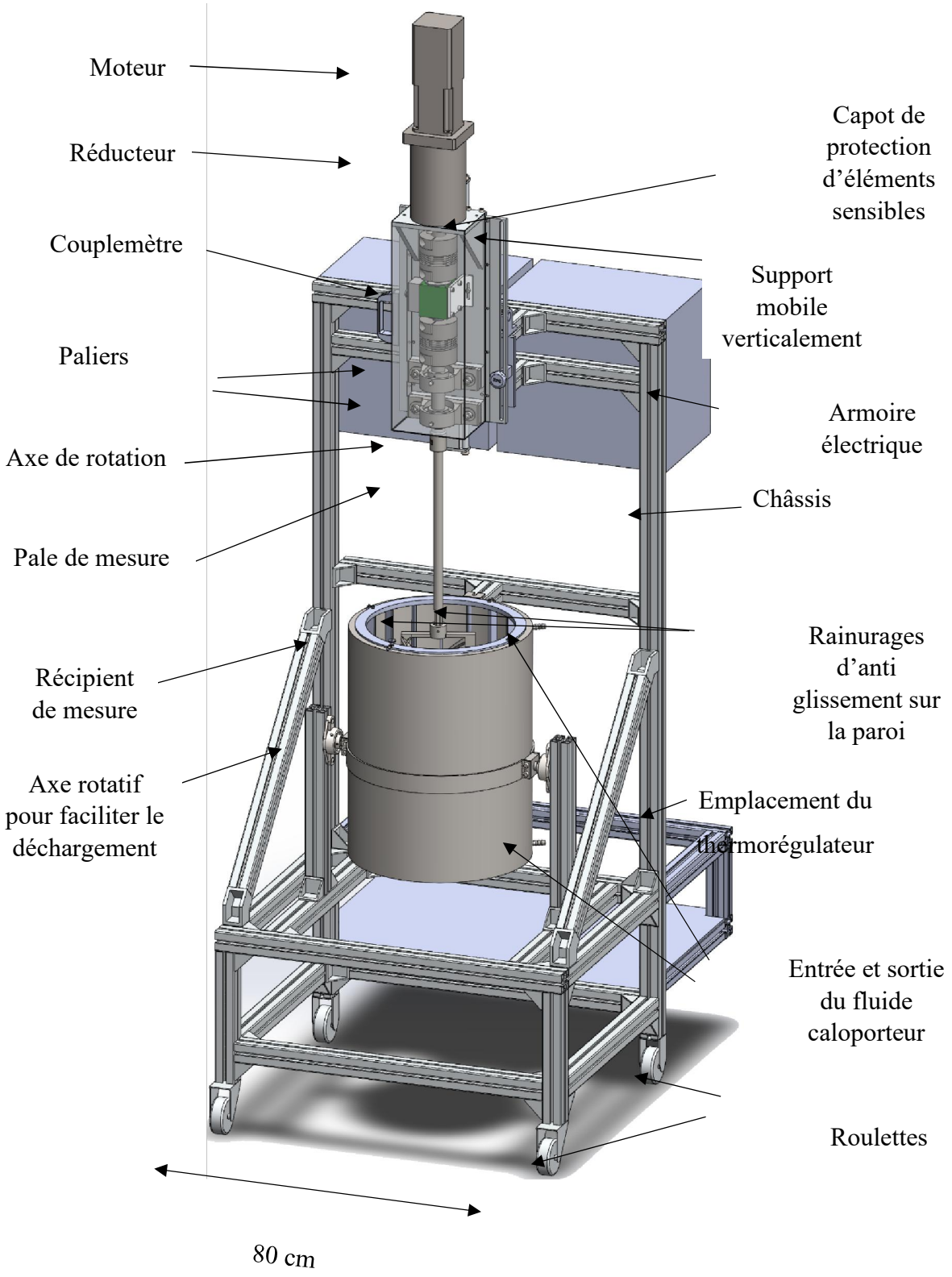


Figure II.1 : *Illustration du Rhéomètre de Grande Dimension pour les Substrats (RGDS)*

Figure II.2 : *Photographie du RGDS lors de l'étalonnage de la grande pale de scissométrie en utilisant une pâte d'argile.*

Figure II.3 : *Photographie du RGDS lors de mesure de viscosité d'un digestat sur le site industriel de Napagèse*

Trois types de géométries ont été conçus et fabriqués. Une géométrie de type scissomètre appelée aussi « *vane test* » pour mesurer le seuil et deux autres géométries : pale hélice et pale à ailettes pour mesurer la viscosité (**Figure II.4**).

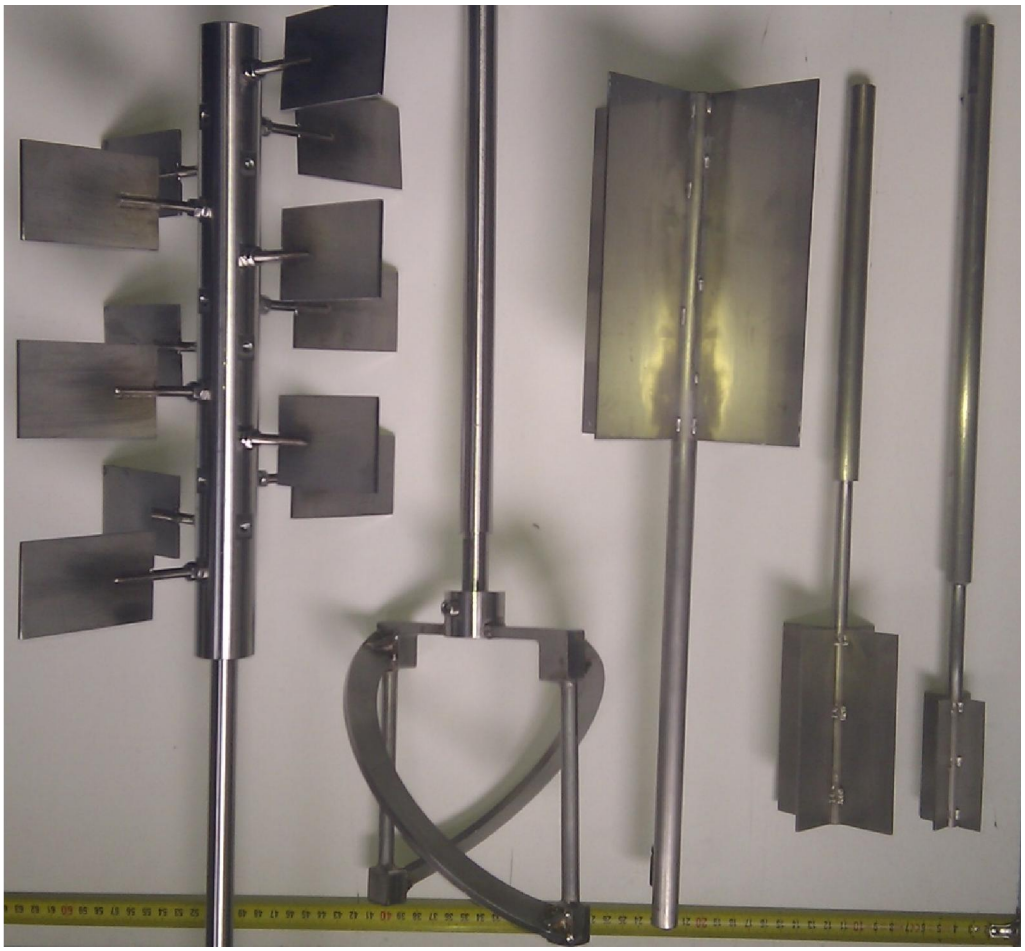


Figure II.4 : *Photographie des différentes géométries utilisées au RGDS : De gauche à droite : pale à ailettes, pale hélice et les trois pales de scissomètre.*

Les principales caractéristiques du RGDS sont :

- Motorisation puissante et précise : le moteur sélectionné de chez Mitsubishi (Réf : HG-JR1534) associé à un amplificateur (Réf : MR-J4-200A4) développe une vitesse de rotation jusqu'à 150 tr/min sous forte charge ainsi qu'un contrôle précis de 0,2 %. Il développe une puissance de 1,5 kW en triphasé.

- Un réducteur de chez Mitsubishi (Réf : PE120-020/HG-JR1534) peut augmenter la vitesse de rotation jusqu'à 300 tr/min.

- Mesure de couple étendue : le couplemètre de marque Burster et de modèle (8661-5100-V1010) sélectionné permet 2 gammes de mesure 0-10 mN et 0-100 mN avec une précision de 0,1 % de la pleine échelle.

- Un système anti-glissement : le glissement à la paroi du cylindre extérieur est évité par un rainurage de la paroi de profondeur de 1 ou 2 cm selon la taille du récipient. Les fibres et les gros éléments des matériaux étudiés sont piégés par les pales et les rainures (**Figure II.5**).

Figure II.5 : *Le grand récipient avec la lame à ailettes (90°) et le système d'anti glissement sur la paroi.*

- Récipients de grands volumes : 3 récipients de 1,7, 7,5 et 54 litres ont été conçus pour s'adapter à la quantité d'échantillon.

- Pales de scissométrie : trois pales de scissométrie ont été conçues pour les trois récipients.

- Pale hélice (**Figure II.4** au milieu) : Cette géométrie est destinée à mesurer la viscosité des produits qui possèdent peu de particules solides qui pourraient sédimenter lors du test. Cette géométrie assure l'homogénéité de l'échantillon pendant les mesures de viscosité. La forme de cette pale force le matériau à rester en suspension pendant la

rotation en assurant un déplacement vertical du matériau. La forme peu encombrante du ruban assure une bonne circulation du fluide hétérogène et un renouvellement de l'échantillon dans l'entrefer de mesure.

- Pale à ailettes (**figure II.4** à gauche) : elle sera utilisée pour mesurer la viscosité des produits ayant une fraction volumique importante de particules solides fibreuses de grandes dimensions. Dans ce cas, il ne faut pas générer un mouvement vertical afin de ne pas compacter ce produit contre le plancher ou les parois. Cette géométrie génère donc un mouvement coaxial horizontal si les ailettes sont verticales (position 90°). Elle peut de plus générer un mouvement vertical léger si les ailettes sont inclinées (position 45°). Ce dernier cas peut être choisi pour les produits qui peuvent subir une perte d'homogénéité légère lors du test.

- Les dimensions de différents récipients et pales utilisées avec le RGDS sont données dans le **tableau II.2**.

Tableau II.2 *: Les dimensions des récipients et des pales du RGDS*

Géométrie/récipient	Hauteur (cm)	Diamètre (cm)
Petit récipient	16	10
Moyen récipient	24	20
Grand récipient	50	37
Petite pale scissomètre	8	4
Moyenne pale scissomètre	12	8
Grande pale scissomètre	20	16
Pale hélice	16	16
Pale à ailettes	32,5	25,5

Les récipients sont thermostatés par la circulation, dans une double enveloppe, d'un fluide caloporteur chauffé et mis en mouvement par un thermorégulateur Hubert (MPC 220 b) de 2 kW (**Figure II.1**). Le réglage de la température se fait grâce aux boutons de commande sur le thermorégulateur. Le thermorégulateur est fixé à l'arrière du châssis.

- L'appareil est adapté aux conditions de terrain : il est monté sur des roulettes, le récipient contenant l'échantillon est monté sur un axe de rotation pour minimiser les efforts lors du chargement/déchargement et pour faciliter le lavage, les éléments sensibles sont capotés, (**Figure II.1**).

- L'ensemble moteur, réducteur, couplemètre, les accouplements et la pale sont fixés sur un support mobile verticalement grâce à trois ressorts fixés sur le châssis. Ces trois ressorts sont choisis afin de minimiser les efforts de l'opérateur lors du levage ou de l'abaissement de la pale (**Figure II.1**).

- L'appareil est piloté par un logiciel développé par le Laboratoire Rhéologie et Procédés. Les modes d'emploi du RDGS et de son logiciel sont détaillés en **Annexe II.1**.

II.4. Equations pour les mesures rhéométriques

Dans ce chapitre nous avons montré les principes et les équations des méthodologies rhéométriques utilisées : la technique de scissomètre pour mesurer le seuil d'écoulement et l'analogie du Couette pour mesurer la viscosité.

II.4.1. Principe de mesure de seuil par scissomètre

Les rhéomètres rotatifs font partie des moyens employés pour la mesure des propriétés rhéométriques des matériaux fluides ou pâteux. L'association rhéomètre et scissomètre est largement utilisée pour mesurer le seuil d'écoulement des suspensions. En anglais cette technique est appelée « vane test ». Plusieurs auteurs ont utilisé cette méthode pour mesurer le seuil d'écoulement de fumier (Amiri, Arabhosseini, & Kianmehr, 2012), (Zafari & Kianmehr, 2012), de pate de tige de maïs (Stickel et al., 2009) de biomasse lignocellulosique concentrée en tige de maïs (Samaniuk et al., 2011) et de boues prétraitées (Wiman et al., 2011).

La technique employée pour mesurer le seuil d'écoulement par un scissomètre met en œuvre la lente rotation d'une pale de plusieurs lames (minimum 2) dans un échantillon et la mesure du couple résultant en fonction du temps (**Figure II.6**). Le couple maximum et les dimensions de la pale utilisée permettent d'évaluer le seuil d'écoulement.

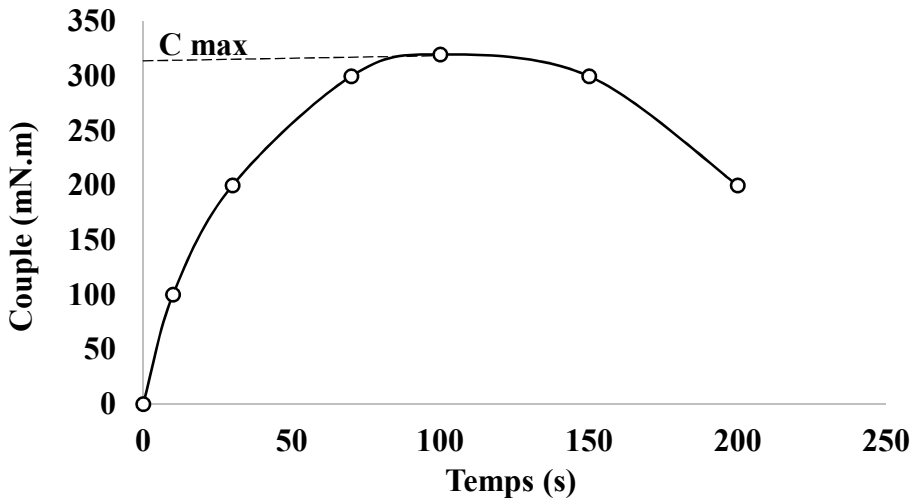


Figure II.6 : *Exemple d'évolution du couple mesuré par le RGDS en fonction du temps lors d'un essai de scissométrie sur des déchets agricoles.*

Les hypothèses considérées pour convertir le couple en contrainte sont détaillées dans plusieurs articles (Liddel & Boger, 1996) ; (Keentok & Tanner, 1982) ; (Keentok et al., 1985) ; (Barnes & Carnali, 1990) ; (Keentok et al.,1985) ; (Alderman et al.1991) ; (Avramidis & Turian,

1991) ; (James, Williams, & Williams, 1987) ; (Nguyen Quoc Dzuy & Boger, 1983) ; (Nguyen Q. Dzuy & Boger, 1985). Ces auteurs ont établi la formule suivante pour calculer le seuil d'écoulement

$$\tau_0 = \frac{C_{max}}{K} \qquad Eq\ 1$$

K est la constante de cisaillement de la pale définie par les équations **Eq.2** ou **Eq.3** ci-dessous selon le cas de submersion de la pale dans la matière à caractérisée. Où τ_0 est le seuil d'écoulement (Pa) ; C_{max} le couple maximum mesuré (Nm) ; D le diamètre de la pale (m) et H la hauteur de la pale (m).

Deux cas peuvent se présenter :

Premier cas : la pale est totalement immergée dans le matériau à tester afin que les effets de la paroi et du plancher du récipient contenant l'échantillon soient considérés comme négligeables. La **figure II.7** représente une géométrie permettant de réduire les effets de parois et ceux du plancher (Nguyen Q. Dzuy & Boger, 1985) et autorisant ainsi l'application de l'équation **Eq.2**.

$$K = \frac{\pi . D^3}{2} . \left(\frac{H}{D} + \frac{1}{3}\right) \qquad Eq\ 2$$

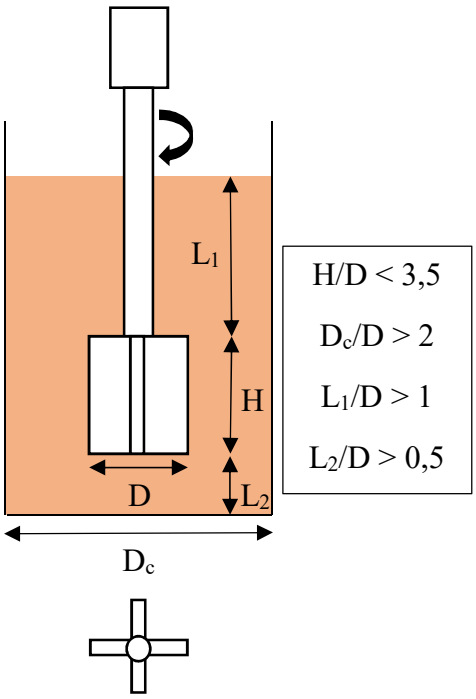


Figure II.7 : *Schéma de principe de fonctionnement d'une pale à quatre lames*

Deuxième cas : la pale est partiellement noyée dans la matière. L'équation **Eq 3** doit être appliquée (Sun & Gunasekaran, 2009)

$$K = \frac{\pi . D^3}{2} . \left(\frac{H - H_0}{D} + \frac{1}{6} \right) \qquad Eq\ 3$$

Où H_0 est la hauteur non immergée (m).

II.4.2. Analogie de Couette

Dans les géométries classiques, l'accès au taux et à la contrainte de cisaillement à partir de la vitesse appliquée et du couple mesuré est assez simple car l'entrefer entre la surface fixe et le rotor est connu. Cela n'est pas le cas pour des géométries non classiques comme les géométries utilisées dans ce travail. L'analogie Couette est utilisée afin d'analyser quantitativement les données du couple et de la vitesse du rotor afin d'en extraire la courbe de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement.

II.4.2.1. Principe d'analogie de Couette

L'analogie de Couette a été développée par (Aït-Kadi et al., 2002), (Lionel Choplin, 2000) et (Guillemin et al., 2008) sur la base des travaux de (Bousmina et al., 1999).

Elle consiste à déterminer le rayon interne équivalent R_i du cylindre interne « de Couette » ayant la même longueur L que l'agitateur pour lequel, à vitesse angulaire de rotation N donnée, le couple C généré dans le récipient cylindrique de rayon R_e est identique à celui généré dans le système avec agitateur. R_i peut ensuite être utilisé pour calculer le taux de cisaillement. (**Figure II.8**) (L. Choplin & Marchal, 2007).

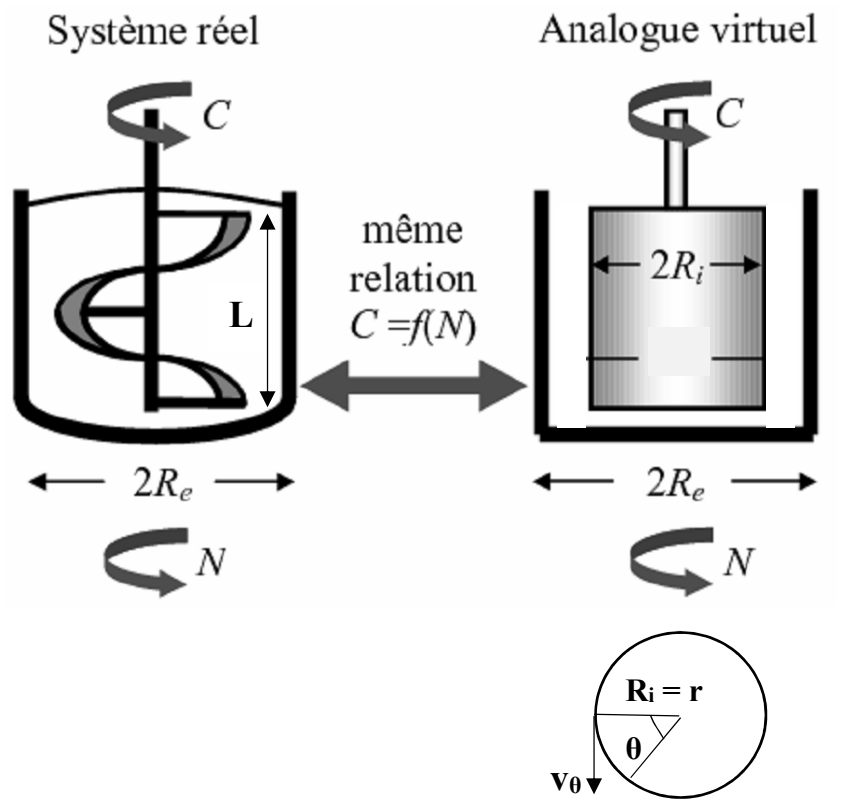


Figure II.8 : *Principe de l'analogie de Couette (L. Choplin & Marchal, 2007)*

Les hypothèses faites sur l'écoulement laminaire d'un fluide incompressible en géométrie Couette sont les suivantes (Guillemin et al., 2008):

- L'écoulement à la surface libre reste horizontal. Les effets perturbateurs liés à la contrainte normale sont donc négligeables. Ceci implique que la composante verticale de la vitesse est nulle.
- Les effets d'écoulement dans le fond du réservoir sont négligeables.
- Le fluide est homogène et les effets d'inertie sont négligeables.

A partir de ces hypothèses, (Guillemin et al., 2008) ont développé les équations servantes à calculer R_i en utilisant un fluide newtonien. Nous citons ici uniquement les équations finales utilisées dans nos calculs en utilisant un fluide newtonien de viscosité η.

$$R_i = \sqrt{\frac{C\,{R_e}^2}{8\,\pi^2\,L\,{R_e}^2\,\eta\,N+C}} \qquad \textit{Eq 4}$$

Le taux de cisaillement apparent peut être calculé en utilisant l'équation ci-dessous

$$\dot{\gamma}_v = k_{\dot{\gamma}_v}\,.N \qquad \textit{Eq 5}$$

Où la constante $k_{\dot{\gamma}_v}$ (-) est donnée par :

$$k_{\dot{\gamma}_v} = \frac{2\,\pi\,R_i}{R_e - R_i} \qquad Eq\ 6$$

Cette constante est la constante d'Otto-Metzner, bien connue dans le domaine de l'agitation. La relation ci-dessus montre que $k_{\dot{\gamma}_v}$ est indépendante du comportement du fluide. Cette observation est expérimentalement vérifiée par plusieurs auteurs (Mitsuishi & Hirai, 1969) ; (Nagata, 1975) ; (Rieger & Novak, 1974).

La contrainte de cisaillement est calculée à partir des mesures du couple et en utilisant l'équation ci-dessous :

$$\tau = k_\tau\,.\,C \qquad Eq\ 7$$

Où k_τ est donné par l'équation :

$$k_\tau = \frac{\eta\,(k_{\dot{\gamma}_v}\,N)}{C} \qquad Eq\ 8$$

Donc, pour trouver les deux coefficients $\boldsymbol{k_{\dot{\gamma}_v}}$ et k_τ, nous avons uniquement besoin d'effectuer des mesures du couple (C) pour chaque vitesse de rotation (N) appliquée à un fluide newtonien de viscosité (η) connue.

II.4.2.2. Détermination du régime laminaire pour un mélangeur de proximité

Dans les hypothèses d'application d'analogie de Couette, le régime d'écoulement doit rester laminaire (pas d'effet de turbulence). Dans ce régime laminaire, le nombre de puissance (N_p) est inversement proportionnel à Re ($N_p \approx 1/Re$) (Maingonnat et al., 2008), (G. Delaplace et al., 2000). Cette courbe commence à dévier de cette loi dès que le régime commence à être turbulent. Donc, pour délimiter la validité de chaque géométrie on trace la courbe de puissance (N_p) qui est le tracé du nombre de puissance (N_p) en fonction du nombre de Reynolds (Re_n).

Le nombre de puissance peut être calculé quel que soit le fluide en utilisant les équations ci-dessous (Zhang et al., 2008) ; (Maingonnat et al., 2008) :

$$N_p = \frac{P}{\rho\,N^3\,D^5} \qquad Eq\ 9$$

$$P = N.C \qquad Eq\ 10$$

P : la puissance consommée (W), C : le couple (N.m) et N la vitesse de rotation de la pale mobile en (rad/s).

Le nombre de Reynolds des fluides non-newtonien, appelé également le nombre de Reynolds modifié, peut être calculé pour les fluides non-newtoniens en utilisant l'équation :

$$Re_n = \frac{\rho\,(N^{2-n}\,D^2)}{k} \qquad Eq\ 11$$

ρ : la masse volumique du fluide (kg/m^3), n : indice de rhéofluidification, k : consistance du fluide (Pa.s^n) et D : diamètre du mobile d'agitation (m).

Plus loin, la **figureII.16** montre les résultats obtenus dans ce travail.

II.4.2.3. Influence de la rhéofluidification dans l'analogie du Couette

Les études de l'agitation des fluides rhéofluidifiants par des mobiles de proximité ont déjà été faites par plusieurs auteurs. Les données les plus pertinentes sont dues à (Takahashi et al., 1984). Dans le cadre de ces études, les fluides rhéofluidifiants sont divisés en deux parties :

- *Fluides faiblement rhéofluidifiants (0,45 < n < 0,75) :* (Takahashi et al., 1984) ont effectué de nombreuses expériences en utilisant une pale hélice et en changeant les variables géométriques comme l'entrefer, la hauteur immergée, le nombre de rubans dans la pale et l'indice de rhéofluidification (n) entre 0,45 et 0,75. Ils ont montré que $k_{\dot{\gamma}_v}$ est à peu près indépendant de la valeur de n dans la gamme utilisée. Elle peut donc être considérée constante. (Guillaume Delaplace, Guerin, Leuliet, & Chhabra, 2006) ont confirmé ces observations par calcul. Leurs résultats sont illustrés dans la **figure II.9** où nous observons que $k_{\dot{\gamma}_v}$ est peu indépendant de la valeur de n pour 0,45 < n < 0,75.

- *Fluides fortement rhéofluidifiants (n < 0,4) :* (Guillaume Delaplace et al., 2006) ont montré également par calcul que, dans ce cas, les valeurs de $k_{\dot{\gamma}_v}$ sont dépendante de n (**Figure II.9**).

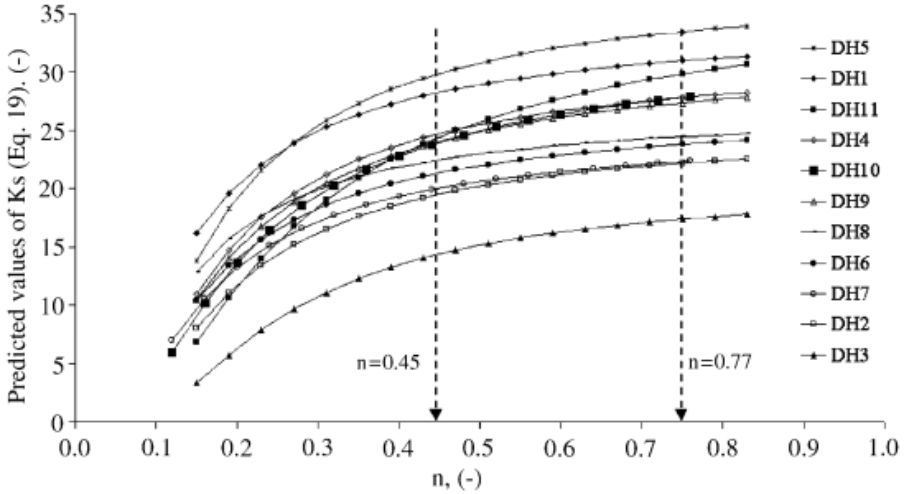


Figure II.9 : *Evolution de* $\mathbf{k}_{\dot{\gamma}_v}$ *(appelé ici Ks) obtenu suite au calcul (Guillaume Delaplace et al., 2006), en fonction de n.*

Caractérisation de la pale hélice et le système d'agitation sont : 0,12 > d > 0,103 ; N_r *= 2 ; 2,15 > s/d > 0,55 ; 0,223 > w/d > 0,084 ; 0,123 > c/d > 0,033) utilisé par (Takahashie al., 1984). Symboles sont utilisés pour distinguer plusieurs systèmes d'agitation par pale hélice.*

D'autres auteurs ont trouvé également des résultats similaires (**Figure II.10**).

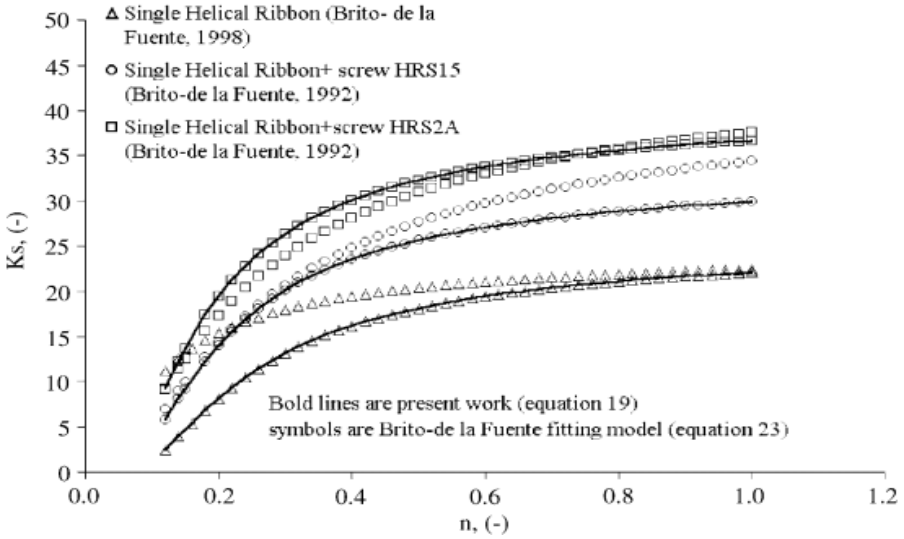


Figure II.10 : *Evolution de* $k_{\dot{\gamma}_v}$ *(appelé ici* K_s*) en fonction de n pour une pale hélice. (Brito de la Fuente et al., 1992) , (La Fuente et al., 1998). Cette figure est retirée de l'article* (Guillaume Delaplace et al., 2006)

Les **figures II.9** et **10** montrent que $k_{\dot{\gamma}_v}$ devient peu indépendant de n pour n > 0,4. Pour étalonner les géométries types mélangeurs (hélice et à ailettes), il faut donc utiliser un fluide rhéofluidifiant avec n ≥ 0,4 pour avoir des valeurs de k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$ à peu près constantes en fonction de n.

II.5. Etalonnage du RGDS

L'étalonnage du RGDS a été fait en plusieurs étapes :

- Etalonnage de l'ensemble couplemètre, paliers et axe.
- Validation de mesure de seuil par scissométrie en utilisant un fluide d'étalonnage de seuil connu.
- Validation des mesures de la viscosité par l'analogie du Couette.
    - Détermination, en utilisant un fluide newtonien, des constantes de transfert :
        - La constante $k_{\dot{\gamma}_v}$: donne accès au taux de cisaillement à partir de la vitesse de rotation.
        - La constante k_τ : donne accès à la contrainte de cisaillement à partir du couple mesuré.
    - Détermination des régimes laminaires des géométries utilisés.
    - Validation de $k_{\dot{\gamma}_v}$ et k_τ par mesure des propriétés rhéologiques d'un fluide de type Herschel Bulkley aux propriétés connues.

II.5.1. Etalonnage de l'ensemble couplemètre, paliers et axe

Première étape : Il s'agit d'un étalonnage statique sans pale. Tout d'abord, un système de poulie a été utilisé pour appliquer un couple connu sur l'axe de rotation. Les deux gammes de couplemètre ont été testées de 0 à 10 N.m (**Figure II.11-A**) puis de 0 à 100 N.m (**Figure II.11-B**).

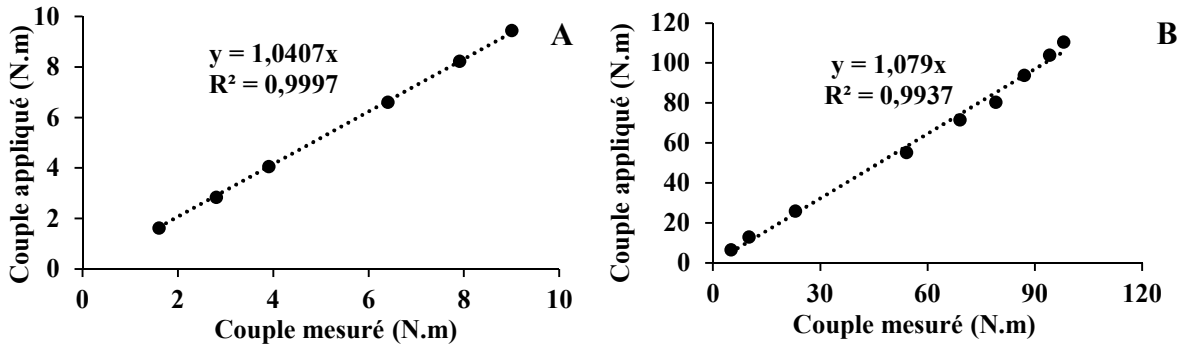


Figure II.11 : *Couple mesuré et celui appliqué pour la gamme entre 0 et 10 N.m (A) et entre 0 et 100 N.m (B).*

Les équations affichées sur la **figure II.11** montrent une incertitude des mesures d'environ 4 % pour la gamme entre 0 et 10 N.m et d'environ 8 % pour la gamme entre 0 et 100 N.m. Nous supposons que cet écart entre le couple mesuré et celui appliqué vient de l'incertitude de notre système de validation. Nous proposons donc de n'appliquer aucune formule de correction.

Deuxième étape, pour connaître la marge d'erreur des mesures du couple liées au frottement des paliers lors de la rotation d'axe en fonction des vitesses appliquées, nous avons effectué des mesures du couple mètre lors de la rotation de l'axe à vide (sans pale) en appliquant des vitesses de rotation croissantes de 0 jusqu'à 250 tr/min (**Figure II.12**). Cette figure montre que les mesures de couple subissent des fluctuations en fonction du temps. Pour cela, Nous avons noté les deux valeurs extrêmes des couples enregistrés pour chaque vitesse appliquée. Ces valeurs ont servi à calculer l'incertitude totale lors des mesures (**Figure II.13**). Cette figure montre que l'incertitude augmente en augmentant la vitesse de rotation.

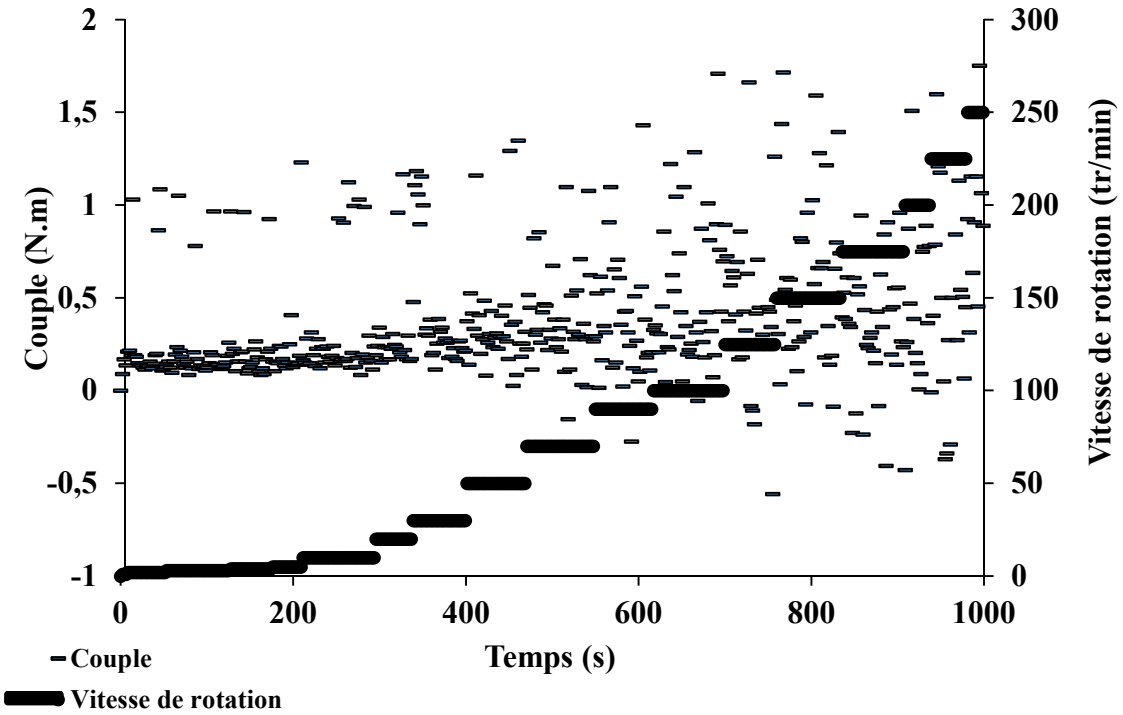


Figure II.12 : *oscillation du couple lors de la rotation à vide en appliquant plusieurs vitesses*

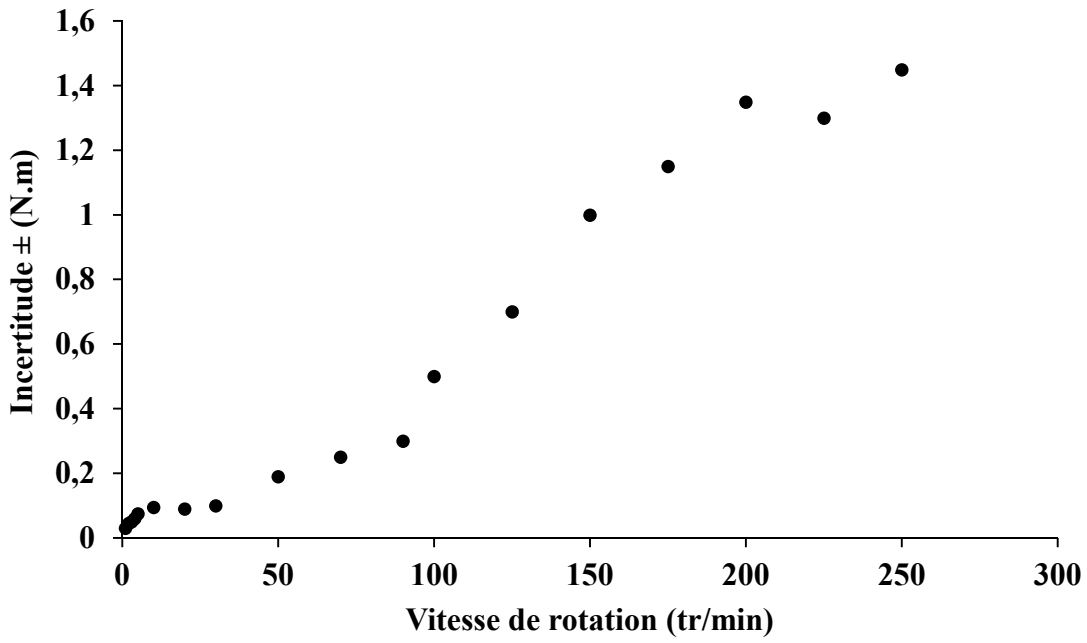


Figure II.13 *: Incertitude des mesures liée au frottement des paliers en fonction des vitesses appliquées*

Cette incertitude doit être régulièrement vérifiée. Elle dépend de la qualité de l'alignement axe/couplemètre qui peut se modifier dans le temps sous les efforts.

II.5.2. Validation de mesure de seuil par scissométrie

Le but de cette étape est de valider les mesures de seuil par scissométrie en utilisant le RGDS. La validation des mesures est faite pour les trois pales de scissomètre et dans les trois récipients correspondants. Un fluide à seuil modèle a été sélectionné. Le seuil du fluide modèle a été déterminé avec précision par un rhéomètre de laboratoire (DHR3). Puis le seuil d'écoulement du fluide modèle a été mesuré avec le RGDS. La comparaison entre les résultats obtenus avec les deux appareils a permis de valider les mesures obtenues avec le RGDS.

Comme fluide modèle, nous avons utilisé une suspension aqueuse d'argile naturelle blanche de marque 'Solargil', référence « Modelage Argile naturelle couleur blanc » par paquet de 10 kg. Ces suspensions d'argile ne sont ni thixotropes ni gonflantes. L'argile initiale qui possède la consistance maximale a été utilisée lors de test sur la petite et la moyenne pale. Pour valider la grande pale, il était nécessaire de diluer l'argile pour réduire sa consistance afin de ne pas dépasser la gamme du couplemètre. Donc, 5,5 % d'eau a été ajoutée à la suspension

initiale d'argile. L'ensemble a été mélangé, au laboratoire 3SR, en utilisant un mélangeur des fluides pâteux "Réf : France Machine type M150" (**figure II.14**) afin d'obtenir un fluide homogène.

Figure II.14 : *Mélangeur des fluides pâteux "Réf : France Machine type M150" au laboratoire 3SR*

Dans cette étape d'étalonnage, les récipients du RGDS ont été remplis totalement, les pales ont été totalement immergées et le test a été effectué en respectant les conditions optimales représentées dans la **figure II.7**.

Un rhéomètre de laboratoire de modèle DHR3 (Discovery Hybrid Rheometer) de chez TA instruments a été utilisé pour mesurer le seuil d'écoulement des deux suspensions d'argile utilisée. Le couple maximal autorisé avec le DHR3 est de 0,2 N.m et il est équipé d'un scissomètre de diamètre 10 mm et de hauteur 19 mm. Il permet de mesurer la contrainte de cisaillement en réponse au gradient de cisaillement imposé. La température de l'échantillon lors de l'essai est d'environ 15 °C. Les mesures ont été répétées 2 fois lors d'essai par DHR3 et 1 fois lors d'essai par RGDS.

Les protocoles suivis lors des essais de scissométrie par les deux appareils sont détaillés en **annexe II.2**.

Les résultats obtenus sont affichés dans le **tableau II.3** avec l'incertitude liée à la précision des mesures sur le RGDS sachant que l'incertitude liée à la précision du DHR3 peut être négligée dans la gamme des contraintes mesurées :

Tableau II.3 : *Résultats des mesures du seuil d'écoulement de suspensions argile par DHR3 et RGDS*

Pale utilisée	Seuil par DHR3 (Pa)			Seuil par RGDS (Pa)
	1er essai	2ème essai	Ecart-type	
Petite	26110	25090	2 %	24225 ± 130
Moyenne	27040	24960	4 %	26600 ± 16
Grande (mélange dilué)	6560	6560	0 %	6000 ± 3

Nous observons que les seuils obtenus suite aux deux mesures par DHR3 sont proches. Leur variation est entre 0 et 4%. Cela peut être justifié par la variabilité de l'argile et la mise en place de l'échantillon.

Nous notons également que les valeurs obtenues suite aux mesures par RGDS sont très proches des valeurs obtenues par DHR3. Leur variation est entre 2 et 8,5 %. Nous avons considéré que ces valeurs sont acceptables pour ce type d'appareil et ce type des matériaux. Le RGDS équipé des pales de scissométrie a été donc validé pour la mesure des seuils d'écoulement.

II.5.3. Validation des mesures de viscosité par l'analogie de Couette

Dans ce chapitre, nous avons présenté nos travaux dans l'ordre suivant :

- Détermination de k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$
- Détermination du régime laminaire des géométries utilisées.
- Validation des valeurs obtenues de k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$

II.5.3.1. Détermination de k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$

Pour déterminer les deux coefficients k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$, nous avons effectué des mesures du couple en fonction de la vitesse appliquée sur un fluide newtonien : du glucose pur, acheté chez Nigay, et chauffé à 40 °C. Sa viscosité a été mesurée par un rhéomètre de laboratoire (DHR3) en utilisant une géométrie cône-plan et en conditions contrôlées (température contrôlée, huilage des

surfaces libres pour empêcher l'évaporation de l'eau). La viscosité mesurée était de 78 ± 16 Pa.s.

Les mesures des couples en fonction de la vitesse de rotation ont été effectuées pour la pale hélice et pour la pale à ailettes en deux positions pour les ailettes à 45° et à 90°.

Les calculs sont effectués dans l'ordre suivant pour chaque pale :

1- Calculer R_i pour chaque N en utilisant l'équation **Eq 4**.
2- Calculer $k_{\dot{\gamma}_v}$ pour chaque R_i en utilisant l'équation **Eq 6**.
3- Calculer la moyenne des $k_{\dot{\gamma}_v}$
4- Calculer k_τ pour chaque $k_{\dot{\gamma}_v}$ à partir de l'équation **Eq 8**.
5- Calculer la moyenne des k_τ.

Les résultats obtenus sont représentés dans la **figure II.15**.

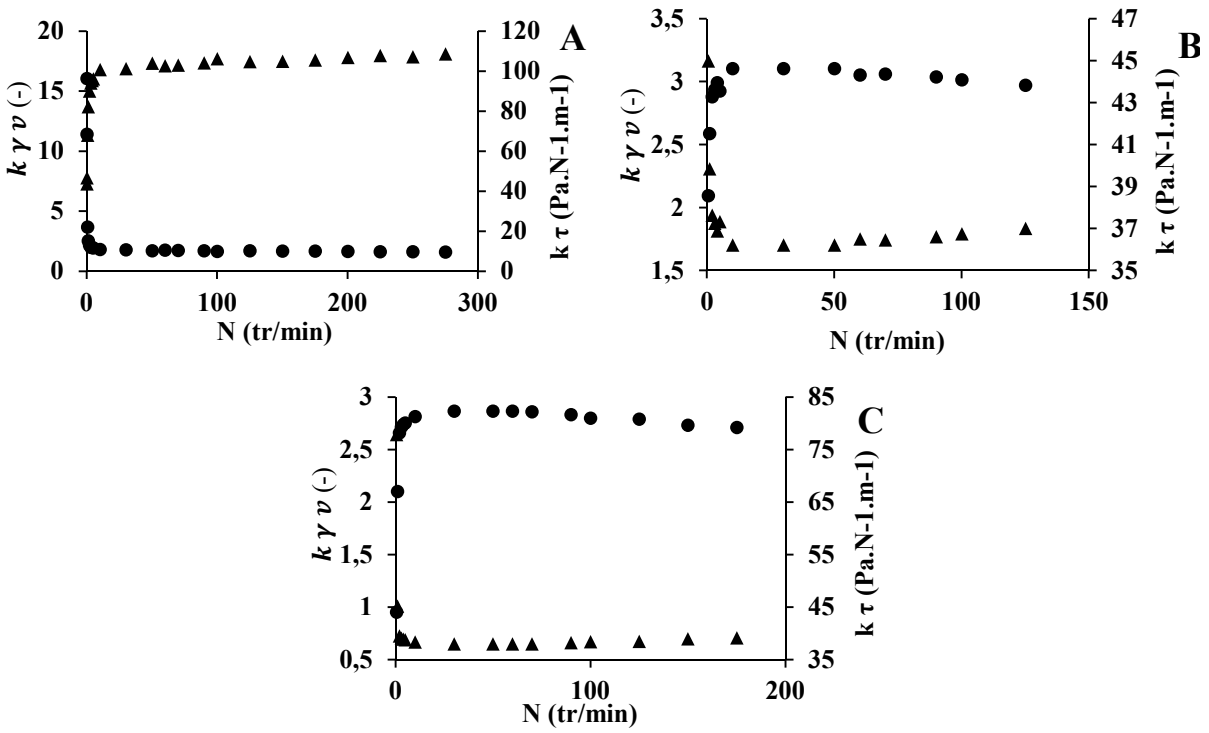


Figure II.15 *: Evolutions de* $\mathbf{k}_{\dot{\gamma}_v}$ *(●) et* k_τ *(▲) en fonction de N.*
Mesures effectuées en utilisant un fluide newtonien (du glucose pure à 40 °C) par A : la pale hélice, B : la pale à ailettes à 90° et C : la pale à ailettes à 45°.

La figure ci-dessus montre que les valeurs k_τ et de $k_{\dot{\gamma}_v}$ de chaque pale deviennent à peu près constantes à partir d'une vitesse de rotation N = 5 tr/min environ.

Le moteur utilisé dans le RGDS a une vitesse maximale de 300 tr/min. Théoriquement, la vitesse minimale qu'on peut appliquer avec précision avec ce moteur est de 1 % de sa vitesse maximale donc environ 3 tr/min. L'incertitude des vitesses appliquées augmente en baissant la vitesse de rotation du moteur. Cela peut expliquer les valeurs de k_τ et de $k_{\dot{\gamma}_v}$ obtenues à faible vitesse. Pour cela, les vitesses prises en compte dans les calculs des k_τ et de $k_{\dot{\gamma}_v}$ sont celles supérieures à 5 tr/min.

Le **tableau II.4** montre les valeurs moyennes des coefficients k_τ et $k_{\dot{\gamma}_v}$ avec leurs incertitudes. Les calculs de ces incertitudes sont détaillés en **Annexe II.3**.

Tableau II.4 *: Valeurs moyennes de k_τ et de $\mathbf{k}_{\dot{\gamma}_v}$ pour la pale hélice et celle à ailettes*

Pales utilisées	$\boldsymbol{k_{\dot{\gamma}_v}}$ **(-)**	$\boldsymbol{k_\tau}$ **(Pa.N^{-1}.m^{-1})**
Hélice	1,73 ± 0,26	104,4 ± 10,1
À ailettes (90°)	3,11 ± 0,48	36,5 ± 2,9
À ailettes (45°)	2,88 ± 0,42	38,3 ± 3

II.5.3.2. Détermination du régime laminaire des géométries utilisées

Pour connaître les limites hydrodynamiques de l'utilisation des pales du RGDS, nous avons représenté en **figure II.16** la courbe de puissance de nos pales.

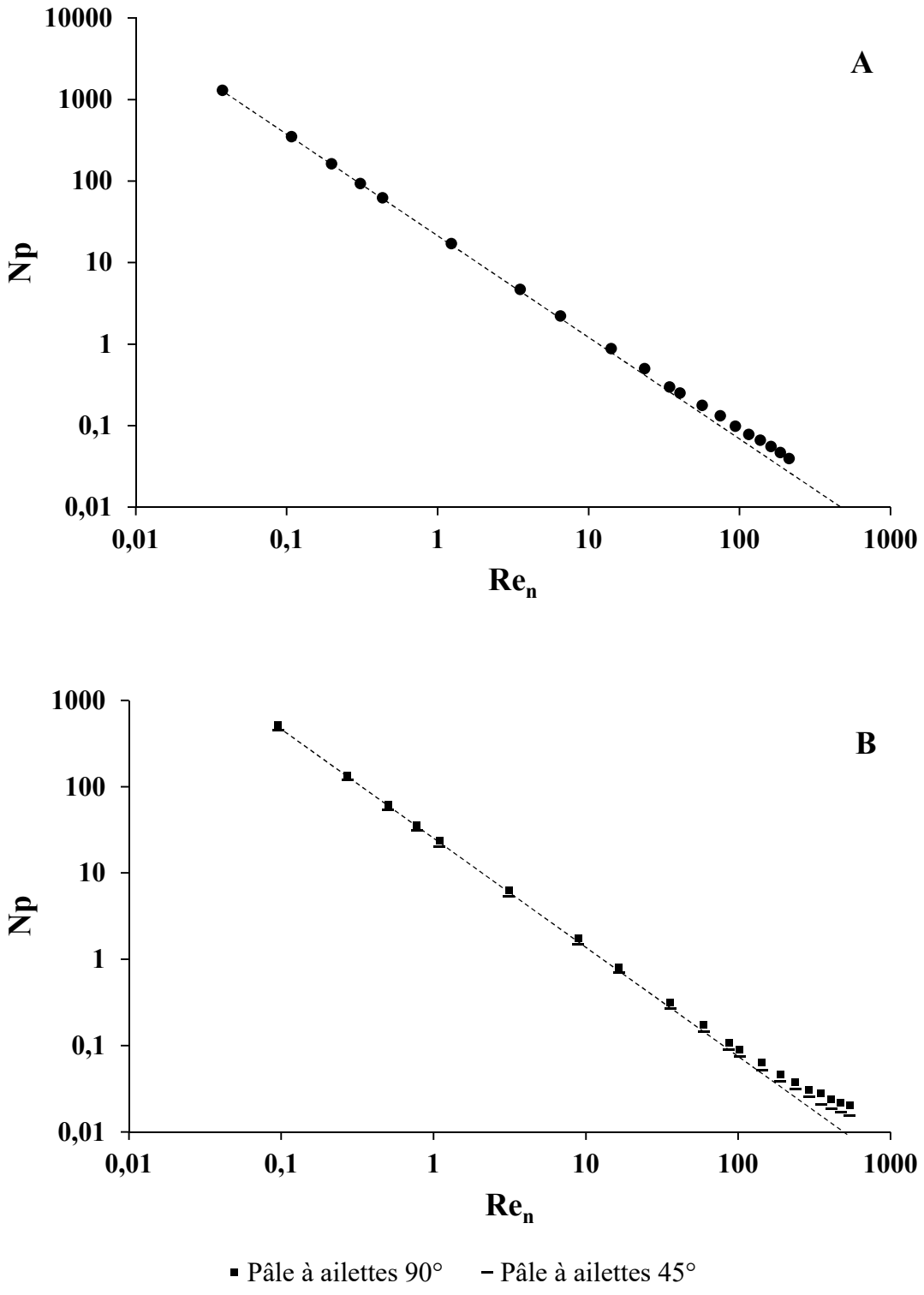


Figure II.16 : *Np en fonction de Re_n lors des mesures sur de Carbopol par la pale à hélice (A) et la pale à ailettes (B)*

Comme nous avons expliqué en paragraphe **II.4.2.2**, N_p est inversement proportionnel à Re ($N_p \approx 1/Re$) dans un régime laminaire. Cette courbe commence à dévier de cette loi dès que le régime commence à être turbulent.

La **figure II.16** montre que la limite entre le régime d'écoulement purement laminaire et le régime d'écoulement transitoire n'est pas facile à déterminer nettement. Nous proposons que cette transition soit proche d'une valeur de Reynolds critique de 70 pour la pale à ailettes où N est environ égal à 100 tr/min et $\dot{\gamma}$ est d'environ 20 s^{-1}, et d'une valeur de 56 pour la pale hélice où N est environ égal à 125 tr/min et $\dot{\gamma}$ est d'environ 15 s^{-1}. Ces valeurs représentent les limites d'utilisation des pales dans un régime laminaire.

II.5.3.3. Validation de k_τ et de $k_{\dot{\gamma}_v}$

Pour valider l'étalonnage effectuée en utilisant l'analogie de Couette et valider donc les deux constantes trouvées, nous allons comparer les propriétés rhéologiques d'un fluide modèle de type Herschel Bulkley mesurées par le RGDS avec ses mesures de référence. En premier lieu, ce fluide modèle sera caractérisé en utilisant un rhéomètre de laboratoire (DHR3) équipé par une géométrie plan-plan qui assure des mesures correctes des contraintes de cisaillement en fonction du taux de cisaillement. Dans un deuxième temps, la courbe d'écoulement de ce fluide modèle sera mesurée avec le RGDS. Les mesures obtenues avec chaque appareil seront comparées.

Les revues bibliographiques détaillées en paragraphe **II.4.2.3** montrent qu'il faut utiliser un fluide ayant un indice de rhéofluidification $n \geq 0{,}4$. Pour cela, nous avons utilisé un gel de Carbopol possédant un $n > 0{,}4$. Nous avons préparé soixante litres de Carbopol 940 à une concentration de 1,5 g/L et puis nous avons ajouté de la soude pour gélifier le fluide afin d'atteindre un $n > 0{,}4$. Les étapes de préparation sont présentées dans l'**annexe II.4**. Le Carbopol gel obtenu est un fluide transparent, non thixotrope et largement utilisé en mécanique des fluides à seuil. (Piau, 2007) a bien détaillé ses caractéristiques.

Son comportement rhéologique peut être modélisé en utilisant le modèle d'Herschel–Bulkley (HB) qui s'écrit ci-dessous sous une forme unidimensionnel

$$\tau = \tau_0 + k\,\dot{\gamma}^n \qquad \textit{Eq 12}$$

Où, τ est la contrainte de cisaillement (Pa), τ_0 est le seuil d'écoulement (Pa), $\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement (gradient de vitesse) (s^{-1}), k est la consistance du fluide ($Pa.s^n$) et n est l'indice de rhéofluidification.

Après la préparation, les propriétés de cisaillement ont été mesurées en utilisant 2 appareils :

- Le rhéomètre de laboratoire (DHR3) avec une géométrie plan-plan de diamètre 60 mm sur laquelle une feuille de papier rugueux a été collée, pour empêcher le glissement du Carbopol sur les surfaces métalliques, et à une température de 17 °C. La méthodologie des mesures en utilisant une géométrie plan-plan est largement détaillée et utilisée dans la littérature (Yoshimura & Prud'homme, 1988) ; (Tabuteau et al., 2007) ; (Macosko, 1994). Deux échantillons ont été prélevés en haut et en bas de la cuve de préparation pour vérifier la valeur de l'indice de rhéofluidification et aussi pour estimer la répétabilité. Les résultats sont présentés dans le **tableau II.5**.

Tableau II.5 *: Paramètres rhéologiques du Carbopol 1,5 %, pH = 5,5 mesurés en utilisant une géométrie plan-plan*

Rhéomètre	Echantillon	Seuil τ (Pa)	k (Pa.s^n)	n
DHR3	1	174	22,1	0,48
	2	185	22,7	0,49

Les valeurs de n représentées dans le tableau ci-dessus nous assurent de la pertinence du fluide choisi pour l'étalonnage.

- Le RGDS avec trois configurations : la pale hélice et la pale à ailettes avec deux positions pour les ailettes (45° et 90°).

Les points expérimentaux trouvés dans le régime laminaire des appareils sont représentés dans la **figure II.17** avec leurs incertitudes. Les calculs de ces incertitudes sont détaillés en **Annexe II.3**. Cette figure montre également une valeur d'incertitude de ± 10 % sur les mesures effectuées par le rhéomètre de laboratoire (DHR3). Le retour d'expérience au laboratoire rhéologie et procédé recommande ce chiffre comme une incertitude moyenne liée au processus de la mise en place de ce type de produit.

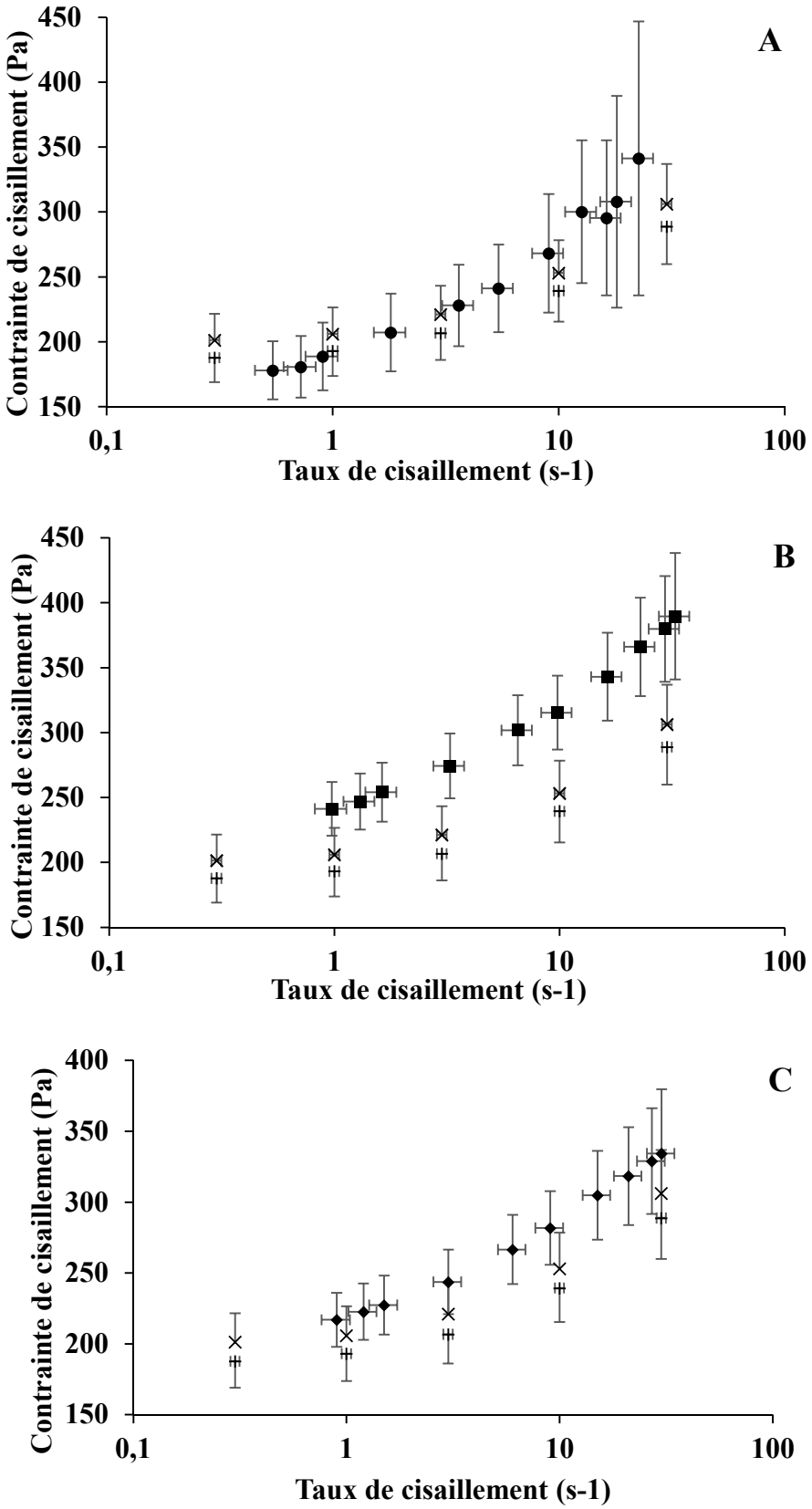


Figure II.17 : *Les points expérimentaux des mesures rhéologiques du Carbopol 1,5 %, pH= 5,5 pour le DHR3 (+,X) et pour RGDS en utilisant A : pale hélice (●), B : pale à ailettes 90° (■) et C : pale à ailettes 45° (♦).*

La **figure II.17** montre que :

- Tous les points de référence sont dans les barres des incertitudes de la pale hélice. Nous pouvons donc considérer les mesures obtenues par cette pale comme correctes et représentatives.

- Nous observons que la pale à ailettes donne systématiquement des mesures plus importantes que celles de la référence, d'environ 25 et 10 % pour les positions 90° et 45° respectivement si nous ne prenons en compte que les valeurs moyennes.

- Les incertitudes des contraintes augmentent avec le taux de cisaillement. C'est généralement à cause de l'augmentation du frottement généré par la rotation comme il est illustré en **figure II.13**.

- Les incertitudes de la pale hélice augmentent plus fortement que celles de la pale à ailettes. En effet, pour arriver au taux de cisaillement donné, la pale à hélice doit tourner relativement plus vite, environ 80 % plus, que la pale à ailettes. L'incertitude augmente dans ce cas à cause de l'incertitude des mesures du couple en augmentant la vitesse de rotation.

L'analyse de la littérature, comme (Maingonnat et al., 2008), (Guillemin et al., 2008), montre que les chercheurs travaillant sur la rhéométrie utilisant des pales avec l'analogie de Couette ne donnent pas et ne discute par les incertitudes de leurs étalonnages. Les résultats sont souvent présentés en échelle log-log écrasant les écarts. Les précisions des géométries de proximité sont limitées et adaptées à leurs utilisations. Nous considérons donc que les résultats obtenus par le RGDS sont bons. Nous pouvons conseiller de baisser les contraintes obtenus par la pale à ailettes d'environ 20% pour plus de précision.

II.6. Rhéologie des matières agricoles avec le RGDS

Le Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS) a été livré à Arkolia et installé sur le site d'un méthaniseur industriel construit à Napagèse situé à 100 km de Toulouse. Ce méthaniseur est développé pour décomposer la matière organique issue de fumier pailleux en voie sèche multi étapes. Le brassage de la matière dans ce fermenteur se fait par des injections de biogaz comprimé.

Nous présentons ici quelques exemples de mesure des propriétés rhéologiques des matières issues du fermenteur de Napagèse. Le grand récipient (55 Let 37 cm de diamètre) a été utilisé pour effectuer ces tests (**Figure II.18**).

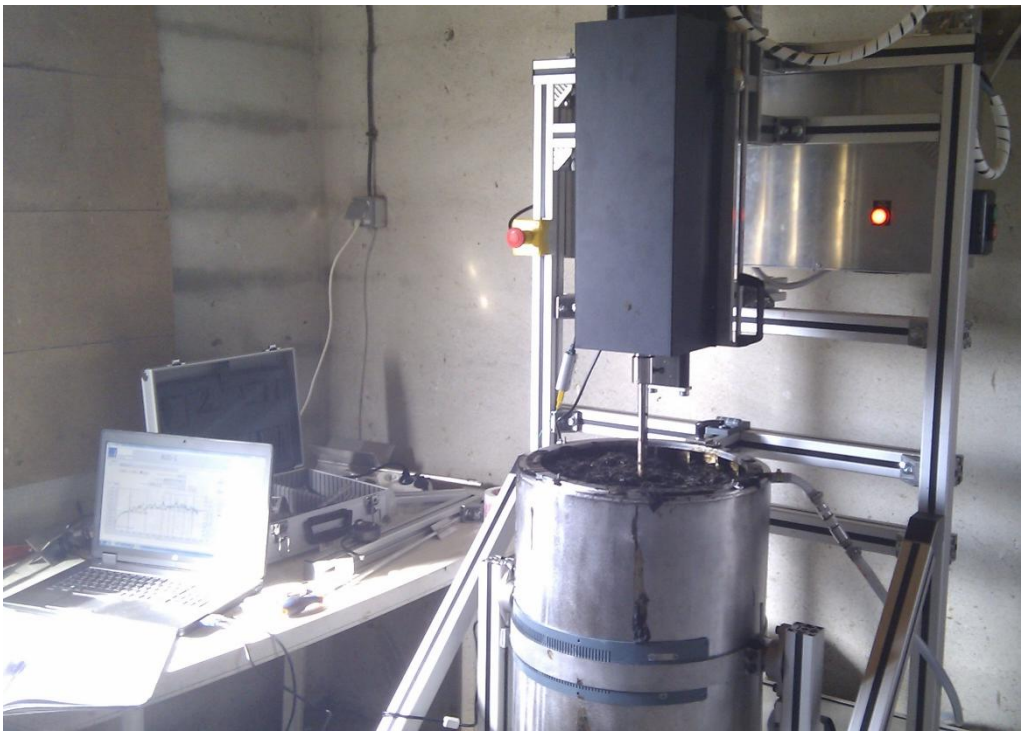


Figure II.18 *: RGDS lors des mesures rhéométriques à Napagèse.*

Les chapitres III et IV montreront des résultats obtenus avec le RGDS sur des intrants issus d'un fermenteur de laboratoire utilisé lors du doctorat de Maxime Dooms au laboratoire DEEP à l'INSA de Lyon qui portait également sur le procédé Arkométha mais d'un point de vue biologique (Dooms, 2017). Ces résultats montreront la capacité du RGDS à distinguer les variations de composition et de température sur le seuil d'écoulement et sur la viscosité.

II.6.1.Mesure de seuil par scissométrie

Les seuils d'écoulement de deux types d'échantillon ont été mesurés : un intrant avant fermentation et un digestat après environ 20 jours de fermentation. La grande pale (20 cm de hauteur et 16 cm de diamètre) a été utilisée pour effectuer ces tests.

II.6.1.1. Seuil d'écoulement de l'intrant

L'intrant est composé d'un mélange des plusieurs constituants. Ces constituants, leurs fractions massiques dans le mélange, leurs MS, leurs taux de matière volatile (MV) et leurs sources sont représentés dans le **tableau II.6**.

Tableau II.6 : *Les constituants de l'intrant brut de Napagèse*

Constituants	Fraction massique (%)	MS (%)	MV (%)	Source
Fumier ovin	10,8	50,3	79	SARL OVI-METHA à Rullac Saint Cirq
Fumier Equin	3,37	60	71,7	Zone du Tarn, collecte sur une dizaine de sites
Ensilage d'herbe	20,8	34,6	89,2	Production locale sur les terres de la ferme de Napagèse
Déchets céréales	8,8	82,5	82	EPI Salveignacois dans le Tarn
Eau	50,3	0	100	Provient du lac
Total	100	22,8	93,8	

Les photographies représentées en **figure II.19** montrent l'échelle des particules solides fibreuses de ces produits.

Figure II.19 : *Photographies des ingrédients de l'intrant : 1 : fumier ovin, 2 : fumier équin, 3 : ensilage d'herbe et 4 : déchets céréales.*

Nous avons mesuré :

- le seuil moyen des échantillons prélevés quotidiennement pendant deux semaines.
- L'effet de la température sur le seuil de cet intrant.

Les résultats obtenus suite aux mesures du seuil effectuées plusieurs fois pendant environ deux semaines en respectant le même protocole ont montré que le seuil de cet intrant est entre de 2100 ± 150 Pa). Les deux valeurs s'agissent des deux valeurs extrêmes. Les incertitudes ont été calculées suite aux mesures sur plusieurs échantillons prélevés en même temps.

Les seuils des deux échantillons d'intrant ont été mesurés à 33 °C et à 50 °C. Le taux de la MS de cet échantillon est d'environ 25,5 %. Les résultats sont représentés au **tableau II.7**.

Tableau II.7 : *Seuil d'intrant de Napagèse à deux températures*

	33 °C	**50 °C**	**Variation**
1er échantillon	1791 Pa ± 145 Pa	1588 Pa ± 133 Pa	12 Pa/°C
2ème échantillon	1603 Pa ± 129 Pa	1420 Pa ± 119 Pa	11 Pa/°C

Le **tableau II.7** montre que le seuil diminue d'environ 11,5 Pa/°C pour ces échantillon et dans cette gamme de température. Le RGDS est donc capable de distinguer le changement de la température.

II.6.1.2. Seuil d'écoulement de digestat

Nous allons montrer dans ce chapitre l'effet du brassage dans le fermenteur sur l'évolution du seuil.

Ces mesures ont été effectuées sur des échantillons de digestat à 45 °C. Leurs taux de MS ≈ 13,5 %. Les constituants de l'intrant de ces digestats avant la fermentation, leurs MS, leurs taux de matière volatile (MV) sont donnés en **tableau II.8**.

Tableau II.8 : *Les constituants de l'intrant composant les digestats étudiés*

Constituants	**Fraction massique (%)**	**MS (%)**	**MV (%)**
Fumier ovin	7,01	42	80
Fumier Equin	19,11	37	91
Ensilage d'herbe	15,29	39,7	89
Déchet céréales	7,64	88	82
Eau	50,96	0	100
Total	100	22,8	93,8

Le seuil du digestat a été mesuré avant et après le brassage de la matière par une injection de biogaz dans le fermenteur pour estimer la diminution de seuil à cause de la présence du biogaz dans la matière. Ces manipulations ont été effectuées, pour un échantillon prélevé juste avant le brassage et un autre toute de suite après le brassage.

Le seuil obtenu avant le brassage est de 350 ± 23,5 Pa et celui après le brassage est de 232 ± 15 Pa. La diminution de seuil peut être estimée alors à 34 % pour cet échantillon. La **figure II.20** qui s'agit d'une photo de l'échantillon prélevé tout de suite après le brassage montre la présence de biogaz dans cet échantillon ce qui n'est pas remarqué dans l'échantillon prélevé avant le brassage.

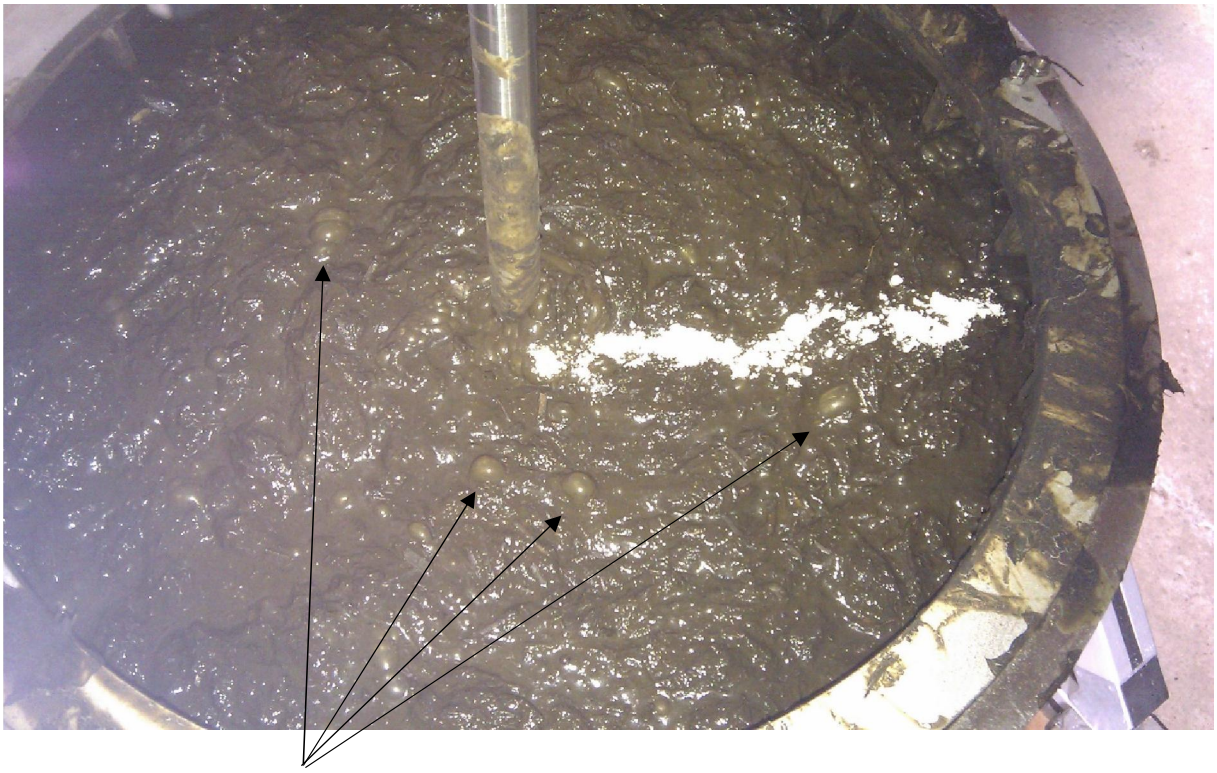


Figure II.20 *: Présence de biogaz dans l'échantillon après un brassage du fermenteur industriel bar biogaz comprimé*

La présence de biogaz diminue la densité de la matière qui à son tour diminue le seuil d'écoulement car la matière devient moins consistante. Nous pouvons attribuer la diminution du seuil d'écoulement à la présence de biogaz à cause de brassage.

Nous constatons que le RGDS est capable de discriminer l'effet du brassage qui est attribué généralement à la présence de biogaz dans le milieu brassé.

II.6.2.Mesure de la viscosité par une pale à ailettes 90°

L'échantillon utilisé est un digestat, prélevé à la sortie du fermenteur, a une MS de 14,3 %. La température de l'échantillon lors des mesures est de 45 °C.

Pour cette mesure, les vitesses ont été appliquées de la plus faible à la plus importante avec une durée de rotation correspondant au moins à deux tours complets de la pale pour chaque vitesse.

Les points expérimentaux obtenus sont représentés dans la **figure II.21**.

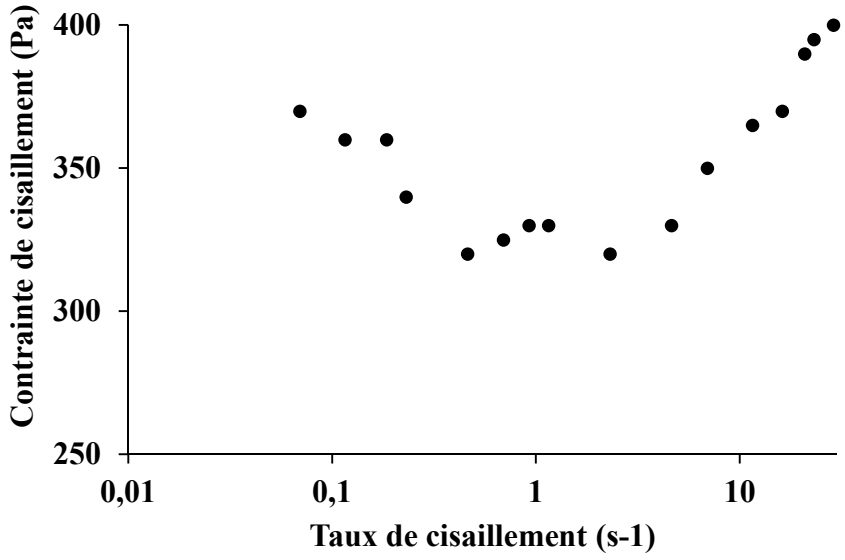


Figure II.21 : Courbes d'écoulement pour un digestat de Napagèse à 14,3 % de MS

La **figure II.21** montre trois régimes d'écoulement :

- Une diminution des contraintes en fonction du taux de cisaillement pour un taux de cisaillement entre 0,07 et 0,46 s^{-1}.
- Une stabilisation des contraintes (seuil d'écoulement) pour un taux de cisaillement entre 0,46 et 2,3 s^{-1}.
- Une augmentation des contraintes en fonction de taux de cisaillement pour un taux de cisaillement > 2,3 s^{-1}.

La diminution de la contrainte en augmentant le taux de cisaillement jusqu'à un minimum a déjà été observé dans les suspensions concentrées comme les bétons (Fabbris et al., 2013). Le seuil de contrainte observé aux faibles taux de cisaillement est un seuil statique correspondant à une organisation structurelle statique (seuil de repos).

En appliquant des vitesses et des contraintes sur nos matériaux, les pailles répondent aux contraintes appliquées en se repositionnant ou s'orientant vers le sens d'écoulement (Bennington, Kerekes, & Grace, 1991). Cela diminue la cohésion entre les particules et affaiblit la consistance de la structure de la matière ce qui explique la diminution de contrainte, jusqu'à arriver au seuil d'écoulement appelé dynamique.

L'augmentation des contraintes, à partir du seuil dynamique, en augmentant le taux de cisaillement est justifiée par l'effet que ces produits sont des fluides plastiques ou

rhéofluidifiants comme indiqué par plusieurs auteurs (El-Mashad, Van Loon, Zeeman, & Bot, 2005) ; (Tian et al., 2014) ; (Chen & Hashimoto, 1976); (Hashimoto & Chen, 1976).

Nous avons également observé à la fin de chaque mesure de viscosité que le volume de l'échantillon diminuait. Cela peut s'expliquer par la sortie du gaz prisonnier dans l'échantillon. La matière après la sortie de gaz devient normalement plus consistante et elle demande plus de contrainte pour la mettre en mouvement ce qui provoque logiquement une augmentation des contraintes.

Nous constatons donc que le modèle d'Herschel–Bulkley ne représente pas correctement la totalité des points expérimentaux. Le comportement rhéologique des matériaux industriels est plus complexe que ce modèle. Leurs comportements dépendent de l'histoire des matériaux d'une part et du caractère triphasique des matériaux d'autre part. Cela ne peut se faire qu'en analysant in-situ les matériaux extraits d'un site industriel.

II.7. Conclusions et perspectives

1. Un rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS) a été conçu, construit, étalonné et validé lors de cette thèse. Ce rhéomètre est destiné aux mesures de seuil et de la viscosité des mélanges des fumiers pailleux avec des déchets agricoles.

2. Le RGDS a été utilisé avec succès pour mesurer le seuil d'écoulement de substrats divers. Il était capable de distinguer les changements des constituants, la fraction du gaz dans l'échantillon et de la température.

3. Les mesures des viscosités effectuées sur le RGDS montrent que la plupart des incertitudes sont attribuées au frottement des paliers lors de la rotation de l'axe. Cela met en évidence le grand intérêt de bien aligner l'axe ou d'utiliser des paliers sous air comprimé pour minimiser le frottement.

4. La loi utilisée actuellement pour modéliser le comportement des résidus agricoles est la loi d'Herschel–Bulkley (HB). Ce modèle peut être utilisé à partir du seuil d'écoulement appelé « dynamique ». D'autres modèles plus adaptés pourraient être implémentés suite aux études faites avec le RGDS sur le site industriel.

5. Cette version du RGDS a été conçue pour caractériser la matière sans compactage. En effet, la matière dans le méthaniseur subit un compactage sous l'effet du poids des matières dessus. Ce compactage peut changer les propriétés rhéologiques de ces matériaux. Pour cela, il nous apparait indispensable de le prendre en compte dans les études futures.

6. La présence de biogaz dans l'échantillon doit être également prise en compte de manière contrôlée dans les études futures car cela peut changer les grandeurs rhéologiques des matières selon la durée entre deux brassages.

II.8. Références bibliographiques

Aït-Kadi, A., Marchal, P., Choplin, L., Chrissemant, A.-S., & Bousmina, M. (2002). Quantitative Analysis of Mixer-Type Rheometers using the Couette Analogy. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *80*(6), 1166-1174.

Alderman, N. J., Meeten, G. H., & Sherwood, J. D. (1991). Vane rheometry of bentonite gels. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, *39*(3), 291–310.

Amiri, H., Arabhosseini, A., & Kianmehr, M. H. (2012). Design, construction and evaluation of shear vane device for biomass yield stress determination. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *14*(4), 188–194.

Avramidis, K. S., & Turian, R. M. (1991). Yield stress of laterite suspensions. *Journal of colloid and interface science*, *143*(1), 54–68.

Barnes, H. A., & Carnali, J. O. (1990). The vane-in-cup as a novel rheometer geometry for shear thinning and thixotropic materials. *Journal of Rheology*, *34*(6), 841–866.

Bennington, C. P. J., Kerekes, R. J., & Grace, J. R. (1990). The yield stress of fibre suspensions. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *68*(5), 748-757.

Bennington, C. P. J., Kerekes, R. J., & Grace, J. R. (1991). Motion of pulp fibre suspensions in rotary devices. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *69*(1), 251–258.

Bousmina, M., Ait-Kadi, A., & Faisant, J. B. (1999). Determination of shear rate and viscosity from batch mixer data. *Journal of Rheology*, *43*(2), 415–433.

Brito de la Fuente, E., Leuliet, J. C., Choplin, L., & Tanguy, P. A. (1992). On the effect of shear-thinning behavior on mixing with a helical ribbon impeller. In *Aiche Symposium Series* (Vol. 88, p. 28–28). American institute of chemical engineers.

Chen, Y. R., & Hashimoto, A. G. (1976). Pipeline transport of livestock waste slurries. *Transactions of the ASAE*, *19*(5), 898–0902.

Choplin, L. (2000). In situ rheological follow-up of food processes: application to emulsification and ice cream fabrication processes. *rN [2rrkLRf]*, *1*, 1.

Choplin, L., & Marchal, P. (2007). La rhéologie systémique ou une rhéologie au service d'un génie des procédés et des produits. *Rhéologie*, *12*, 9–18.

Coussot, P. (1993). *Rhéologie des boues et laves torrentielles: étude de dispersions et suspensions concentrées* (Vol. 5). Editions Quae.

Dalpke, B., & Kerekes, R. J. (2005). The influence of fibre properties on the apparent yield stress of flocculated pulp suspensions. *Journal of pulp and paper science*, *31*(1), 39–43.

Daoud, I. (2013). *Pompabilité des bétons à hautes performances.* INSA de Strasbourg.

Delaplace, G., Guerin, R., Leuliet, J.-C., & Chhabra, R. P. (2006). An analytical model for the prediction of power consumption for shear-thinning fluids with helical ribbon and helical screw ribbon impellers. *Chemical engineering science*, *61*(10), 3250–3259.

Delaplace, G., Leuliet, J. C., & Relandeau, V. (2000). Circulation and mixing times for helical ribbon impellers. Review and experiments. *Experiments in fluids*, *28*(2), 170–182.

Dooms, M (2017). *Etude des compartiments d'hydrolyse et de méthanogenèse d'un procédé de méthanisation en voie épaisse multiétapes phasé en température : le procédé Arkométha ®,* Thèse de doctorat, INSA de Lyon.

Dzuy, N. Q., & Boger, D. V. (1983). Yield stress measurement for concentrated suspensions. *Journal of Rheology*, *27*(4), 321–349.

Dzuy, N. Q., & Boger, D. V. (1985). Direct yield stress measurement with the vane method. *Journal of Rheology*, *29*(3), 335–347.

El-Mashad, H. M., Van Loon, W. K., Zeeman, G., & Bot, G. P. (2005). Rheological properties of dairy cattle manure. *Bioresource technology*, *96*(5), 531–535.

Fabbris, F., De Carvalho, W., & Lootens, D. (2013). A Concrete Rheometer: Features and Industrial Applications. In *Proceedings of the 7th RILEM International Conference on Self-compacting Concrete and of the 1st RILEM International Conference on Rheology and Processing of Construction Materials* (p. 99–106).

Guillemin, J.-P., Ménard, Y., Brunet, L., Bonnefoy, O., & Thomas, G. (2008). Development of a new mixing rheometer for studying rheological behaviour of concentrated energetic suspensions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, *151*(1), 136–144.

Hashimoto, A. G., & Chen, Y. R. (1976). Rheology of livestock waste slurries. *Transactions of the ASAE*, *19*(5), 930–0934.

James, A. E., Williams, D. J. A., & Williams, P. R. (1987). Direct measurement of static yield properties of cohesive suspensions. *Rheologica Acta*, *26*(5), 437–446.

Keentok, M., & Tanner, R. I. (1982). Cone-Plate and Parallel Plate Rheometry of Some Polymer Solutions. *Journal of Rheology*, *26*(3), 301–311.

La Fuente, E. B.-D., Nava, J. A., Lopez, L., Medina, L., Ascanio, G., & Tanguy, P. A. (1998). Process viscometry of complex fluids and suspensions with helical ribbon agitators. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, *76*(4), 689-695.

Lanos, C., & Estellé, P. (2009). Vers une réelle rhéométrie adaptée aux bétons frais. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, *13*(4), 457–471.

Liddel, P. V., & Boger, D. V. (1996). Yield stress measurements with the vane. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, *63*(2), 235–261.

Macosko, C. W. (1994). *Rheology: Principles, Measurements, and Applications*. New York: Wiley-Blackwell.

Maingonnat, J. F., Doublier, J. L., Lefebvre, J., & Delaplace, G. (2008). Power consumption of a double ribbon impeller with newtonian and shear thinning fluids and during the gelation of a iota-carrageenan solution. *Journal of food engineering*, *87*(1), 82–90.

Mitsuishi, N., & HIRAI, N. (1969). Power requirements in the agitation of non-Newtonian fluids. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, *2*(2), 217–224.

Nagata, S. (1975). *Mixing: Principles and Applications*. Tokyo : New York: John Wiley & Sons Inc.

Piau, J. M. (2007). Carbopol gels: Elastoviscoplastic and slippery glasses made of individual swollen sponges: Meso-and macroscopic properties, constitutive equations and scaling laws. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, *144*(1), 1–29.

Rieger, F., & Novak, V. (1974). Power consumption scale-up in agitating non-Newtonian fluids. *Chemical Engineering Science*, *29*(11), 2229–2234.

Samaniuk, J. R., Wang, J., Root, T. W., Scott, C. T., & Klingenberg, D. J. (2011). Rheology of concentrated biomass. *Korea-Australia Rheology Journal*, *23*(4), 237–245.

Sepehr, M., Ausias, G., & Carreau, P. J. (2004). Rheological properties of short fiber filled polypropylene in transient shear flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, *123*(1), 19–32.

Stickel, J. J., Knutsen, J. S., Liberatore, M. W., Luu, W., Bousfield, D. W., Klingenberg, D. J., … Monz, T. O. (2009). Rheology measurements of a biomass slurry: an inter-laboratory study. *Rheologica Acta*, *48*(9), 1005–1015.

Sun, A., & Gunasekaran, S. (2009). Yield stress in foods: measurements and applications. *International Journal of Food Properties*, *12*(1), 70–101.

Swerin, A., Powell, R. L., & Ödberg, L. (1992). Linear and nonlinear dynamic viscoelasticity of pulp fiber suspensions. *Nordic Pulp and Paper Research Journal (Sweden)*.

Tabuteau, H., Baudez, J.-C., Bertrand, F., & Coussot, P. (2004). Mechanical characteristics and origin of wall slip in pasty biosolids. *Rheologica acta*, *43*(2), 168–174.

Tabuteau, H., Coussot, P., & de Bruyn, J. R. (2007). Drag force on a sphere in steady motion through a yield-stress fluid. *Journal of Rheology*, *51*(1), 125–137.

Takahashi, K., Yokota, T., & Konno, H. (1984). Power consumption of helical ribbon agitators in highly viscous pseudoplastic liquids. *Journal of chemical engineering of Japan*, *17*(6), 657–659.

Thalen, N., & Wahren, D. (1964). Shear modulus and ultimate shear strength of some paper pulp fibre networks. *Sven. Papperstidn*, *67*(7), 259–264.

Tian, L., Shen, F., Yuan, H., Zou, D., Liu, Y., Zhu, B., & Li, X. (2014). Reducing agitation energy-consumption by improving rheological properties of corn stover substrate in anaerobic digestion. *Bioresource technology*, *168*, 86–91.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and Bioengineering*, *108*(5), 1031-1041.

Yoshimura, A., & Prud'homme, R. K. (1988). Wall slip corrections for Couette and parallel disk viscometers. *Journal of Rheology*, *32*(1), 53–67.

Zafari, A., & Kianmehr, M. H. (2012). Livestock manure management and pelleting. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *14*(3), 78–84.

Zhang, M., Zhang, L., Jiang, B., Yuguo, Y. I. N., & Xingang, L. I. (2008). Calculation of metzner constant for double helical ribbon impeller by computational fluid dynamic method. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, *16*(5), 686–692.

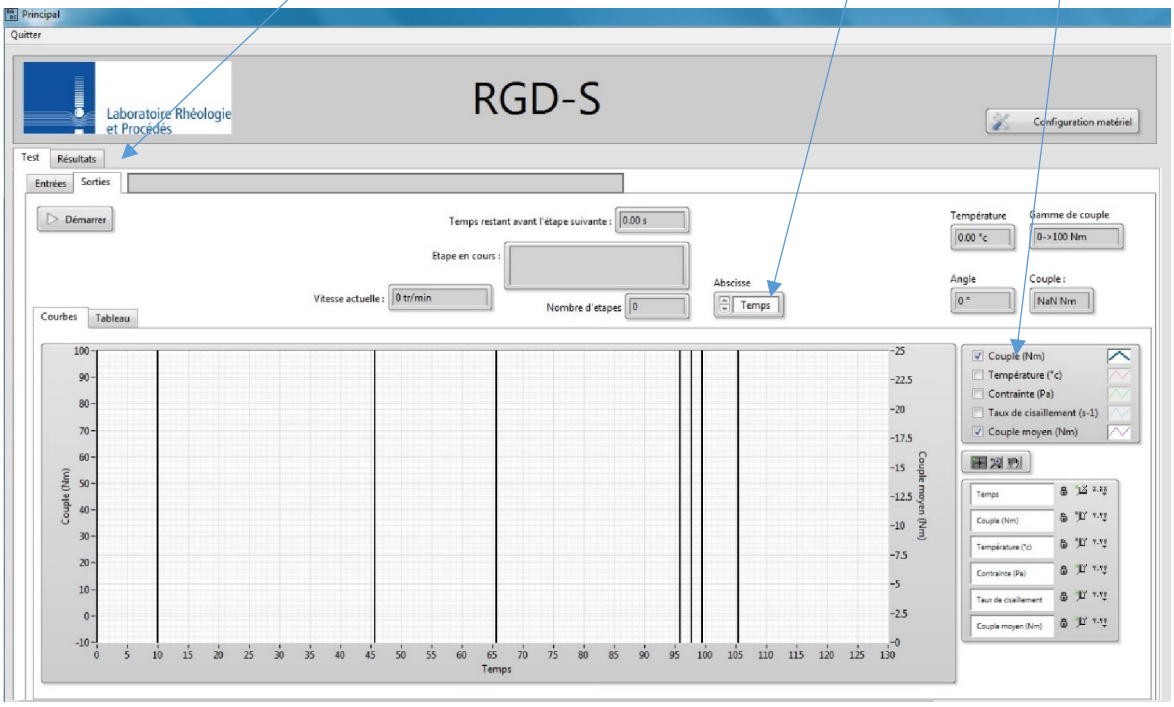
Annexe II.1 : Mode d'emploi RGDS

AII.1.1. Présentation du logiciel RGDS :

Ce logiciel a deux onglets principaux : Test et Résultats. Le premier est utilisé pour faire un test et le deuxième pour afficher un test déjà fait.

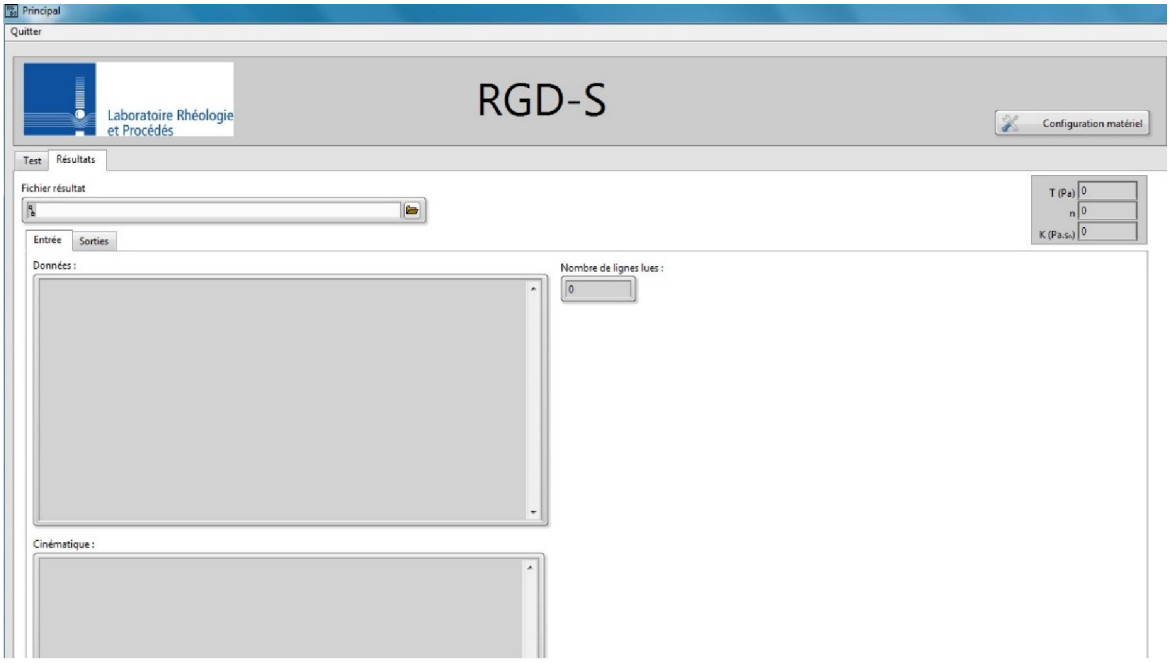
Onglet Test : Il y a deux onglets :

- Entrées : pour définir les paramètres du test : Choisir le nom de fichier, l'emplacement, des commentaires, la lame et le récipient utilisés et la procédure souhaitée.
- Sorties : pour effectuer le test : Démarrage, passage à l'étape suivante, Choisir les paramètres mesurés et affichés. Il y a la possibilité de choisir soit le temps (s) soit l'angle de rotation (°) pour être affiché sur l'axe des abscisses. Ces 2 paramètres pouvant être affichés également en échelle logarithmique par un simple clic sur le bouton droit de la souris. Idem pour les axes des ordonnées, il y a la possibilité pour afficher tous les axes en échelle logarithmique.

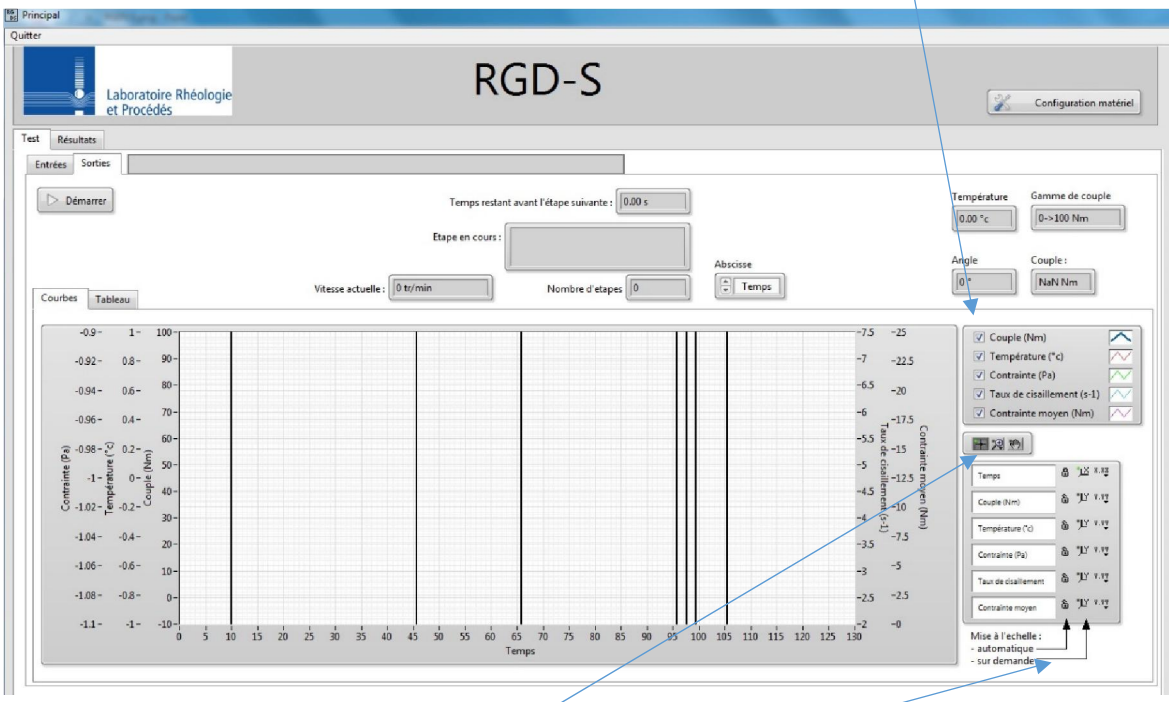


Onglet Résultats : où il y a également deux onglets :

- Entrée : Pour choisir le fichier à ouvrir. Dès que le choix est fait, les données et la procédure entrée seront affichées. Les résultats d'analyses du test seront affichés également (Seuil, k et n).



- Sorties : qui a lui-même deux onglets :
    - Tableau : où les résultats obtenus sont affichées dans un tableau.
    - Courbes : Il y a la possibilité d'afficher une ou plusieurs parties des résultats obtenus sur un graphe multiaxes.

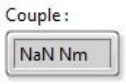


Il y a la possibilité également de « zoomer » sur une partie de la fenêtre et d'activer ou désactiver le changement d'échelle automatique pendant le test.

AII.1.2. La préparation et le déroulement de test

AII.1.2.1. Préparations du récipient et de la procédure :

1- Monter le récipient souhaité. Fixer le récipient grâce à la poignée noire.
2- Allumer le RGDS et connecter le à l'ordinateur grâce au câble USB.
3- Lancer le logiciel RGDS et vérifier que le logiciel détecte le couple-mètre :
   Regarder la fenêtre suivante :



   - S'il y a un chiffre affiché → le logiciel a détecté le couple-mètre.
   - Si vous voyez (NaN Nm) → le logiciel n'a pas détecté le couple-mètre et dans ce cas il faut vérifier la connexion du câble du couple mètre à côté du capot noir sur le bâti du RGDS puis fermer et relancer le logiciel.
4- Régler la température du thermorégulateur, grâce aux boutons de commande sur le thermorégulateur, à la température souhaitée. Attendre l'atteinte de la température souhaitée puis brancher les tuyaux de la recirculation d'eau en respectant que l'entrée d'eau soit en bas du récipient et la sortie en haut du récipient.
5- Dans la fenêtre Entrées : nommer l'essai, choisir l'emplacement du fichier et écrire des commentaires (la date de prélèvement, les ingrédients de l'échantillon, le temps de séjour, le secteur d'où l'échantillon a été prise dans le méthaniseur, la température du secteur, la MS, etc.).
6- Choisir le test à effectuer. Il y a deux possibilités :
   - Mesure du seuil par scissomètre. Choisir une lame en croix.
   - Mesure du seuil et de viscosité soit par une lame hélice ou par une lame à ailette.
7- Choisir ou établir la procédure souhaitée (vitesse en fonction de temps) :
   Pour établir ou modifier une procédure, aller à Documents → RGDS → Procédure puis créer ou modifier un fichier txt dans lesquelles se trouvent deux colonnes. Dans la première, entrer les vitesses et dans la seconde, les durées.
   - Mesure du seuil : vitesse faible : entre 0,1 et 0,3 tr/min.

- Mesure de seuil et de viscosité : vitesses ascendante de 1 tr/min jusqu'à la vitesse maximale qui varie selon la lame utilisée (125 tr/min pour la lame hélice et 100 tr/min pour la lame à ailettes). La vitesse maximale de l'appareil est de 300 tr/min.

8- Baisser la lame jusqu'à la hauteur souhaitée convenable pour chaque lame jusqu'au repère sur la plaque de guidage correspondant à votre essai :
   Ps → Petit récipient – mesure du seuil.
   Ms → Moyen récipient – mesure du seuil.
   Gs → Grand récipient– mesure du seuil.
   L1 → Lame hélice –mesure du seuil et de la viscosité.
   L2 → Lame à ailettes – mesure du seuil et de la viscosité.
9- Avant de charger l'échantillon, il faut vérifier que l'échantillon soit homogène en ingrédients et en température. Si ce n'est pas le cas, mélanger l'échantillon jusqu'à arriver à produire un échantillon homogène. L'échantillon doit être proche de la température souhaitée avant de le mettre dans le récipient.
10- Enregistrer la température moyenne de la matière dans la fenêtre approuvée (température annexe).
11- Chargez l'échantillon dans le récipient de manière homogène. Ne laissez surtout pas des zones vides. Si la lame du scissomètre n'est pas totalement immergée, prenez la hauteur de la partie non immergée et entrer cette hauteur dans la fenêtre H_0 (cm) du logiciel.
   NB : Pour les mesures de la viscosité en utilisant la lame hélice ou à ailettes, il faut que le récipient soit totalement rempli.
12- Mettre le couvercle. (Le couvercle doit surtout toucher ni l'axe de lame ni l'échantillon).

AII.1.2.2. <u>Le déroulement du test :</u>

1. Appuyer sur « démarrer » pour lancer le test.
2. En cas de mesure de seuil, arrêter le test après avoir le pic de contrainte de cisaillement. Le pic sera considéré le seuil d'écoulement.
3. En cas de mesure de viscosité, il faut passer de l'étape n à l'étape n+1 dès que la contrainte de cisaillement devient stable. Ce passage se produit en appuyant sur le bouton « Suivant».
4. La loi de comportement en régime permanent des matériaux étudiés peuvent être décrite en première approche par le modèle d'Herschel–Bulkley (HB). Pour l'instant cette loi

est implémentée mais d'autres plus adaptées pourraient être implémentées suite aux études faites avec le RGDS.

Les grandeurs du modèle (HB) : τ_0, k et n seront donc calculés automatiquement par le logiciel en appliquant la méthode des moindres carrés.

Remarque importante : la loi d'Herschel Bulkley est calculée automatiquement en première approximation. Il est fortement conseillé à l'utilisateur d'examiner et analyser les points expérimentaux pour juger de la validité du calage automatique. En effet, si le matériau testé est complexe et son comportement encore mal connu, l'expérimentateur doit appliquer son sens critique et physique.

AII.1.2.3. Vidange et nettoyage :

1. Faire monter la lame et débranchez les tuyaux de la recirculation d'eau.
2. Prendre la température de l'échantillon à la fin d'essai.
3. Libérer la bascule de du récipient en desserrant la poignée noire.
4. Basculer le récipient afin de vider l'échantillon dans un seau convenable.
5. Prendre un échantillon pour mesurer le taux de matière sèche.
6. Si la chute de la température lors de test est supérieure à 5 °C, isoler le récipient et répéter le test.

AII.1.3. Consignes de sécurités :

1. Appuyer sur le bouton rouge pour couper l'électricité immédiatement si nécessaire.
2. Utiliser des gants assez épais pour éviter les brulures en cas de manipulations sur des produits chauds et également pour éviter les coupures lors de nettoyage du récipient et des rainurages d'anti glissement.
3. Utiliser un masque d'anti odeur en cas de travail dans un endroit fermé.

Annexe II.2 : les protocoles suivis lors d'essais de scissométrie de l'argile avec le rhéomètre de laboratoire et le RGDS

Le protocole suivi lors d'essai par DHR3 est le suivant :

- Mettre l'échantillon en place : Nous avons utilisé un récipient de mesure cylindrique de 6,5 cm de hauteur et de 8 cm de diamètre. Pour remplir ce récipient, il a été plongé dans la suspension pour carotter la suspension.
- Nous avons fixé le récipient sur le rhéomètre en utilisant un outil spécial représenté en **figure II.22**.

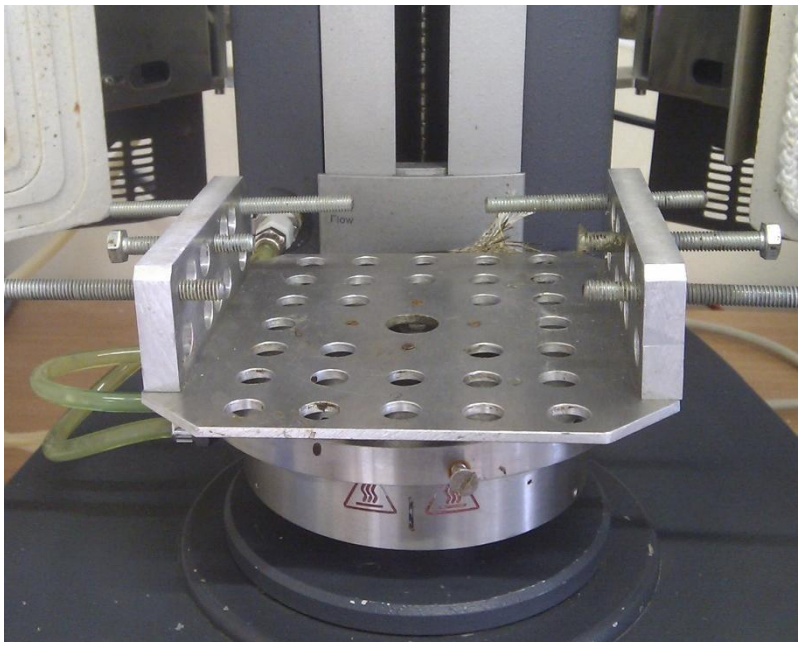


Figure II.22: Outil de fixation des récipients sur le rhéomètre de laboratoire

- La pale de scissomètre a été introduite dans l'échantillon de façon à obtenir les conditions optimales d'un essai de scissométrie représentées en **figure II.7**. Avant les mesures, l'échantillon a été tassé manuellement à l'aide d'une spatule.
- Une vitesse de 0,01 rad/s a été appliquée et la valeur du couple a été notée.
- Les équations **Eq.2** et **Eq.3** ont été utilisées afin de calculer le seuil de contrainte.

Le protocole suivi pour effectuer l'essai de scissométrie par RGDS est le suivant :

- L'échantillon a été ajouté dans le récipient par couches successives. Nous avons effectué un processus de tassage, manuellement en utilisant un bâton, à chaque couche d'environ deux cm. Cela a été fait pour faire sortir l'air.
- Ensuite, le scissomètre a été enfoncé dans l'échantillon jusqu'à arriver au niveau optimal (**figure II.7**). Puis, l'échantillon a été tassé (**Figure II.23**).
- Une vitesse de 0,0104 rad/s a été appliquée et la valeur de seuil du couple a été notée. Les équations **Eq.2** et **Eq.3** ont été utilisées pour calculer le seuil de contrainte.

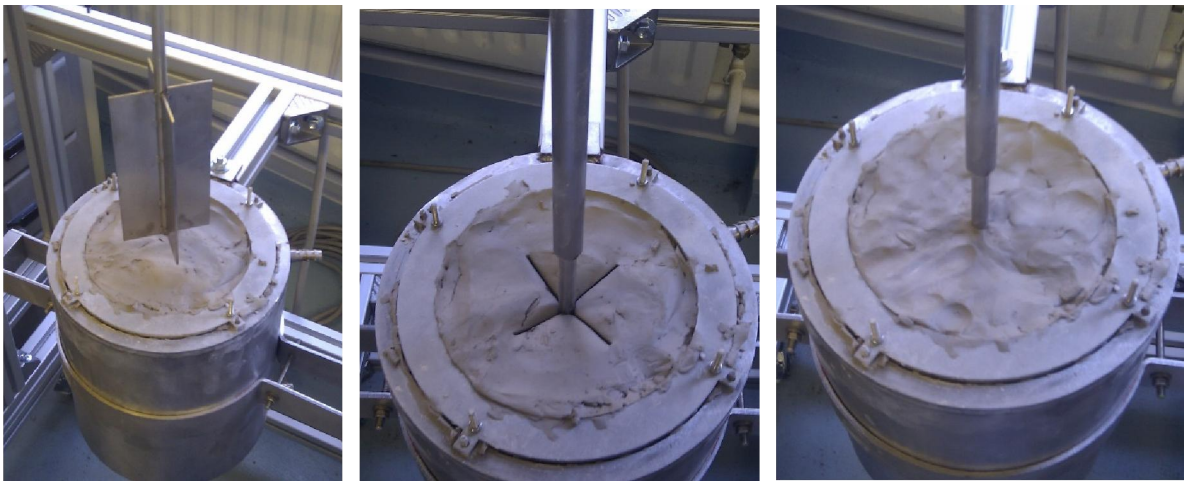


Figure II.23: à gauche : le récipient rempli par l'argile. Au milieu : le scissomètre introduit dans l'échantillon. À droite : le tassage de l'échantillon après l'introduction du scissomètre

Annexe II.3 : calculs des incertitudes du taux de cisaillement et des contraintes de cisaillement lors des mesures par le RGDS

Ci-dessous nous avons détaillé les incertitudes des mesures du RGDS en deux parties : La 1ère partie concerne le taux de cisaillement et la 2ème concerne la contrainte de cisaillement.

Incertitudes des mesures du taux de cisaillement :

Le taux de cisaillement est calculé à partir de l'équation Eq 5 :

$$\dot{\gamma}_v = k_{\dot{\gamma}_v} \; N$$

Ses incertitudes sont donc données par l'expression suivante :

$$\frac{\Delta \dot{\gamma}_v}{\dot{\gamma}_v} = \frac{\Delta k_{\dot{\gamma}_v}}{k_{\dot{\gamma}_v}} + \frac{\Delta N}{N} \qquad \textit{Eq 13}$$

<u>L'incertitude de la vitesse appliquée ΔN/N</u> peut-être calculé comme suit :

Le moteur a une fluctuation de ± 0,2 %

Il faut ajouter l'incertitude de la carte de pilotage Labview qui a une précision de 1 mV. Pour 300 tr/min, on a un signal de 10V donc précision de ± 0,001/10 = 0,01%. Pour 3 tr/min on a un signal de 10 * (3/300) donc de 0,1 V donc une précision de ±0,001/0,1=1%

L'incertitude totale est donc de ± 0,21% et de ± 1,2 % pour 300 et 3 tr/min respectivement.

L'incertitude varie linéairement en fonction de la vitesse. Cela nous permet de calculer facilement l'incertitude des vitesses intermédiaires.

<u>L'incertitude liée aux calculs du constant $k_{\dot{\gamma}_v}$</u>:

Le coefficient $k_{\dot{\gamma}_v}$ est donné par l'équation Eq 6 :

$$k_{\dot{\gamma}_v} = \frac{2\,\pi\,R_i}{R_e - R_i}$$

Nous observons que ces incertitudes viennent des calculs de R_i uniquement car R_e est constant. Les incertitudes des calculs de $k_{\dot{\gamma}_v}$ sont donc données par l'équation suivante :

$$\frac{\Delta k_{\dot{\gamma}_v}}{k_{\dot{\gamma}_v}} = 2\,\frac{\Delta R_i}{R_i} \qquad \textit{Eq 14}$$

La formule de calculs de R_i est donnée par l'équation 4 :

$$R_i = \sqrt{\frac{C\,{R_e}^2}{8\,\pi^2\,L\,{R_e}^2\,\eta\,N+C}}$$

R_e et L sont constants. Les incertitudes sont donc données par l'équation suivante :

$$\frac{\Delta R_i}{R_i} = \frac{1}{2}\left(2\frac{\Delta C}{C} + \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \eta}{\eta}\right) \qquad \textit{Eq 15}$$

Les incertitudes des calculs de $k_{\dot{\gamma}_v}$ est donc données par l'expression suivante :

$$\frac{\Delta k_{\dot{\gamma}_v}}{k_{\dot{\gamma}_v}} = 2\frac{\Delta C}{C} + \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \eta}{\eta} \qquad \textit{Eq 16}$$

$$\frac{\Delta \dot{\gamma}_v}{\dot{\gamma}_v} = 2\frac{\Delta C}{C} + 2\,\frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \eta}{\eta} \qquad \textit{Eq 17}$$

<u>ΔC/C</u> est lié à la vitesse appliqué selon la **figure II.13.**

<u>Δη/η</u> : Nous avons deux incertitudes des mesures de viscosité du glucose :

La 1ère vient de la mise en place de l'échantillon et de la température lors de la mesure de la viscosité de référence. Cette incertitude a été estimée en faisant deux mesures de viscosité pour deux échantillons prélevés du même produit avec un rhéomètre de laboratoire (DHR3) en utilisant une géométrie cône-plan et en conditions contrôlées (contrôle d'évaporation et température contrôlée à 40°C sachant qu'il y a un écart d'environ 1 °C entre des endroits divers de la solution sous la géométrie). Cette incertitude est estimée à ± 6 Pa.s.

La 2ème incertitude vient de l'évolution de la température de solution lors de l'étalonnage avec le RGDS où la température est augmentée de 39,4 à 40,4 °C. Pour estimer cette incertitude nous avons effectué des mesures de la viscosité du glucose, utilisé dans l'étalonnage, à plusieurs températures en utilisant le (DHR 3). Les résultats obtenus sont représentés dans la **figure II.24**.

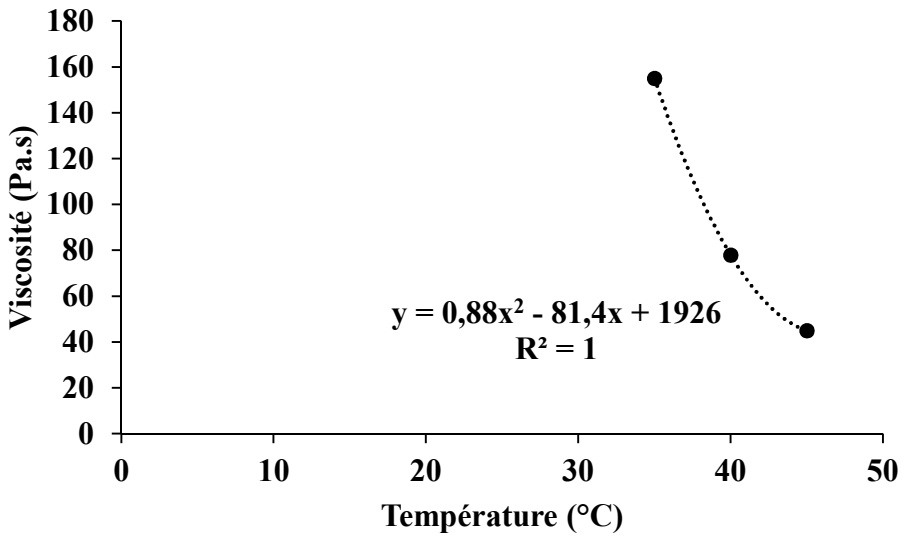


Figure II.24: *l'évolution de la viscosité de la solution du glucose pure en fonction de la température*

Selon l'équation affichée dans la **figure II.23**, les viscosités du glucose sont d'environ 85 et 74 Pa.s pour des températures de 39,4 et de 40,4°C respectivement. Nous observons que cette incertitude peut atteindre ± 10 Pa.s pour ± 0,5 °C autour de la température d'étalonnage.

L'incertitude totale liée à la mesure de la viscosité du glucose est donc de ± 16 Pa.s.

Incertitude des mesures des contraintes de cisaillement

La contrainte de cisaillement lors du test est calculée par l'équation Eq 7

$$\tau = k_\tau C$$

Ses incertitudes sont donc données par l'équation suivante :

$$\frac{\Delta \tau}{\tau} = \frac{\Delta k_\tau}{k_\tau} + \frac{\Delta C}{C} \qquad \textit{Eq 18}$$

<u>ΔC/C</u> est lié à la vitesse appliqué selon la **figure II.13**.

Le coefficient k_τ est calculé en utilisant l'équation Eq 8 :

$$k_\tau = \frac{\eta\,(k_{\dot{\gamma}_v} N)}{C}$$

L'incertitude de k_τ est donc donnée par l'équation suivante

$$\frac{\Delta k_\tau}{k_\tau} = \frac{\Delta \eta}{\eta} + \frac{\Delta C}{C} + \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta k_{\dot{\gamma}_v}}{k_{\dot{\gamma}_v}} \qquad \textit{Eq 19}$$

La combinaison des équations **Eq 16** et **Eq 19** donne :

$$\frac{\Delta k_\tau}{k_\tau} = 2\,\frac{\Delta\,\eta}{\eta} + 3\,\frac{\Delta\,C}{C} + \,2\,\frac{\Delta\,N}{N} \qquad \textit{Eq 20}$$

Annexe II.4 : Protocole suivi pour la préparation du Carbopol d'étalonnage à concentration massique de 1,5 %

1. La quantité nécessaire du Carbopol poudre a été ajoutée à 60 litres d'eau de robinet au fur et à mesure afin de ne pas former des agglomérations lors d'une étape de mélange violent avec une pale défloculeuse.
2. A la fin de cette étape, la quantité totale du Carbopol liquide formé a été filtrée par un tamis de maille de 5 mm afin d'éliminer les agglomérats.
3. Ces agglomérats retenus sur le tamis ont été cassés au fur et à mesure pendant l'étape de filtration et remis dans la suspension.
4. Le malaxeur est resté en marche 24 heures afin de bien disperser le Carbopol dans l'ensemble du mélange et de former un fluide homogène.
5. Puis un échantillon de 1 litre a été prélevé auquel de la soude liquide a été ajoutée pour gélifier le Carbopol jusqu'à d'atteindre un $n > 0,45$.
6. Les caractéristiques rhéologiques de cet échantillon ont été mesurées en utilisant un rhéomètre de laboratoire (DRH3) avec une géométrie plan-plan de 60 mm de diamètre et avec un contrôle de température à 17°C. Une valeur de $n > 0,45$ a été vérifiée dans cette échantillon ce qui est convenable pour notre test.
7. Le même pourcentage massique de la soude a été ajouté (au fur et à mesure) à la quantité totale du Carbopol liquide lors de son mélange afin de gélifier les 60 litres du Crabopol déjà dispersé dans l'étape 4.
8. Le malaxeur est resté en marche pendent 24 heures supplémentaires à fin d'avoir un fluide homogène.

Chapitre III : Évolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux en fonction de la distribution de la phase liquide

Résumé :

Le seuil d'écoulement des matériaux utilisés dans la fermentation en voie sèche dans un réacteur fonctionnant en continu et en mode piston représente un paramètre opérationnel important. En général, les auteurs relient les propriétés rhéologiques (seuil et viscosité) de ces matériaux au taux de matière sèche (MS%) seulement. Or, les utilisateurs sur le terrain constatent que la MS n'est pas le seul paramètre gouvernant la rhéologie de la matière. Dans ce travail, le seuil d'écoulement (τ_0) a été mesuré pour plusieurs mélanges ayant la même MS mais des différentes fractions massiques de divers constituants afin d'étudier la pertinence de la MS sur le seuil d'écoulement des matières. La relation entre le seuil d'écoulement d'une part et la fraction des différents constituants dans les diverses formulations étudiées d'autre part a été montrée. L'évolution du seuil de contrainte, mesuré par un scissomètre, en fonction de la MS et la fraction volumique des fibres a été étudiée pour deux échantillons. Plusieurs régimes physiques et rhéologiques ont été observés et expliqués. Plusieurs lois ont été utilisées pour ajuster les résultats expérimentaux.

Table des matières du chapitre III

Chapitre III : Évolution du seuil d'écoulement des substrats issus des fumiers pailleux en fonction de la distribution de la phase liquide 107
Table des matières du chapitre III 109
Notations et symboles du chapitre III 111
III.1. Introduction 113
III.2. Matériaux étudiés 115
III.2.1. Description des matériaux étudiés et leur problématique 115
III.2.2. Présentation des matériaux étudiés 117
III.3. Méthodes expérimentales 119
III.3.1. Caractérisations massique, volumique et granulométrique 119
III.3.1.1. Fractions massiques et volumiques 119
III.3.1.2. Caractérisation granulométrique 121
III.3.2. Mesure du seuil par scissométrie 122
III.3.2.1. Principe de mesure du scissomètre 122
III.3.2.2. Appareils utilisés : 123
III.3.3. Distribution des états de l'eau dans la matière par séchage 125
III.3.3.1. Principe de la technique de séchage à température constante 125
III.3.3.2. Appareil utilisé et essais effectués 127
III.4. Résultats et discussions 128
III.4.1. Granulométrie et morphologie des suspensions étudiées 128
III.4.1.1. Granulométrie du lisier et d'ensilage 128
III.4.1.2. La fraction volumique maximale de fibres ($F_{v\ max\ fibre}$) 131
III.4.2. Évolution du seuil et de la MS_{wc} en fonction des fractions des différents constituants 132
III.4.3. Évolution du seuil en fonction de la MS, de la $F_{v\ fibre\ humide}$, et de la $F_{m\ eau\ libre}$ pour un échantillon donné 133
III.4.3.1. Résultats rhéométriques 133
III.4.3.2. Description de l'évolution physique du milieu lors des évolutions de MS et de la $F_{v\ fibre\ humide}$ 135
III.4.3.3. Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la fraction massique d'eau libre 140

III.4.4. Méthodologie pour prédire la fraction d'eau ajoutée nécessaire pour atteindre MS_{c2} 141
III.4.5. Lois de prédiction du seuil en fonction de la MS entre MS_{c1} et MS_{c2} 142
III.4.5.1. Revue bibliographique 142
III.4.5.2. Résultats et discussions 144
III.4.6. Correspondance entre MS_{c2} et MS_{wc} 146
III.5. Conclusions 147
III.6. Références bibliographiques 148
III.7. Annexes 152
III.7.1. Annexe III.1 : Influence de la masse de l'échantillon sur la teneur en eau liée (WC) 152
III.7.2. Annexe III.2 : Protocole d'essai de séchage 156
III.7.3. Annexe III.3 : Caractéristiques granulométriques du lisier et de l'ensilage 157
III.7.4. Annexe III.4 : Etude bibliographique de l'effet du rapport d'aspect (r_p) sur la fraction volumique maximale des fibres. 158
III.7.5. Annexe III.5. Protocole du test de scissométrie 162
III.7.6. Annexe III.6 : Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la fraction volumique du mélange N.4 163
III.7.7. Annexe III.7 : Exemple numérique pour la prédiction de la fraction d'eau ajoutée pour atteindre MS_{c2} 164

Notations et symboles du chapitre III

MS	Taux de matière sèche (%).
F_m	Fraction massique (-)
$F_{m\ fibres\ sèches}$	Fraction massique des fibres sèches (-).
$F_{m\ eau\ libre}$	Fraction massique d'eau libre (-)
$F_{v\ fibre\ humide}$	Fraction volumique des fibres mouillées saturées et gonflées (-).
τ	Contrainte de cisaillement (Pa).
τ_0	Seuil d'écoulement (Pa)
C_{max}	Couple maximum mesuré (N.m).
K	Coefficient de cisaillement de la pale (m^3).
D	Diamètre de la pale du scissomètre (m).
H	Hauteur de la pale du scissomètre (m).
RGDS	Rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats.
WC	Teneur maximal en eau liée
MS_{wc}	MS de l'échantillon au point WC.
MS_{c1}, MS_{c2}	MS critique 1 et 2 respectivement.
N_c	Le nombre d'encombrement de fibre.
$r_p = L/d$	Rapport d'aspect, longueur et diamètre de la fibre respectivement.
a, J, c	Facteur (Pa).
M	Facteur (-)
b, d	Exposant (-).

III.1. Introduction

Les matériaux introduits dans un réacteur de méthanisation agricole en voie sèche sont des mélanges de fumiers pailleux avec des déchets agricoles. La caractérisation du comportement rhéologique de ces substrats est relativement peu étudiée bien qu'il s'agisse d'un élément essentiel pour la maîtrise du procédé, notamment en vue d'optimiser le mélange, le pompage de ces matériaux et pour déterminer et suivre l'état d'évolution du matériau en cours de méthanisation.

Ces matériaux sont des suspensions concentrées dont le premier paramètre permettant de caractériser la rhéologie du substrat est le seuil d'écoulement. Industriellement, le taux de matière sèche (MS) reste aujourd'hui le seul paramètre utilisé pour évaluer la consistance du milieu dans les fermenteurs industriels notamment parce qu'elle demeure un paramètre facile à mesurer et à comprendre. Cependant, les utilisateurs sur le terrain constatent que la MS n'est pas le seul paramètre gouvernant le seuil d'écoulement. Ils attribuent leur observation à la variabilité importante des produits constituant l'entrant. La revue bibliographique montre un déficit notable dans la connaissance et la compréhension de la rhéologie de ces matériaux.

Pour progresser dans ce domaine, nous allons déterminer la structure physique de ces matériaux qui seront considérés principalement comme des suspensions fibreuses et spongieuses. Puis, nous allons établir les liens entre le seuil d'écoulement et les paramètres caractérisant la structure physique. Ce chapitre vise à répondre aux questions suivantes :

- Est-ce que la MS est un paramètre pertinent pour estimer le seuil d'écoulement ?
- Si non, quel(s) est (sont) donc le(s) paramètre(s) pertinent(s) gouvernant le seuil d'écoulement d'un mélange ou permettant de formuler un mélange avec un seuil d'écoulement souhaité ?
- Quel est l'effet du changement de ce(s) paramètre(s) pertinent(s) sur la structure physique et le seuil d'écoulement de ces matériaux ?

De plus, dans la méthanisation en voie sèche, nous cherchons à augmenter les fractions des végétaux pour maximiser le volume de biogaz produit par unité de masse de produit introduit dans le fermenteur. Cependant, à des fractions élevées de pailles, fibres et ensilages, il y a un risque d'introduire des produits trop secs qui seraient difficiles à mélanger de manière homogène. Une question importante se pose donc ici : quelle est la fraction maximale de

végétaux qui peut être utilisée pour formuler un mélange relativement facile à mélanger dans le fermenteur ?

Le but de ce travail est de répondre aux questions mentionnées ci-dessus à travers la stratégie suivante :

- En premier lieu, nous allons présenter les matières étudiées, leurs caractéristiques et la méthode de préparation des mélanges.
- Ensuite, nous présenterons les méthodes expérimentales utilisées, leurs principes de mesure, les spécificités des outils et des appareils utilisés, les équations appliquées et les protocoles mis en œuvre.
- Puis, nous discuterons les résultats obtenus.
- Enfin, nous présenterons les conclusions les plus importantes.

III.2. Matériaux étudiés

III.2.1. Description des matériaux étudiés et leur problématique

Dans ce paragraphe nous présenterons les paramètres les plus saillants pour la compréhension du comportement de ces matériaux dans ce chapitre.

Les constituants principaux des matériaux étudiés sont :

- Particules solides fibreuses : Ce sont des végétaux (pailles, herbe, ensilage,…) possédant un caractère spongieux. Ces matériaux représentent le constituant ayant le rôle le plus significatif dans la rhéologie du milieu étudié et notamment sur le seuil d'écoulement à cause de leurs volumes importants par rapport aux autres solides (minéraux et bactéries).
- La matrice liquide : composée d'eau qui peut contenir des matières organiques solubles comme les sucres, les acides gras volatils, les acides aminés, etc. Pour simplifier, nous allons appeler, dans notre étude, cette matrice liquide par « eau » qui peut se présenter, comme nous allons détailler plus loin, sous forme libre ou liée aux matières solides organiques, à la fois fibreuses ou non fibreuses.
- La matière organique non fibreuse : composée principalement des bactéries. Elle existe sous forme d'une suspension de poudre dispersée dans l'eau.
- Les minéraux : Leur fraction massique (F_m) est de l'ordre de 1 à 1,5 % selon les mesures effectuées dans ce travail. Leur fraction volumique est négligeable par rapport aux particules solides fibreuses du fait des masses volumiques faibles de ces derniers (0,1 – 0,2 kg/L) par rapport à celles des minéraux (1,8 kg/L pour le sable en moyenne). Nous allons donc négliger l'effet des minéraux sur la rhéologie des matériaux traités dans cette étude.

Les matériaux étudiés dans ce travail sont donc des suspensions organiques, fibreuses, spongieuses. Leur caractère spongieux est attribué à la présence de particules organiques solides fibreuses, végétales ou non. En effet, l'absorption de l'eau est généralement remarquée dans les matières organiques. Néanmoins, ce caractère est plus notable pour les matériaux végétaux lignocellulosiques, comme les fibres, les pailles et l'ensilage,…, à cause de leurs structures constituées de milliards de micropores qui fonctionnent comme une éponge qui retient l'eau. Il y a donc une fraction d'eau prisonnière dans les particules solides organiques végétales ou non.

Ce phénomène a été constaté par plusieurs auteurs qui ont cherché à déterminer cette fraction d'eau liée à leurs matériaux, sans toutefois chercher à relier leurs résultats à la rhéologie des matériaux étudiés. (Vaxelaire & Cézac, 2004) ont cité la plupart de ces auteurs dans leur revue en les classant selon la méthode utilisée pour déterminer la fraction d'eau liée qui représente l'eau absorbée par ces particules solides et qui interagit chimiquement (liaisons) et/ou physiquement (capillarité, adsorption ou adhésion) avec ces particules spongieuses. Cette eau liée est définie par WC (Water Critical en anglais) qui représente le rapport de la masse d'eau liée sur la masse totale de l'échantillon.

En dehors de l'eau liée, l'eau se comporte comme de l'eau disponible sans interaction chimique ou physico-chimique avec les particules solides. Cette eau correspond au «liquide libre» ou «eau mobile» qui peut être éliminée par drainage ou déshydratation mécanique. Cette eau détermine la biodisponibilité dans le matériau et joue un rôle significatif dans son comportement rhéologique (Viamajala et al., 2009).

Nous pouvons déjà annoncer donc que le seuil d'écoulement de nos matériaux dépend de la fraction volumique des fibres gonflés en eau ($F_{v\ \text{fibres humides}}$) car elles représentent le constituant ayant le volume le plus important dans ce milieu. Il dépend également de la quantité d'eau libre dans le milieu. Il dépend enfin de la rigidité des fibres et de leurs dimensions notamment la longueur L et la largeur d. Cet aspect est largement étudié dans la rhéologie des suspensions des fibres utilisées pour les applications papetières (Mason, 1954) ; (Kerekes & Schell, 1992) ; (Dodson, 1996).

La revue bibliographique que nous étudierons plus loin montre que, à notre connaissance, aucune étude n'a relié la teneur en eau liée, la $F_{v\ \text{fibres humides}}$ et la fraction d'eau libre ($F_{\text{eau libre}}$) à la rhéologie des fumiers ou des déchets agricoles. Nous allons nous intéresser dans ce travail à traiter ces points-là.

III.2.2. Présentation des matériaux étudiés

Les constituants des mélanges étudiés proviennent de l'exploitation «Gaec de l'envolée» à Pomeys, Rhône-Alpes, géré par Mickael Rageys. Il s'agit de fumier, de lisier de bovins, d'ensilage de maïs et d'eau. Ces matériaux contiennent des fibres ayant plusieurs centimètres de longueur. Ils ont été utilisés lors du doctorat de Maxime Dooms (Dooms, 2017) au laboratoire DEEP à l'INSA de Lyon qui portait également sur le procédé Arkométha mais d'un point de vue plutôt biologique. Pour que la taille des fibres de ces matériaux soit adaptée aux dimensions des réacteurs de laboratoire, chaque constituant a été broyé, dans un déchiqueteur à cisailles rotative « Broyeur déchiqueteur BB230 » (**Figure III.1**) réglé à une distance de 1 cm entre les deux lames afin de diminuer la longueur des fibres. Le lisier a été broyé 2 fois, le fumier 3 fois et l'ensilage 7 fois.

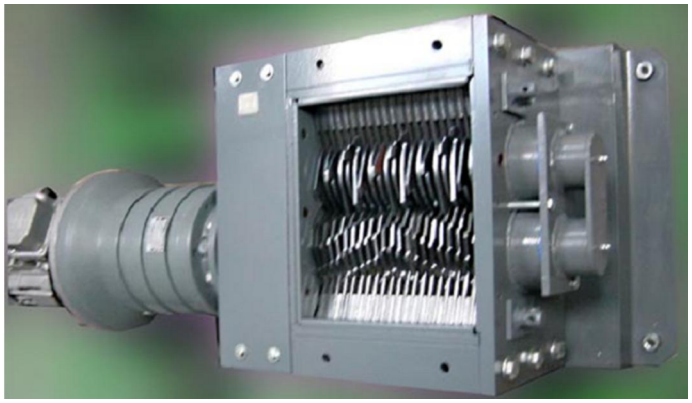


Figure III.1 *: Déchiqueteur à cisailles rotative « Broyeur déchiqueteur BB230 »*

Le choix des produits utilisés dans ce chapitre se justifiait par l'intérêt initial d'établir des corrélations entre les aspects rhéologiques, étudiés dans le cadre de cette thèse, et biologiques étudiés lors des travaux de (Dooms, 2017). Les résultats obtenus dans les deux thèses n'ont pas permis d'établir des corrélations entre les deux aspects.

Deux types de produits ont ainsi été utilisés ou préparés dans cette étude :

- **Premier type :** il s'agit des trois intrants, **mélange N.1, N.2 et N.3**, réalisés à partir de lisier en faisant varier uniquement la proportion d'ensilage. Les mélanges N.1 et N.3 représentent les deux cas extrêmes en termes de teneur en ensilage et le mélange N.2 représente un cas moyen.

  Ces trois mélanges ont été utilisés pour étudier la pertinence de la MS comme paramètre pour estimer le seuil d'écoulement. Pour cela, une même MS de 12,8 %,

teneur initiale du lisier de bovin, a été ajustée pour les 2 autres mélanges en ajoutant de l'eau.

Pour chaque formulation, les fractions massiques des constituants et leurs MS sont données dans le **tableau III.1**.

Tableau III.1 : *fraction massique (F_m) et MS pour les constituants des mélanges N.1,2 et 3*

Mélange	Ensilage de maïs		Lisier de bovin		Eau
	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)
N1	0	26,8	100	12,8	0
N2	11,4		76,3		12,3
N3	30,2		36,9		32,9

La MS est calculée selon l'équation Eq.1 et la fraction massique (F_m) est calculée selon l'équation Eq.2 :

$$MS(\%) = \frac{Masse\ sèche}{Masse\ humide} * 100 \qquad Eq\ 1$$

$$F_m(\%) = \frac{Masse\ du\ composant}{Masse\ totale\ de\ mélange} * 100 \qquad Eq\ 2$$

Pour étudier l'évolution de la structure physique et le seuil d'écoulement de ces matériaux en fonction de la MS ou des autres paramètres pertinents potentiels, le mélange N.3 a été choisi car il représente l'intrant le plus utilisé dans ce procédé.

- **Deuxième type (Mélange N.4) :** Il s'agit d'un échantillon hydrolysé pendant un jour à une température de 65 °C. Sa MS est de 13,1 %. Les constituants de l'intrant de cet échantillon avant l'hydrolyse, leur MS et leurs fractions massiques (F_m) sont détaillées dans le **tableau III.2**.

Tableau III.2 : *Constituants de l'intrant du mélange N.4, leurs MS et F_m*

Fumier		Lisier de bovin		Ensilage de maïs		Eau
F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)
8,82	37	58,82	7,2	17,65	27	14,71

Ce mélange a été utilisé pour enrichir les résultats rhéométriques obtenus suite aux manipulations effectuées sur le mélange N.3. En effet, il représente une matière relativement différente de trois premiers mélanges à cause de l'effet de l'hydrolyse à température élevée et une haute teneur en lisier non pailleux.

III.3. Méthodes expérimentales

III.3.1. Caractérisations massique, volumique et granulométrique

Pour établir un lien entre la rhéologie et les paramètres physiques des matériaux étudiés, il nous est apparu indispensable, au-delà de la mesure de la matière sèche, de déterminer les fractions massiques et, éventuellement, volumiques des constituants des matériaux. Egalement, une caractérisation granulométrique des particules fibreuses a été effectuée pour déterminer la longueur, la largeur et le rapport d'aspect des fibres.

III.3.1.1. Fractions massiques et volumiques

Le but de ces caractérisations est de déterminer, pour les mélanges N.3 et N.4 à MS donnée, les paramètres suivants :

1. La fraction massique des minéraux.
2. Les fractions massique et volumique de fibres humides gonflées ($F_{v\ fibre\ humide}$) dans un volume donné d'échantillon.
3. La fraction massique de fibres sèches ($F_{m\ fibre\ sèche}$) dans une masse donnée d'échantillon.
4. La fraction massique de matière organique non fibreuse.

Afin d'atteindre ces objectifs, les méthodologies suivantes ont été suivies.

- Premièrement, la MS a été déterminée pour les deux mélanges en utilisant l'éq.1.

- La fraction massique des minéraux a été ensuite déterminée en utilisant la méthode suivante : il s'agit d'incinérer l'échantillon à 550°C pendant deux heures et de mesurer la masse d'échantillon avant et après l'incinération. La masse de l'échantillon après l'incinération correspond à la masse des minéraux. Nous avons donc calculé la fraction des minéraux en utilisant l'équation suivante :

$$F_{m\ minéraux}\ (\%) = \frac{Masse\ des\ minéraux}{Masse\ de\ l'échantillon\ avant\ l'incinération} * 100 \qquad Eq\ 3$$

- La fraction massique et volumique des fibres humides dans les deux échantillons ont été déterminées comme suit :

La masse et le volume d'une quantité représentative de l'échantillon, environ 1,5 L, ont été notés. Ensuite, l'échantillon a été lavé avec de l'eau du robinet et filtré une quarantaine de fois sur un tamis de 200 µm afin d'éliminer la matière organique non fibreuse. Les observations visuelles du liquide traversant le tamis sur un plancher blanc montrent que les fibres n'ont pas traversé le tamis. Nous avons supposé donc que ce qui reste sur le tamis est composé des fibres saturées en eau et de la partie du sable qui n'a pas traversé le tamis. Cet échantillon filtré a été maintenu sur le tamis jusqu'à la fin de l'égouttage. Nous avons supposé que les fibres à ce point-là ont retenu le maximum d'eau liée et le milieu ne possède pas d'eau libre.

A noter ici que nous allons négliger la masse du sable à cause de sa faible valeur ($F_{m\ sable}$ < 1,5 %). Son volume était aussi négligé par rapport au volume des fibres.

Ensuite, la masse de fibre saturée en eau a été mesurée et la $F_{m\ fibre\ humide}$ a été calculée par le rapport de la masse de ces fibres gonflées sur la masse totale de l'échantillon avant le lavage.

Puis, le volume de ces fibres humides a été déterminé en ajoutant ces fibres au fur et à mesure à un volume initial précis d'eau dans une éprouvette graduée en volume. Une tige métallique a été utilisée pour disperser les fibres dans l'eau et désaérer le milieu. Le volume final a été noté. Le volume des fibres gonflées est déterminé comme le résultat de soustraction des deux volumes avant et après l'ajout des fibres.

La $F_{v\ fibre\ humide}$ est alors calculée par le rapport de ce volume des fibres gonflées sur le volume total de l'échantillon avant le lavage.

- Pour mesurer la $F_{m\ fibre\ sèche}$, la quantité totale de fibre a été récupérée, séchée à 105 °C pendant 24 heures. La $F_{m\ fibre\ sèche}$ a été ensuite calculée par le rapport de la masse des fibres après le séchage sur la masse totale de l'échantillon avant le lavage.
- La fraction massique de matière organique non fibreuse a été calculée en utilisant l'équation ci-dessous :

$$F_{m\ matière\ organique\ non\ fibreuse} = MS - F_{m\ fibres\ sèche} - F_{m\ minéraux} \qquad Eq\ 4$$

III.3.1.2. Caractérisation granulométrique

La caractérisation granulométrique a été effectuée au Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers (LGP2).

Les caractéristiques granulométriques incluent la longueur, la largeur et le rapport d'aspect r_p défini comme le rapport de la longueur à la largeur des particules fibreuses. Ces dimensions ont été mesurées pour les fibres de lisier et d'ensilage utilisés pour formuler les 3 premiers mélanges (N.1, 2 et 3). Ces caractérisations ont été faites en respectant le protocole suivant :

1. Le lisier a été lavé par de l'eau du robinet sur un tamis de 25 µm afin de séparer la partie liquide, c'est-à-dire la matière organique non fibreuse, de la partie solide composée notamment des fibres. Les fibres ont été ensuite récupérées pour effectuer l'étape 2.
   Par ailleurs, l'ensilage a été plongé dans l'eau pendant plusieurs jours avant d'effectuer l'étape 2. Cela permet aux fibres d'ensilage d'atteindre leurs volumes maximaux qui représentent leurs volumes dans le méthaniseur.
2. Des photographies des fibres, du lisier et de l'ensilage, sont prises au moyen de la caméra «Axiocam ICc 5» équipant le microscope «Discovery.V20» utilisé pour les observations. La caméra a été utilisée pour prendre environ 120 photos, en utilisant la méthode de mosaïque, qui couvrait un champ de vision d'environ 15*10 cm. Le logiciel «AxioVision» a été utilisé ensuite pour regrouper ces photos en une seule image.
3. Les longueurs et les largeurs des fibres sont ensuite mesurées par le logiciel de traitement d'images «ImageJ» développé par « National Institutes of Health » aux Etats-Unis et disponible gratuitement en ligne.

III.3.2. Mesure du seuil par scissométrie

III.3.2.1. Principe de mesure du scissomètre

Les viscosimètres rotatifs font partie des moyens employés pour la mesure des propriétés rhéologiques des matériaux. L'association de ces derniers avec un scissomètre est couramment utilisée pour mesurer les seuils d'écoulement des matériaux. Plusieurs auteurs ont utilisé cette méthode avec succès pour mesurer le seuil d'écoulement de fumier (Amiri, Arabhosseini, & Kianmehr, 2012), (Zafari & Kianmehr, 2012), de pâte de tige de maïs (Stickel et al., 2009) de biomasse lignocellulosique concentrée en tige de maïs (Samaniuk et al., 2011) et des boues prétraitées (Wiman et al., 2011). L'avantage du scissomètre dans ce cas est d'empêcher le glissement des particules fibreuses sur le rotor mobile lors de la mesure. En effet, les particules fibreuses restent prisonnières entre les lames de la pale lors de la mesure.

La technique employée pour mesurer le seuil met en œuvre une rotation lente à vitesse contrôlée d'une pale constituée de plusieurs lames (minimum 2) dans un échantillon et la mesure du couple qui en résulte, en fonction du temps. Le couple maximum et les dimensions de la pale utilisée permettent d'évaluer le seuil.

Les hypothèses considérées pour convertir le couple en contrainte sont détaillées dans plusieurs articles (Liddel & Boger, 1996) ; (Barnes & Carnali, 1990) ; (Keentok et al.,1985) ; (Alderman et al.1991) ; (Avramidis & Turian, 1991) ; (James, Williams, & Williams, 1987) ; (Dzuy & Boger, 1985).

Pour nos expériences, nous avons utilisé une pale de quatre lames, totalement immergée dans le matériau à tester et nous avons respecté les rapports dimensionnels proposés par (Nguyen & Boger, 1985) (**Figure II.7**). Dans ce cas, le seuil d'écoulement mesuré par cette méthode peut être calculé à partir de l'équation ci-dessous

$$\tau_0 = \frac{C_{max}}{K} \qquad \textit{Eq 5}$$

K étant la constante de cisaillement de la pale (m^3) définie dans l'équation ci-dessous

$$K = \frac{\pi . D^3}{2} . \left(\frac{H}{D} + \frac{1}{3}\right) \qquad \textit{Eq 6}$$

Où τ_0 est le seuil de contrainte (Pa), C_{max} est le couple maximum mesuré (N.m), D est le diamètre de la pale (m) et H est la hauteur de la pale (m).

III.3.2.2. Appareils utilisés :

III.3.2.2.1. Rhéomètre rotatif de laboratoire

Un rhéomètre de laboratoire ARG2 de chez TA instruments a été utilisé pour réaliser les mesures de scissométrie. Il permet de mesurer la contrainte de cisaillement en réponse au gradient de cisaillement imposé et à différentes températures. Il peut mesurer un couple maximum de 0,2 N.m. Le **tableau III.3** liste les dimensions du récipient cylindrique et de la pale du scissomètre utilisée.

Tableau III.3 : *Dimensions de la pale et de la cellule utilisées pour les mesures du seuil d'écoulement par scissomètre en utilisant l'ARG2*

	Diamètre (mm)	**Hauteur (mm)**	**Note**
pale	32	33	La pale est totalement noyée dans le récipient
récipient cylindrique	85	105	

Ce système de mesure du seuil a été validé sur un gel de Carbopol modèle, dont le comportement rhéologique a également été caractérisé en géométrie cône-plan sous conditions de cisaillement contrôlées. Les seuils obtenus par les deux méthodes sont de 149 Pa avec le cône-plan et 154 Pa par le scissomètre, soit un écart de 3%. Nous considérons cette validation suffisante.

Une grille plastique a été collée sur la paroi du récipient cylindrique comme un système d'anti-glissement (**Figure III.2**). L'efficacité de ce système a été vérifiée en observant le mouvement d'une ligne d'un traceur blanc sur la surface libre cisaillée lors de la rotation de la pale tel que décrit dans (Magnin & Piau, 1987).

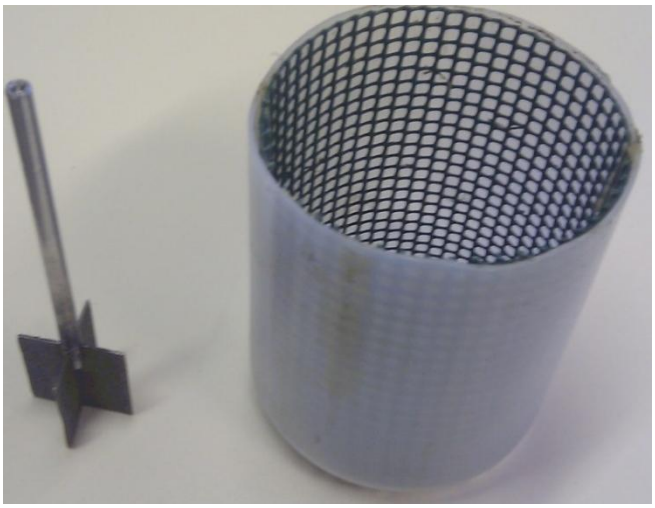


Figure III.2 : *La pale et la cellule utilisées pour les mesures du seuil par ARG2. Système d'anti glissement collé sur les parois de la cellule.*

III.3.2.2.2. *Rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats (RGDS)*

Ce rhéomètre rotatif, détaillé dans le chapitre II, a été conçu et réalisé au laboratoire Rhéologie et Procédé dans le cadre de la thèse. Il permet de travailler sur des échantillons de grands volumes. Les dimensions du récipient et de la pale utilisée dans ce travail sont données dans le **tableau III.4**.

Tableau III.4 : *dimensions de la pale et du récipient utilisés pour les tests de cissomètrie par RGDS*

	Diamètre (mm)	**Hauteur (mm)**	**Note**
pale	80	120	La pale est totalement noyée dans la cellule
récipient	200	240	

Pour valider les mesures de seuil réalisées au RGDS, nous les avons comparées à celle obtenues avec un rhéomètre commercial, DHR3 de chez TA instruments, sur une suspension aqueuse d'argile naturel blanche ni thixotrope ni gonflante de marque 'Solargil'. Les détails de cette validation sont présentés dans le chapitre II. Les deux techniques donnent des résultats similaires.

III.3.2.2.3. Chauffage des échantillons

Le chauffage des échantillons a été effectué, avant de réaliser les tests rhéométriques, dans un bain marie externe pour atteindre la température souhaitée.

III.3.3. Distribution des états de l'eau dans la matière par séchage

III.3.3.1. Principe de la technique de séchage à température constante

Les différents types d'eau dans les matériaux étudiés sont principalement distingués par le type et l'intensité de leurs liaisons physiques ou chimiques aux parties solides. Dans ce travail nous allons diviser la teneur en eau en deux parties :

- Eau "liée", qui interagit avec les parties solides chimiquement et/ou physiquement.
- Eau "libre", qui est la teneur en eau sans interaction chimique et/ou physique avec les particules solides.

(Garcia-Bernet et al., 2011) ont détaillé les types d'eau liée comme suit :

- L'eau interstitielle ou capillaire : l'eau piégée à l'intérieur des crevasses et des espaces interstitiels sur la surface des particules et des organismes bactériennes.
- Eau vicinale ou eau de surface : plusieurs couches de molécules d'eau sont tenues étroitement à la surface des particules par des liaisons hydrogène (adsorption et adhésion).
- L'eau d'hydratation : c'est l'eau liée chimiquement aux particules et qui ne peut être extraite que par l'énergie thermique.

La détermination de la teneur en eau liée en utilisant la technique du séchage est basée sur l'analyse de la courbe de séchage illustrée dans la **figure III.3**. Cette courbe peut être tracée suite aux mesures de la perte de la masse de l'échantillon lors du séchage en fonction du temps. Ces mesures peuvent être exploitées pour tracer l'évolution du flux d'évaporation en fonction de la teneur en eau en utilisant les formules suivantes :

$$Flux\ d'évaporation\ (g\ eau/s) = \frac{m_t - m_{t+1}}{\Delta t} \qquad Eq\ 7$$

$$Teneur\ maximal\ en\ eau\ (WC)\left(\frac{g\ eau}{g\ MS}\right) = \frac{m_{wc} - m_f}{m_f} \qquad Eq\ 8$$

La MS au point WC peut être calculée en utilisant la formule ci-dessous

$$MS_{wc} = \frac{m_f}{m_{wc}} \qquad Eq\ 9$$

Où

m_t la masse de l'échantillon à l'instant (t).

m_{t+1} la masse de l'échantillon à l'instant t + 1.

m_f la masse finale de l'échantillon (la masse de la matière sèche).

m_{wc} la masse de l'échantillon au moment de chute de la vitesse d'évaporation.

MS_{wc} représente la MS de l'échantillon quand il ne contient que de l'eau liée.

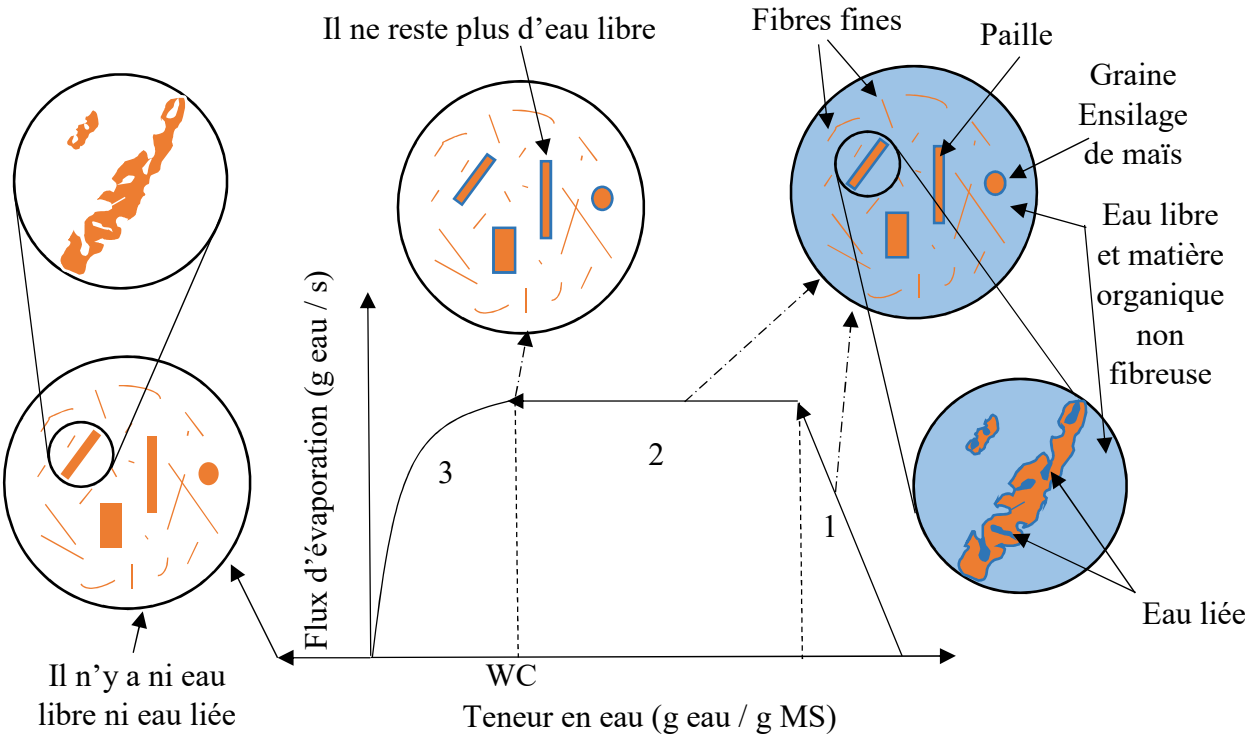


Figure III.3 *: Présentation schématique de la courbe de séchage*

1) période de la croissance de la température ;
2) flux d'évaporation constant (eau libre) ;
3) flux d'évaporation diminue (l'eau liée)

Il est supposé que le flux d'évaporation de l'eau dépend du type de liaison entre l'eau et les particules. L'analyse de la courbe de séchage, représentée en **figure III.3**, décrit l'évolution du flux d'évaporation par rapport à la teneur en eau et montre typiquement 3 phases différentes (Vaxelaire & Cézac, 2004); (García-Bernet et al., 2011). La 1ère période représente un accroissement du flux d'évaporation à cause de l'augmentation de la température suivi par une stabilisation théorique de ce flux d'évaporation lorsque la température devient stable (période

2). Ces deux premières périodes correspondent à l'évaporation d'eau libre qui ne possède pas des liaisons chimiques ou physiques avec les particules solides (l'eau libre est représentée en bleu claire dans la **figure III.3**). Cette phase d'évaporation d'eau libre se termine au point WC qui représente la frontière entre l'eau libre et l'eau liée et qui est déterminée par une diminution du flux d'évaporation. En effet, cette décroissance est attribuée à la difficulté d'évaporation de ce type d'eau « liée » à cause de ses liaisons physiques et chimiques avec les particules solides (l'eau liée est illustrée en bleu foncé autour et dans les particules solides dans la **figure III.3**). La teneur en humidité au point de transition (WC), entre la période 2 et la période 3, qui représente la masse d'eau liée au point critique/la masse de la matière sèche de l'échantillon, est généralement retenue pour déterminer la teneur en eau liée.

III.3.3.2. Appareil utilisé et essais effectués

L'appareil utilisé pour effectuer le test de séchage est un analyseur d'humidité électronique «Sartorius MA40». L'appareil est connecté à un ordinateur permettant de représenter en temps réel la perte de masse en fonction du temps. Ces données ont servi à tracer la courbe représentée en **figure III.3** en utilisant les équations **Eq 7**, **8** et **9**. Une coupelle d'aluminium de 9 cm de diamètre et de 0,5 cm de hauteur a été utilisée pour réaliser chaque essai.

L'indépendance entre la masse de l'échantillon utilisé et la teneur en eau liée (WC) a été confirmée suite à une étude de l'influence de la masse de l'échantillon de 3 à 6 g. Les résultats sont représentés en **annexe III.1**.

Nous allons adopter l'utilisation d'une masse de 3 g pour les tests de séchage de nos mélanges. Ce qui est également recommandé par (García-Bernet et al., 2011).

Pour étudier l'effet du changement des fractions des différents constituants des trois mélanges étudiés N1, N2 et N3, le test de séchage a été répété trois fois pour chaque mélange afin d'avoir des résultats représentatifs de l'hétérogénéité de l'échantillon. MS_{wc} moyenne a été calculée pour chaque mélange. Le protocole suivi pour effectuer le test de séchage est détaillé dans l'**annexe III.2**.

III.4. Résultats et discussions

Nous avons choisi de présenter les résultats de ce travail dans l'ordre suivant :

1. Tout d'abord, les caractéristiques granulométriques du lisier et de l'ensilage formulant les trois premiers mélanges ont été représentées. Ces caractéristiques sont des éléments permettant de comprendre et d'expliquer les résultats présentés dans l'étape 3.
2. Ensuite, la pertinence de la MS comme un paramètre utilisé pour estimer le seuil d'écoulement a été étudiée. Les 3 mélanges N1, N2 et N3 ayant une MS identique ont été utilisés. La MS_{wc} de ces trois mélanges a été aussi déterminée et discutée.
3. Enfin, l'évolution physique de la structure du mélange N.3 et N.4 en fonction de la MS et un autre paramètre pertinent a été discutée.

III.4.1. Granulométrie et morphologie des suspensions étudiées

III.4.1.1. Granulométrie du lisier et d'ensilage

La **figure III.4** montre des photographies des fibres du lisier (**figure III.4 : A et B**) et de l'ensilage (**figure III.4 : C, D, et E)**.

Après l'analyse de ces photos par le logiciel « ImageJ », nous avons décidé de ne pas prendre en compte les fibres ayant une largeur < à 10 µm car d'une part, elles sont difficiles à mesurer et d'autre part, nous avons supposé qu'elles possèdent un effet rhéologique négligeable par rapport aux fibres plus larges.

Le nombre total de fibres mesurées est d'environ 700 fibres pour le lisier et idem pour l'ensilage. Ceci représente la totalité des fibres dans les photographies de l'ensilage et environ 25% des fibres de la photographie A qui concerne le lisier.

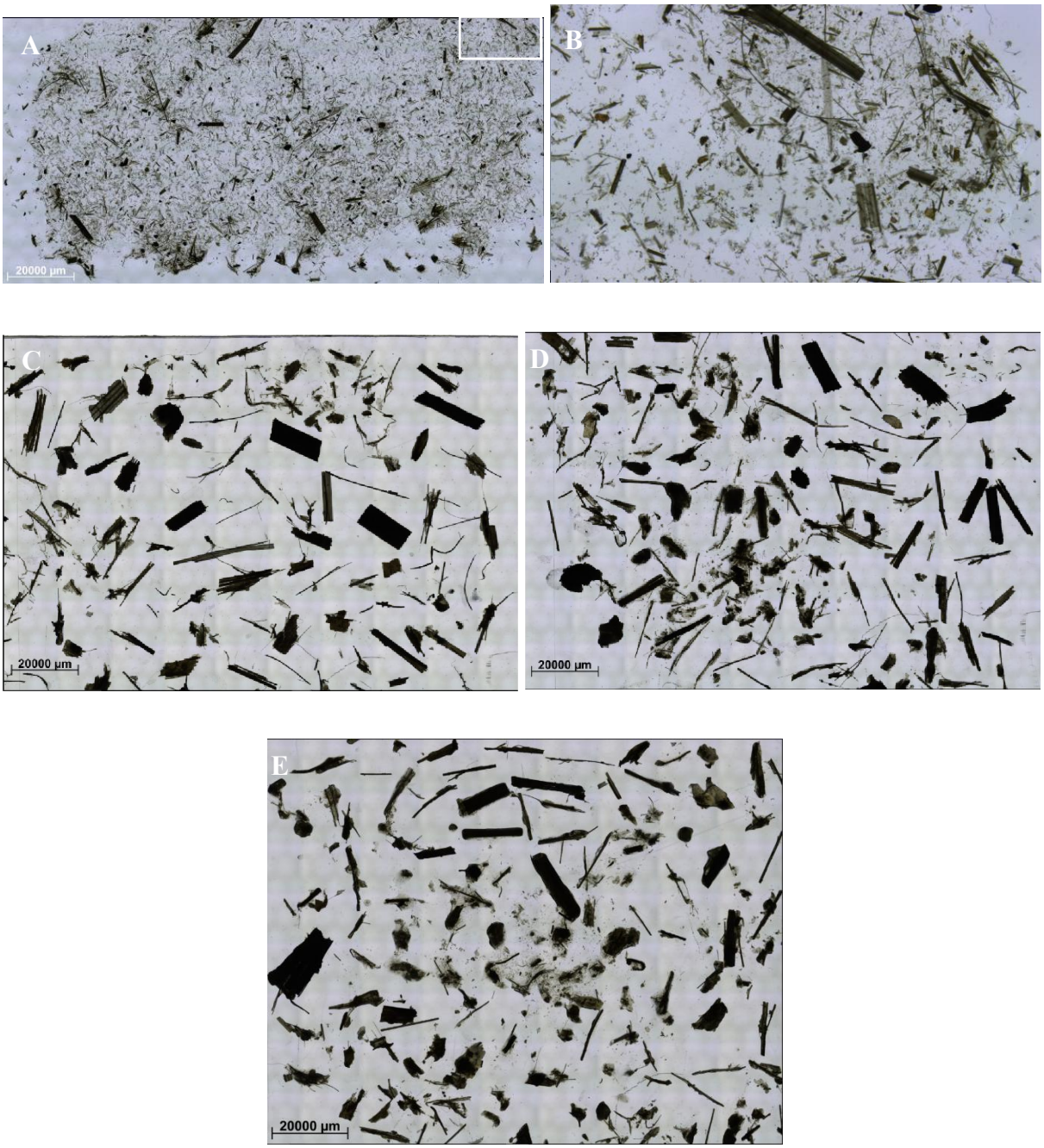


Figure III.4 : *Photographies de la caractérisation du lisier et de l'ensilage sous le microscope. A) Photographie du lisier. B) Photographie du rectangle blanc dans la photographie A. C – D – E) Photographies de l'ensilage.*

Les **figures III.5** et **III.6** quantifient les observations illustrées dans la **figure III.4**. La **figure III.5** montre, pour le lisier et l'ensilage, la répartition de la longueur en fonction de la largeur des fibres.

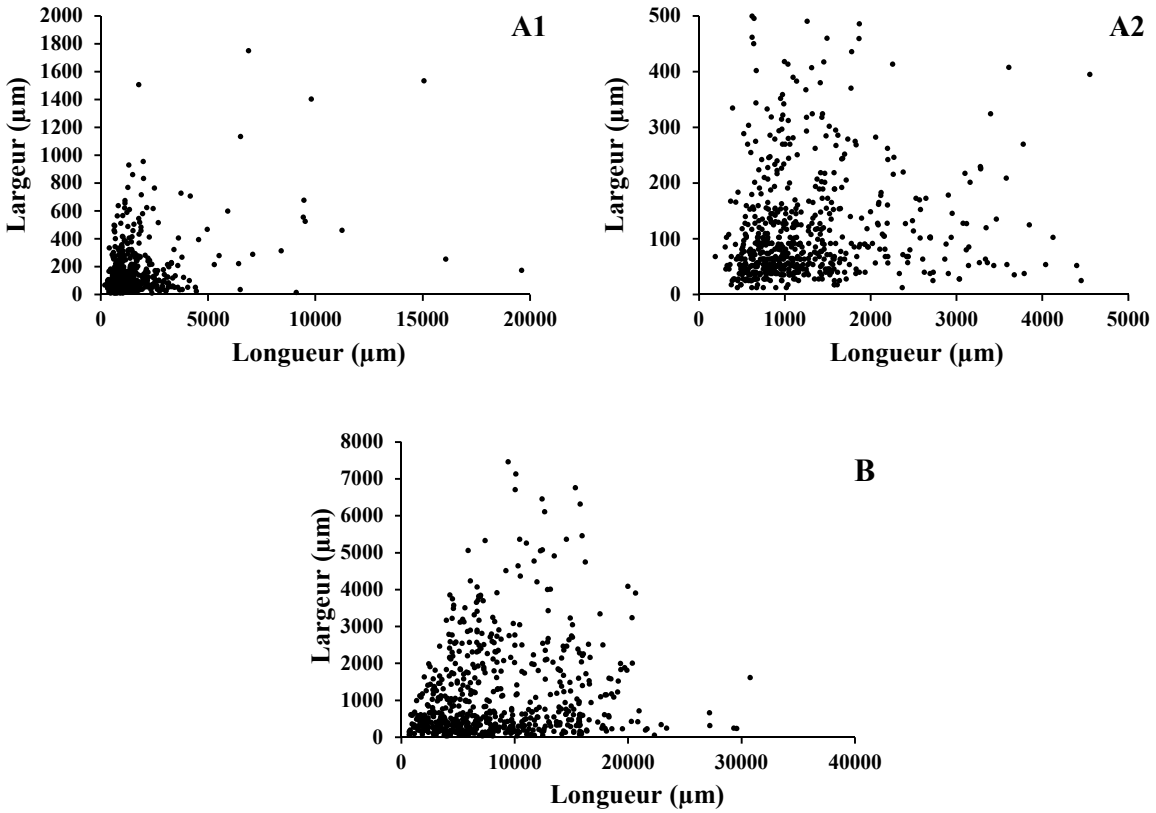


Figure III.5 : *Largeur en fonction de la longueur pour les fibres issues du lisier [A1 et A2 (échelle plus petite)] et d'ensilage (B).*

La **figure III.5** montre :

- Une relativement large distribution des longueurs et des largeurs des fibres.
- Il semble ne pas avoir de corrélation entre les longueurs et les largeurs.
- Les fibres d'ensilage sont généralement plus longues et plus larges que les fibres du lisier. Le **tableau III.5** donnant les moyennes arithmétiques qui confirment ces observations.

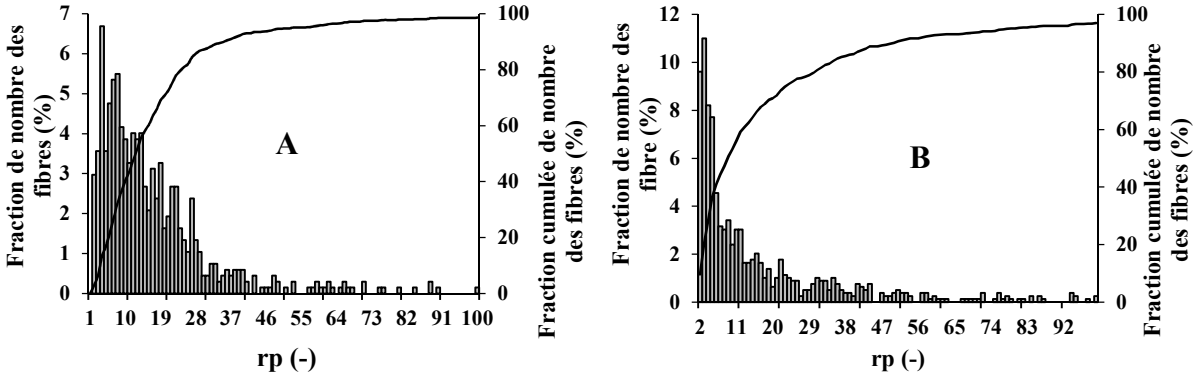


Figure III.6 : *Classification des fibres selon r_p pour le lisier (A) et l'ensilage (B).*

La **figure III.5** montre, pour les fibres du lisier et de l'ensilage, la fraction unitaire et cumulée de nombre de fibre correspondant à chaque r_p [r_p = Longueur de la fibre (L) / largeur ou diamètre de la fibre (d)] par rapport au nombre total. Le r_p moyen (r_{p50}) considéré dans ce cas est celui qui correspond à 50% de la fraction cumulée. Le **tableau III.5** donne les valeurs du r_{p50} pour le lisier et l'ensilage. Il donne également la moyenne arithmétique du r_p calculée pour la totalité des fibres du lisier et d'ensilage.

Tableau III.5 : *Rapport d'aspect r_p moyens des fibres du lisier et de l'ensilage*

	r_p moyenne arithmétique	**r_{p50} du nombre accumulé**
Lisier	18,5	13
Ensilage	20	8

Le **tableau III.5** montre que le rapport d'aspect moyen varie de 8 à 20 selon la définition adoptée. Ces valeurs ont été utilisées ultérieurement dans la discussion de l'évolution physique du mélange N.3 au paragraphe III.4.3.2.

Les fractions de nombre de fibres en fonction de la longueur et de la largeur des fibres sont également illustrées dans la figure **III.14** en **annexe III.3** pour le lisier et l'ensilage.

III.4.1.2. La fraction volumique maximale de fibres ($F_{v\ max\ fibre}$)

Le but de ce chapitre est d'estimer, en utilisant les résultats d'analyse granulométrique, la fraction volumique maximale de fibres ($F_{v\ max\ fibre}$) dans les mélanges étudiés en se basant sur la revue bibliographique présentée dans l'**annexe III.4**.

L'examen de l'analyse bibliographique, représentée dans l'**annexe III.4**, montre que :

- Les fractions volumiques maximales prévues dans nos mélanges sont entre 20 et 25 % pour r_p = 20 et environ 45% pour r_p = 8.
- La $F_{v\ max\ fibre}$ augmente en diminuant le r_p qui peut être réalisé en hachant les fibres (voir chapitre IV).

C'est utile de rappeler ici que la revue bibliographique détaillée en **annexe III.4** concerne uniquement les suspensions fibreuses à r_p monodisperses qui n'est pas le cas des matériaux utilisés dans la méthanisation. La fraction volumique maximale des fibres polydisperses ($F_{v\ fibre\ humide}$) dans ces matériaux peut être supérieure à celles monodisperses ayant un r_p égal au r_p moyen des fibres polydisperses car, pour des fibres polydisperses, les petites fibres peuvent remplir les espaces vides entre les grandes fibres.

III.4.2. Évolution du seuil et de la MS_{wc} en fonction des fractions des différents constituants

Les seuils d'écoulement pour les trois mélanges, N.1, 2 et 3, ont été mesurés à 37 °C en utilisant le RGDS. Cette température représente celle du réacteur utilisé par Maxime Dooms (Dooms, 2017) lors de son doctorat à l'INSA de Lyon. Les valeurs obtenues sont présentées en **figure III.7-A.** Le protocole suivi pour effectuer le test de scissométrie est détaillé en **Annexe III.5.**

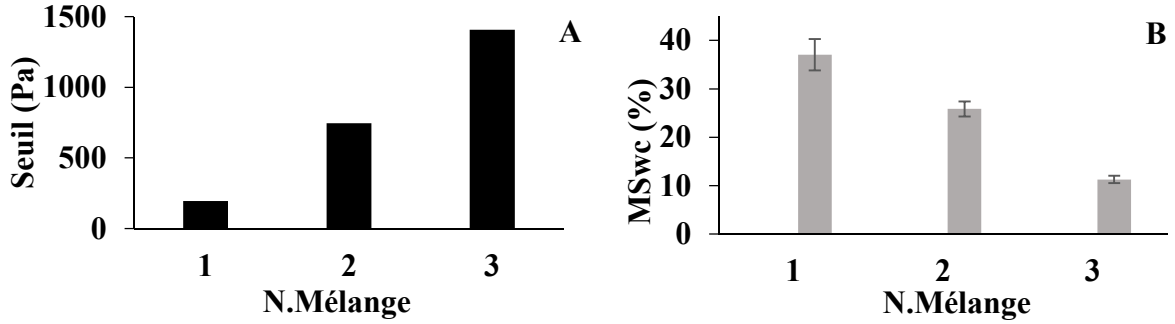


***Figure III.7** : Seuil de contrainte mesuré à 37 °C (A) et la MS_{wc} (B) pour les 3 mélanges.*

Les seuils d'écoulement pour les trois mélanges varient clairement alors que les trois mélanges ont la même MS = 12,8%. Ces résultats mettent en évidence que la MS n'est pas un paramètre pertinent pour pré-estimer le seuil d'écoulement des divers substrats.

Pour chercher le paramètre pertinent, la MS_{wc} pour ces trois mélanges a été déterminée (**figure III.7-B)** à partir des tests de séchage. Pour chaque mélange, l'essai de séchage a été répété trois fois, la moyenne a été prise et l'écart-type a été calculé et illustré sur la **figure III.7-B**. Cette figure montre que les valeurs de MS_{wc} varient de 11,25% pour le mélange N.3 à 37 % pour le mélange N.1. Ces valeurs ne sont pas identiques bien que les mélanges aient la même MS. La comparaison entre la **figure III.7-A et B** montre que le seuil d'écoulement augmente en diminuant la MS_{wc}. Nous pouvons donc considérer que la MS_{wc} est un paramètre sensible pour la rhéologie.

Les résultats du seuil et de la MS_{wc} montrent donc que le fait de modifier les fractions des constituants a entrainé un changement des valeurs de MS_{wc} et des seuils.

L'augmentation de la F_m d'ensilage (0% pour le mélange N.1 ; 11% pour N.2 et 30 % pour N.3) a conduit à une augmentation du seuil d'écoulement et à une baisse de la MS_{wc}. En effet, l'augmentation de la F_m d'ensilage qui est une matière spongieuse caractérisée par sa propre MS_{wc} = 8,4 % conduit à une augmentation de la fraction massique d'eau liée au mélange

et par conséquent à une diminution de la fraction massique et volumique d'eau libre dans ce mélange. La diminution de la fraction d'eau libre conduit à deux phénomènes :

Le premier est une augmentation de la fraction volumique des particules fibreuses solides qui entraine à son tour une augmentation des contacts entre les particules fibreuses.

Le deuxième est la diminution de la lubrification entre ces fibres végétales qui conduit à augmenter le frottement entre ces particules.

Ces deux phénomènes augmentent la contrainte nécessaire pour mettre la matière en mouvement correspondent au seuil d'écoulement.

III.4.3. Évolution du seuil en fonction de la MS, de la $F_{v\ fibre\ humide}$, et de la $F_{m\ eau\ libre}$ pour un échantillon donné

III.4.3.1. Résultats rhéométriques

Comme nous l'avons écrit dans l'introduction de ce chapitre, il nous paraît que la $F_{v\ fibre\ humide}$ possède un rôle significatif dans l'évolution du seuil d'écoulement. Pour cela, nous avons étudié ici l'évolution du seuil d'écoulement du mélange N.3, mesuré à température ambiante (17 °C), en fonction de la MS et la fraction volumique des fibres humides **(figure III.8)**

Nous avons fait varier la MS de cet échantillon selon le protocole suivant :

- pour augmenter la MS : écraser les fibres pour en faire sortir le liquide prisonnier,
- pour diminuer la MS : ajouter de l'eau et homogénéiser l'échantillon.

La $F_{v\ fibres\ humide}$ a été mesurée à une MS donnée puis a été calculée, en utilisant la loi classique de dilution de suspension, représentée par l'équation ci-dessous, pour les autres MS.

$$F_{v2} = F_{v1} * \frac{MS_2}{MS_1} \qquad \textit{Eq 10}$$

Le protocole suivi pour effectuer le test de scissométrie est détaillé en **annexe III.5**.

Plusieurs mesures préliminaires du seuil d'écoulement de ces matériaux, effectuées sur le mélange N.4 et mentionnées en **Annexe III.6**, ont montré que l'incertitude liée à la répétabilité est inférieur de 3%. Ces incertitudes sont très faibles notamment pour ces matériaux hétérogènes et complexes. Nous avons donc décidé de ne réaliser qu'une mesure du seuil pour chaque MS du mélange N.3 étudié ci-dessous.

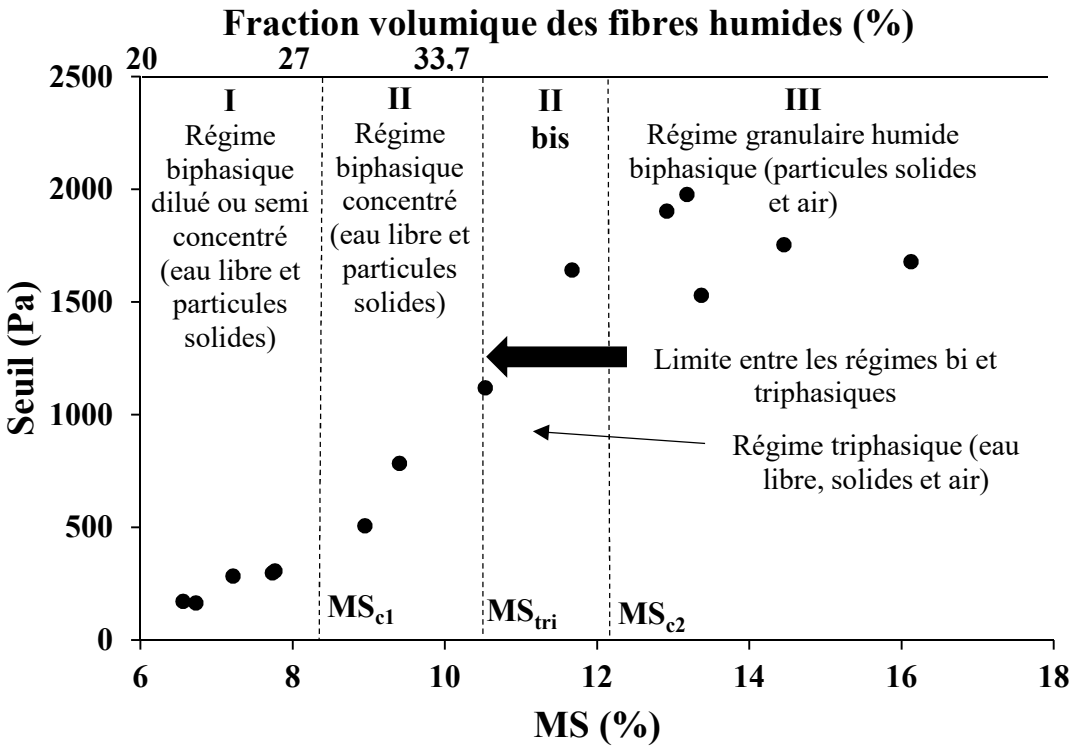


Figure III.8 : *Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la $F_{v\ fibres\ humides}$ pour le mélange N.3*

La **figure III.8** montre :

- Deux MS critiques : MS_{c1} vers 8,5% et MS_{c2} vers 12,25%.
- Forte évolution du seuil entre MS_{c1} et MS_{c2}. En deçà de MS_{c1}, la décroissance du seuil est faible. Au-delà de MS_{c2} l'évolution du seuil est beaucoup moins rapide avec la MS. Ces MS critiques correspondent à des changements de structure des suspensions associés à des comportements rhéologiques différents.
- Un changement du régime du milieu a été observé visuellement à MS_{tri} qui présente la frontière entre un régime biphasique (avant MS_{tri}) et un régime triphasique (au-delà de MS_{tri}).

Afin de confirmer la forme de la courbe d'évolution du seuil en fonction de la MS, le mélange N.4 a été testé comme une autre suspension fibreuse (courbe présentée en **annexe III.6**). Nous avons observé que ces matériaux possèdent pratiquement la même forme de la courbe.

La description détaillée de la **figure III.8** est représentée dans le paragraphe ci-dessous.

III.4.3.2. Description de l'évolution physique du milieu lors des évolutions de MS et de la $F_{v\ fibre\ humide}$

Nous détaillons ci-dessous nos observations et nos analyses de l'évolution physique et rhéologique associée à l'augmentation de MS. Nous proposons le scénario suivant en respectant les quatre étapes représentées dans la **figure III.8**. Nous insistons ici que ces explications sont originales et nouvelles dans ce domaine sauf si un auteur est cité.

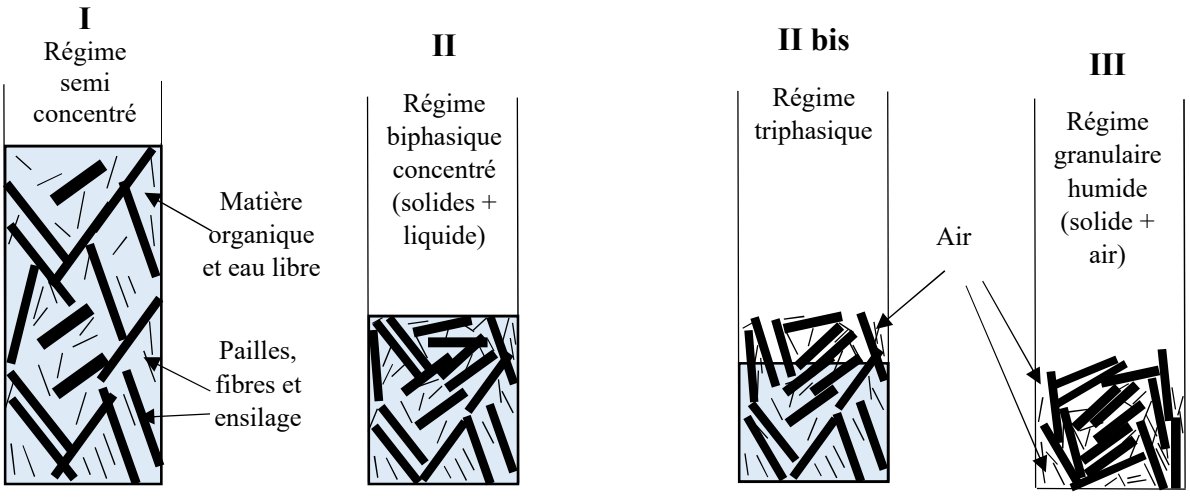


Figure III.9 *: Evolution physique du milieu lors des évolutions de MS et de la fraction volumique des fibres*

Lors des mesures du seuil du mélange N.3 à différentes MS, nous avons observé l'absence du biogaz. En effet, cela est dû à deux raisons principales :

- Cet échantillon est un mélange de lisier et d'ensilage non fermentés. Donc, ils ne produisent pas encore de biogaz.
- Les mesures ont été effectuées à 17 °C et en conditions aérobies.

Pour ces deux raisons le biogaz n'est pas discuté ci-dessous.

Le seuil dans notre système dépend de deux éléments principaux :

- Les interactions physiques entre les particules fibreuses : contacts, collisions, frottement, enchevêtrement, etc.
- La lubrification entre les fibres due à la matrice liquide représentée par la suspension de la matière organique non fibreuse.

Ces deux paramètres sont les éléments clés pour expliquer les étapes détaillées ci-dessous

Étape I (figure III.9– I) : En dessous de MS_{c1}, le milieu est biphasique composé d'une suspension de la matière organique non fibreuse et de particules solides fibreuses et spongieuses. Les particules solides sont suffisamment diluées et interagissent entre elles principalement par collisions forcées et frottement léger et lubrifié par la matrice liquide. Ces deux éléments, la dilution et la lubrification, jouent le rôle justifiant un seuil faible dans ce régime. En augmentant la MS, la fraction de solides dans le milieu augmente de plus en plus, ce qui provoque une transition du régime semi concentré au régime concentré. Nous supposons que cette transition se produit pour MS_{c1}.

MS_{c1} : Cette valeur critique de la MS peut être expliquée grâce aux études faites sur la rhéologie des suspensions fibreuses utilisées dans la papeterie. Selon ces études, le régime des suspensions fibreuses peut être caractérisée par le nombre d'encombrement N_c qui représente le nombre moyen de fibres dans un volume sphérique de diamètre égal à la longueur de fibre (L) (Mason, 1950a) ; (Mason, 1950b) ; (Mason, 1954) ; (Kerekes & Schell, 1992) ; (Dodson, 1996). Ces auteurs ont représenté le N_c par l'équation ci-dessous :

$$N_c = \frac{2}{3}\, r_p^2\, F_v \qquad \textit{Eq 11}$$

Trois régimes de comportement de suspension fibreuse peuvent être distingués comme indiqué dans le **tableau III.6** (Kerekes & Schell, 1992) qui ont travaillé sur des fibres diverses de pâte et de nylon ayant $20 < r_p < 70$ et (Soszyński, 1987) qui ont travaillé sur des fibres droites et rigides.

Tableau III.6 *: Classification des régimes d'écoulement des suspensions selon Nc*

Régime	Type du contact de la fibre	Nc
Dilué	Collisions fortuites	Nc < 1
Semi-concentré	Collisions forcées	1 < Nc < 60*
Concentré	Contacts continus	Nc > 60*
* Valeur attribuée à (Kerekes & Schell, 1992)		

Pour le lisier et l'ensilage, la caractérisation granulométrique détaillée dans le paragraphe **III.4.1.1** a montré que le r_p moyen de nos fibres est entre 8 et 20. La caractérisation volumique a montré que la $F_{v\ fibre\ humide}$ de ce mélange à MS ≅ MS_{c1} est d'environ 28,5 %. A partir de ces valeurs, le nombre N_c à MS_{c1} a été calculé en utilisant l'équation **Eq 11**. Ce nombre est de 12,2 et de 76 pour r_p de 8 et 20 respectivement. Nous observons que les valeurs des nombre d'encombrement obtenus sont en accord avec la valeur 60 représentant la limite entre le régime semi-concentré et concentré dans les résultats présentés dans le **tableau III.6** ci-dessus.

Etape II (figure III.8 et figure III.9) : Le régime dans cette étape est biphasique, liquide et solide, concentré en solides. L'augmentation de MS dans ce régime par la diminution de la fraction d'eau libre conduit à :

- Une augmentation de la $F_{v\ fibre\ humide}$ dans le milieu qui augmente à son tour le nombre d'encombrement. Dans ce cas, N_c calculé pour r_p = 20 augmente de 76 pour MS_{c1} qui présente une $F_{v\ fibre\ humide}$ = 28% à 93 pour MS_{tri} qui présente une $F_{v\ fibre\ humide}$ = 35%.
- Augmentation de la viscosité de la matière organique non fibreuse qui existe sous forme d'une suspension entre les fibres.

Ce système est équivalent à une suspension épaisse et de multiples interactions y prévalent (Coussot, 2005). Contrairement au régime précédent où les contacts entre les fibres étaient principalement des collisions forcées, à ce régime concentré, les fibres seront en contact continu et les interactions dominantes dans ce cas sont (**figure III.10**) :

- Frottement lubrifiés par une mince couche de la matrice liquide (Coussot, 2005) ; (Stickel & Powell, 2005) ; (Viamajala., et al 2009). L'augmentation de la viscosité

de la matrice liquide, la suspension de la matière organique non fibreuse, augmente la force de frottement entre les fibres.

- Enchevêtrement des fibres, ce qui peut conduire à la formation de réseaux de fibres ou de flocons (Switzer & Klingenberg, 2004) ; (Viamajala., et al 2009).

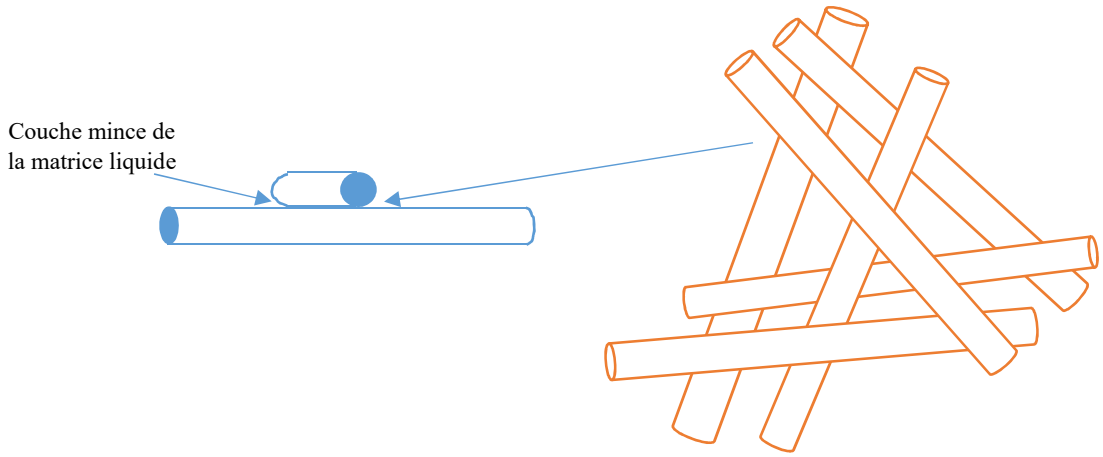


Figure III.10 : *Interaction entre les fibres dans le régime concentré. À gauche : contact continu entre les fibres, à droite : enchevêtrement*

La forte augmentation de seuil en fonction de la MS dans ce régime est due à ces deux interactions entre les particules solides fibreuses.

MS_{tri} (figure III.8) : nos observations visuelles montrent que l'étape II se poursuit jusqu'à atteindre MS_{tri} qui représente le moment de l'absence de la matrice liquide à la surface de l'échantillon. Ce point représente donc la limite entre le régime biphasique, composé des fibres et de la matrice liquide, et le régime triphasique où l'air commence à prendre la place de la matrice liquide. La $F_{v\ fibre\ humide}$ correspondant à MS_{tri} représente donc la fraction volumique maximale ($F_{v\ max}$) des fibres dispersées en manière aléatoire dans le milieu. Cette valeur est d'environ 35 % ce qui est compatible avec les valeurs calculées dans le chapitre III.4.1.2 (25 et 45%). Au-delà de cette fraction maximale des fibres, le milieu n'est plus saturé et le volume observé dans ce cas est un volume apparent, et non un volume effectif.

Etape II-bis (figure III.8 et figure III.9) : Les observations visuelles lors du test ont montré qu'au-delà de MS_{tri}, le milieu devient triphasique composé d'eau libre, solides et air. En effet, la fraction d'eau libre diminue de plus en plus laissant l'air pénétrer entre les particules solides fibreuses. Cet effet progresse des couches supérieures vers les couches inférieures. Il n'y a pas donc d'eau libre qui aide les particules solides fibreuses à flotter dans les couches supérieures. Par conséquence, les couches supérieures compactent, sous l'effet de leurs propres poids, les couches inférieures et le nombre d'encombrement de l'ensemble croît. L'observation

visuelle a montré que le volume total de l'échantillon, dans ce régime, diminue à mesure que la MS augmente.

La diminution progressive de la fraction d'eau libre dans le milieu diminue également la lubrification entre les particules solides de plus en plus. La viscosité de la suspension de matière organique non fibreuse augmente à mesure que la MS augmente. Le frottement et l'enchevêtrement deviennent dans ce cas prédominants (Coussot, 2005) ; (Stickel & Powell, 2005) car il y a des contacts continus peu lubrifiés entre les particules solides. Ce phénomène se poursuit jusqu'à atteindre MS_{c2}.

MS_{c2} : L'observation visuelle à cette MS montre qu'il ne reste plus d'eau facile à évacuer dans l'échantillon. Au-delà de MS_{c2}, nous avons observé également que le volume d'échantillon dans la cellule de scissométrie est resté stable en augmentant la MS. Nous supposons donc qu'à MS_{c2} l'air a remplacé la totalité d'eau libre et que le système devient granulaire humide sans d'eau libre. L'eau restée dans le milieu est de l'eau liée. MS_{c2} représente alors la limite entre le régime triphasique (solide, liquide et air) et le régime granulaire humide (particules solides humidifiées et air).

Etape III : L'eau dans le milieu correspond exclusivement à l'eau liée. L'augmentation de la MS est donc due à la perte d'eau liée. Nous avons observé que le volume total de l'échantillon dans la cellule de mesure ne diminue plus, la $F_{v\ \text{fibres humides}}$ et le nombre d'encombrement n'augmentent donc plus. Par conséquent, le seuil n'augmente pratiquement pas (saturation observée en **figure III.8** à partir de MS_{c2}). (Viamajala et al., 2009) ont observé le même phénomène lors des mesures de viscosité pour des suspensions concentrées de canne de maïs (10 – 40%). Leurs figures montrent une stabilité de viscosité apparente mesurée à MS ≅ 25%. Ils ont noté également l'absence de phase continue d'eau libre à des MS entre 30 et 40%. Il est important de noter que cette saturation du seuil d'écoulement, dans ce régime, est conditionnée à l'absence de compactage externe.

Le système, à partir de MS_{c2}, tend à être un milieu granulaire humide. Le frottement n'est plus lubrifié hydrodynamiquement mais tend vers un frottement plutôt sec. Le frottement et l'enchevêtrement sont maximaux dans ce cas à cause de l'absence d'eau libre. De nombreuses paramètres peuvent impacter la rhéologie de ces milieux comme le compactage, la fraction d'air et l'histoire de l'échantillon, etc. De toute façon, ce régime ne représente pas d'intérêt dans la méthanisation à cause de l'importance fondamentale d'eau libre pour l'aspect

biologique où (Forster-Carneiro et al., 2008) a montré une diminution de la production de biogaz et de méthane en augmentant la MS de 20 à 30% dans un procédé de méthanisation des ordures ménagères en voie sèche batch. Pour cela, nous n'avons pas étudié ce régime dans ce travail.

III.4.3.3. Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la fraction massique d'eau libre

Les résultats et la description détaillée ci-dessus ont montré qu'à MS_{c2} l'échantillon ne possède pas d'eau libre. L'eau ajoutée à l'échantillon à ce point-là représente donc l'eau libre dans le milieu. Nous pouvons alors présenter l'évolution du seuil d'écoulement en fonction de la fraction massique d'eau libre ($F_{m\ eau\ libre}$) calculée par l'équation suivante :

$$F_{m\ eau\ libre}(\%) = \frac{masse\ d'eau\ libre}{masse\ totale\ d'échantillon} * 100 \qquad Eq\ 12$$

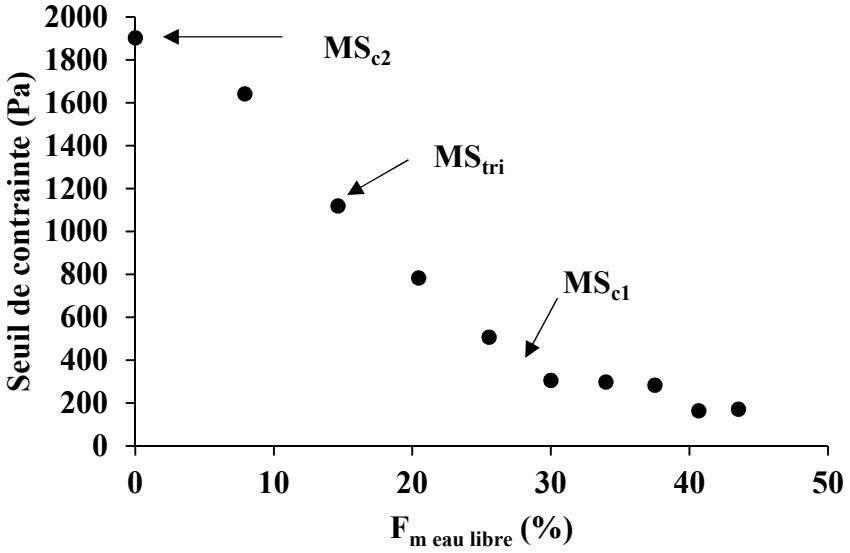


Figure III.11 *: Evolution du seuil de contrainte en fonction de la $F_{m\ eau\ libre}$ pour le mélange N.3*

La figure ci-dessus montre que le seuil d'écoulement diminue rapidement en augmentant la $F_{m\ eau\ libre}$ jusqu'à environ 30%. Au-delà de cette fraction, la diminution du seuil est moins sensible. La diminution rapide du seuil avant MS_{c2} peut être exploitée industriellement pour adopter l'exploitation de l'installation selon la capacité des équipements.

III.4.4. Méthodologie pour prédire la fraction d'eau ajoutée nécessaire pour atteindre MS_{c2}

La discussion précédente a montré que la MS_{c2} représente un point d'intérêt pour la méthanisation agricole en voie sèche pour deux raisons :

- Elle présente la frontière entre le milieu triphasique (solide, liquide et air) et le milieu granulaire humide (particules solides humidifiées et air) où le milieu est plus difficile à mélanger et le mélange est moins contrôlé.
- Elle présente le seuil maximal qu'une matière non compactée peut atteindre en faisant varier la MS.

Pour cela, il est intéressant de pouvoir estimer les fractions massiques des constituants à MS_{c2} sans avoir besoin de tracer la courbe de l'évolution du seuil en fonction de la MS.

Afin de formuler un mélange à MS proche de MS_{c2}, les étapes suivantes peuvent être adoptées :

1. Préparer un mélange avec un excès d'eau et le laisser au moins 24 heures.
2. faire l'essai de séchage pour déterminer WC, puis calculer MS_{wc}, en utilisant l'équation **Eq 9**, qui représente la MS du mélange saturé en eau liée et sans eau libre.
3. A partir de la MS de chaque composant dans le mélange, calculer le taux d'eau qu'il faut ajouter pour arriver à MS_{wc}.
4. Au-delà de ce taux d'eau ajoutée, chaque quantité d'eau supplémentaire, fait entrer le mélange dans la gamme entre MS_{c1} et MS_{c2} où le seuil du produit diminue fortement en fonction de la MS.
5. Pour connaitre le seuil d'écoulement à MS_{c2}, il faut effectuer une mesure du seuil d'écoulement uniquement à ce point-là.

Un exemple numérique est détaillé dans l'**annexe III.7**.

III.4.5. Lois de prédiction du seuil en fonction de la MS entre MS_{c1} et MS_{c2}

La méthode utilisée pour faire varier la MS par ajout d'eau pour la baisser ou en laissant s'écouler l'eau pour l'augmenter conduit à stabiliser le rapport $F_{v\ fibre\ humide}$ / MS. Pour cela, la présentation de l'évolution des résultats rhéologiques en fonction de la MS ou la $F_{v\ fibre\ humide}$ est pratiquement identique. Nous avons donc choisi de présenter l'évolution du seuil d'écoulement en fonction de MS dans ce travail car cette dernière est un paramètre connu, facile à mesurer et très utilisé dans le domaine de la méthanisation.

III.4.5.1. Revue bibliographique

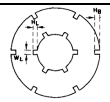
La plupart des auteurs, qui étudient l'évolution du seuil d'écoulement en fonction de MS des fumiers ou la fraction massique des fibres sèche ($F_{m\ fibre\ sèche}$) des produits synthétiques, ont utilisé la loi ci-dessous pour représenter leurs résultats expérimentaux. Leurs résultats sont représentés dans le **tableau III.7**.

$$\tau_0 = a\, MS^b \quad ou \quad \tau_0 = a\, F_{m\ fibre\ sèche}^b \qquad Eq\ 13$$

(Garcia-Bernet et al., 2011) ont, par contre, utilisé la loi ci-dessous pour ajuster leurs résultats expérimentaux. Ils ont mesuré le seuil d'écoulement des déchets solides municipaux en utilisant un appareil de type «test d'affaissement». Ils ont fait varier la MS entre 19 et 37 % pour le même échantillon. Ils ont trouvé une valeur de l'exposant M = 14,9 pour leurs deux échantillons.

$$\tau_0 = J\left[e^{(M\,.\,MS)} - 1\right] \qquad Eq\ 14$$

Tableau III.7 : *a, b et le seuil de contrainte cités dans la bibliographie pour quelques suspensions fibreuses*

Auteur	Suspension de	L_{fibre} (mm)	Technique rhéométrique utilisée	MS ou F_m (%) utilisée	*b* (-)	Seuil (Pa)
(Bennington, Kerekes, & Grace, 1990)	pulpe commerciale	0,6 – 2,5		F_m (1 – 30)	2,31 à 3,56	F_m (3%) : 176 F_m (6%) : 1220
(Swerin, Powell, & Ödberg, 1992)	fibres de bois tendre	2,5 mm	plan-plan	F_m (3 – 8)	2,6	F_m (6,5) : 100 Pa
(Pimenova & Hanley, 2004)	des cannes de maïs hydrolysées	120 µm	Viscosimètre avec une pale hélicoïdal	MS = 5 - 17	4,6	MS (17%) : 22,9 Pa
(Dalpke & Kerekes, 2005)	pulpe	0,9 – 3	Scissomètre	F_m (1,4 - 5,4)	2,35 à 3,96	F_m (2%) : 10 – 170 F_m (4%) : 130 – 950
(Knutsen & Liberatore, 2009)	cannes de maïs prétraitées	Des microns aux millimètres	Scissomètre	MS = 5 - 17	6,0 ± 0,4	F_m (17%) : 2500 ± 500
(Stickel et al., 2009)	biomasses traitées mécaniquement et chimiquement	1 à 2000 µm	Plusieurs techniques	MS = 5 - 30	5,7 ± 0,5	MS=10% : 10 Pa MS=20% : 1000 Pa
(Viamajala et al., 2009)	cannes de maïs	0,177 – 0,841	Géométrie plan-plan avec un entrefer de 1,5 mm	MS = 10 – 40	3,57	Stable à 1500 Pa à partir de MS ≅ 25%
(Derakhshandeh, et al., 2010)	Quatre pulpes commerciales	0,67 – 2,96	Scissomètre	0,5 - 5	b entre 1,1 et 3,3 selon la technique et la suspension. A F_m = 5 % : 100 – 300 Pa	
(Ehrhardt et al., 2010)	des cannes de maïs hydrolysées	300 µm à plus de 20 mm	rhéomètre de couple	MS = 20-25	4	MS=20% : 2 à 6 kPa *
(Samaniuk et al., 2011)	biomasses lignocellulosiques très concentré en tiges des maïs haché	de micromètre aux centimètres	Rhéomètre torque et un scissomètre	MS = 5 - 35	2,77	MS = 20, 25 et 30 % : τ_0 = 31, 40 et 80 kPa $\tau_0 = 2{,}1 \cdot 10^6\ MS^{2,77}$ Simulation : $\tau_0 = 10^{11}\ F_v^{\ 5,2}$, $10^8\ F_v^{\ 4,5}$ et $10^5\ F_v^{\ 3,6}$ pour r_p = 75, 40 et 20 respectivement
(Wiman et al., 2011)	Boues formé à partir des copeaux d'épinette écorcés prétraité	2 – 10 mm	un scissomètre	MS = 4 – 12	Brut : $\tau_0 = 9{,}1 \cdot 10^{-5}\ MS^5$ Haché : $\tau_0 = 1{,}9 \cdot 10^{-6}\ MS^{7,1\pm0,3}$	

* selon la température de l'étape d'hydrolyse.

Nous avons préféré ne pas indiquer les valeurs du facteur (a) car il dépend de la matière elle-même. Aucune étude n'a analysée les raisons de variation du facteur (a).

L'analyse des travaux cités ci-dessus montre que :

- L'exposant (b) pour les suspensions de fibres de bois (pate de papeterie) cité dans la littérature est le plus souvent compris entre 2 et 4 (Swerin et al., 1992); (Dalpke & Kerekes, 2005) ; (Bennington et al., 1990).
- Le seuil de contrainte varie principalement selon la concentration de la suspension (Dalpke & Kerekes, 2005) ; (Bennington et al., 1990) et la taille des particules : comparaison entre (Ehrhardt et al., 2010) et (Pimenova & Hanley, 2004).

III.4.5.2. Résultats et discussions

Nous avons représenté, sur la **figure III.12**, les données expérimentales d'évolution du seuil en fonction de MS pour les mélanges N.3 et N.4 entre MS_{c1} et MS_{c2}. La **figure III.12** représente également les ajustements des points expérimentaux en utilisant :

- D'un côté les lois représentées par les équations **13** et **14** qui ne possèdent pas de sens physique de l'évolution du seuil d'écoulement.
- De l'autre côté, le modèle de percolation (**Eq 15**) qui présente l'évolution du seuil d'écoulement à partir de MS critique (MS_c). En effet, la théorie de ce modèle propose qu'à partir de cette MS_c, le réseau entre dans le domaine concentré. L'exposant d est un paramètre universel caractéristique du mode de connexion du réseau.

$$\tau_0 = c\,(MS - MS_c)^d \qquad \textit{(pour } MS > MS_c\textit{)} \qquad \textit{Eq 15}$$

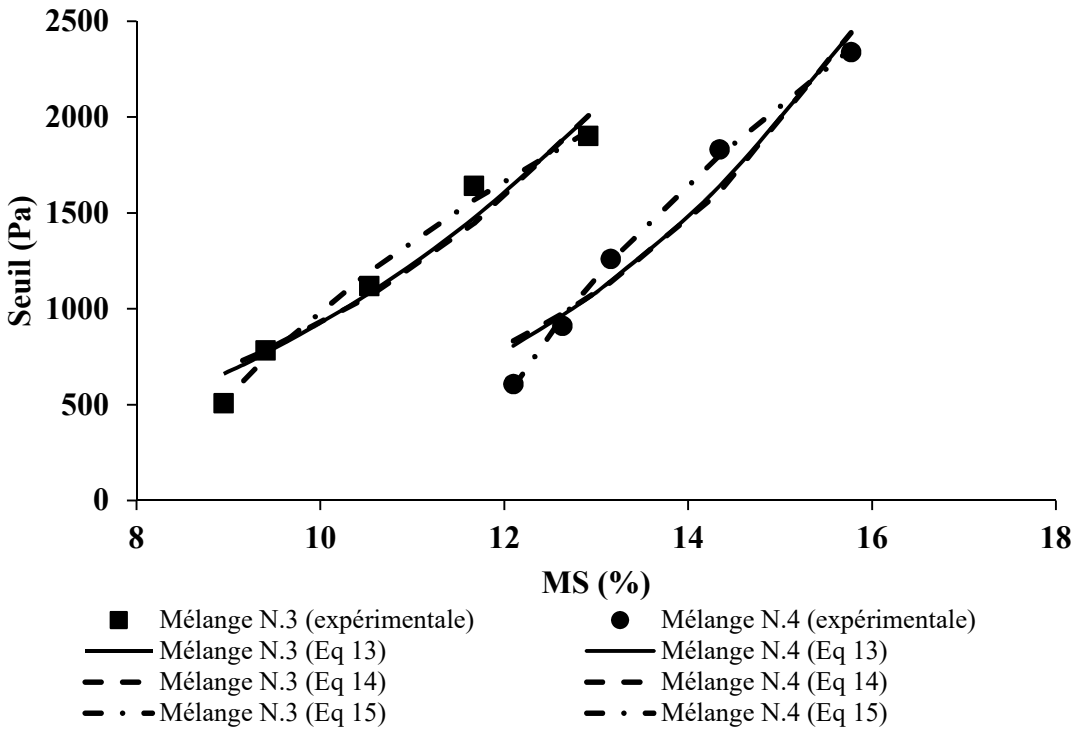


Figure III.12 *: données expérimentales des mesures de seuil en fonction de MS, pour le mélange N.3 et 4, avec leur ajustement en utilisant les équations 13, 14 et 15*

Le **tableau III.8** montre les équations obtenues en utilisant la méthode d'ajustement des moindres carrés pour trouver les facteurs et les exposants recherchés. Les équations proposées dans le **tableau III.8** représentent les meilleurs ajustements entre les données expérimentales et ces modèles. Les coefficients de détermination (R^2) de ces équations ont été également donnés.

Tableau III.8 *: Résultats de l'ajustement des points expérimentaux par les équations 13, 14 et 15*

Mélange	Eq 13	Eq 14	Eq 15
N.3	$\tau_0 = 10^6\ MS^{3,02}$ $R^2 = 0,95$	$\tau_0 = 81,3\ [e^{(25,1 * MS)} - 1]$ $R^2 = 0,94$	$\tau_0 = 1,4*10^4\ (MS-0,083)^{0,65}$ $R^2 = 0,99$
N.4	$\tau_0 = 5,35*10^6\ MS^{4,17}$ $R^2 = 0,95$	$\tau_0 = 26,7\ [e^{(28,7 * MS)} - 1]$ $R^2 = 0,94$	$\tau_0 = 1,8*10^4\ (MS-0,116)^{0,64}$ $R^2 = 0,998$

Les résultats représentés dans le **tableau III.8** et les comparaisons avec la revue de la littérature illustrée dans le **tableau III.7** montrent que :

- Les modèles présentés dans les équations **Eq 13** et **14**, qui sont fréquemment utilisés dans la littérature, ne sont pas les meilleurs modèles pour présenter l'évolution du seuil

d'écoulement en fonction de la MS contrairement au modèle présenté par l'équation **Eq 15** qui a montré le meilleur ajustement car :

- D'un part, il a la même forme que la courbe expérimentale.
- D'autre part, l'exposant d est pratiquement identique pour les deux mélanges, 0,65 et 0,64 pour les mélanges 3 et 4 respectivement.
- Les MS_c trouvées à partir de ce modèle, 8,3 et 11,6 % pour les mélanges 3 et 4 respectivement, sont très proches de nos estimations des MSc_1, 8,5 et 11,5 % pour les mélanges 3 et 4 respectivement, représentés dans les **figures III.8** et **III.19**.

- L'ordre de grandeur du facteur (a) dans l'équation **Eq 13** est de 10^6. L'exposant (b) est de 3 et 4,1 pour le mélange N.3 et le mélange N.4 respectivement. Ces valeurs de l'exposant b sont compatibles avec certains auteurs (entre 2,3 et 4,6). Les valeurs plus élevées de l'exposant b obtenues par (Stickel et al., 2009) (b = 5,7 ± 0,5) ; (Knutsen & Liberatore, 2009) (b = 6 ± 0,4) et (Wiman et al., 2011) (b = 7,1 ± 0,3) peuvent être dues à des fractions importantes des fibres dans leurs échantillons. Ces auteurs n'ont effectué aucun test pour déterminer la fraction des fibres. Dans ce cas de fraction massique élevée, le manipulateur a probablement compacté le réseau fibreux pour atteindre ces fractions importantes. Nous supposons que le compactage, paramètre non étudié dans ce travail, peut augmenter l'exposant b.

III.4.6. Correspondance entre MS_{c2} et MS_{wc}

Les valeurs de MS_{c2} obtenues grâce aux mesures de séchage et les valeurs de MS_{wc} obtenues suite aux mesures de seuil sont représentées pour N.3 et N.4 dans le **tableau III.9** ci-dessous :

Tableau III.9 : *MS_{c2} et MS_{wc} pour les mélanges N.3 et 4.*

Mélange	**N.4**	**N.3**
MS_{c2} (%)	15,8 ± 0,5	11,5 ± 0,5
MS_{wc} (%)	19,7 ± 2,8	11,25 ± 0,75

Nous pouvons constater que les valeurs moyennes de MS_{wc} sont comparables à celles de MS_{c2} pour le même échantillon. Suite à la définition de MS_{wc} qui est la MS d'un échantillon ayant retenu un maximum d'eau liée et ne possédant pas d'eau libre, nous pouvons donc justifier la valeur de MS_{c2} par l'absence d'eau libre dans l'échantillon.

III.5. Conclusions

- La MS ne semble pas être le paramètre pertinent pour estimer le seuil d'écoulement des mélanges divers de fumiers pailleux et déchets agricoles.

- La fraction volumique des fibres peut être utilisée comme un paramètre pertinent quel que soit le mélange.

- La teneur maximale en eau liée et la fraction volumique d'eau libre sont également des paramètres pertinents de discrimination et d'optimisation rhéologique. En effet, l'eau libre joue un rôle important sur la rhéologie du milieu car elle lubrifie les contacts entre les particules.

- Il est important de mesurer la fraction d'eau liée (WC) qui peut être estimée facilement par un test de séchage. Le seuil à ce point-là représente le seuil maximal d'un mélange non compacté. La valeur WC présente, dans le procédé de méthanisation agricole en voie sèche, la limite entre le régime triphasique (fibres, liquide et air) et le régime granulaire humide (fibres humidifiées et air) sensible au compactage et caractérisé par un mélange plus difficile et moins contrôlé. Cela se traduit également par une difficulté de pompage. Dans ce domaine élevé de fraction en particules solides fibreuses, une petite dilution peut être suffisante pour réduire le seuil à une valeur adaptée aux capacités des équipements.

- Les mesures de seuil des produits étudiés, en fonction de la MS, ou de la fraction volumique des fibres humides, montrent la présence de deux matières sèches critiques MS_{c1} et MS_{c2}. Le seuil d'écoulement, qui est un paramètre important pour optimiser le procédé, augmente fortement entre ces deux valeurs caractéristiques en suivant des lois proposées dans ce travail.

III.6. Références bibliographiques

Alderman, N. J., Meeten, G. H., & Sherwood, J. D. (1991). Vane rheometry of bentonite gels. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, *39*(3), 291–310.

Amiri, H., Arabhosseini, A., & Kianmehr, M. H. (2012). Design, construction and evaluation of shear vane device for biomass yield stress determination. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *14*(4), 188–194.

Avramidis, K. S., & Turian, R. M. (1991). Yield stress of laterite suspensions. *Journal of colloid and interface science*, *143*(1), 54–68.

Barnes, H. A., & Carnali, J. O. (1990). The vane-in-cup as a novel rheometer geometry for shear thinning and thixotropic materials. *Journal of Rheology*, *34*(6), 841–866.

Bennington, C. P. J., Kerekes, R. J., & Grace, J. R. (1990). The yield stress of fibre suspensions. *The Canadian journal of chemical engineering*, *68*(5), 748–757.

Coussot, P. (2005). *Rheometry of pastes, suspensions, and granular materials: applications in industry and environment*. John Wiley & Sons.

Dalpke, B., & Kerekes, R. J. (2005). The influence of fibre properties on the apparent yield stress of flocculated pulp suspensions. *Journal of pulp and paper science*, *31*(1), 39–43.

Derakhshandeh, B., Hatzikiriakos, S. G., & Bennington, C. P. (2010). The apparent yield stress of pulp fiber suspensions. *Journal of Rheology*, *54*(5), 1137–1154.

Dodson, C. T. J. (1996). Fibre crowding, bre contacts and bre flocculation. *Tappi J*, *79*(9), 211–216.

Dooms, M (2017). *Etude des compartiments d'hydrolyse et de méthanogenèse d'un procédé de méthanisation en voie épaisse multiétapes phasé en température : le procédé Arkométha ®,* Thèse de doctorat, INSA de Lyon.

Dzuy, N. Q., & Boger, D. V. (1985). Direct yield stress measurement with the vane method. *Journal of Rheology*, *29*(3), 335–347.

Ehrhardt, M. R., Monz, T. O., Root, T. W., Connelly, R. K., Scott, C. T., & Klingenberg, D. J. (2010). Rheology of dilute acid hydrolyzed corn stover at high solids concentration. *Applied biochemistry and biotechnology*, *160*(4), 1102–1115.

Evans, K. E., & Gibson, A. G. (1986). Prediction of the maximum packing fraction achievable in randomly oriented short-fibre composites. *Composites Science and Technology*, *25*(2), 149–162.

Forster-Carneiro, T., Pérez, M., & Romero, L. I. (2008). Influence of total solid and inoculum contents on performance of anaerobic reactors treating food waste. *Bioresource technology*, *99*(15), 6994–7002.

García-Bernet, D., Buffière, P., Latrille, E., Steyer, J.-P., & Escudié, R. (2011). Water distribution in biowastes and digestates of dry anaerobic digestion technology. *Chemical engineering journal*, *172*(2), 924–928.

Garcia-Bernet, D., Loisel, D., Guizard, G., Buffière, P., Steyer, J. P., & Escudié, R. (2011). Rapid measurement of the yield stress of anaerobically-digested solid waste using slump tests. *Waste management*, *31*(4), 631–635.

James, A. E., Williams, D. J. A., & Williams, P. R. (1987). Direct measurement of static yield properties of cohesive suspensions. *Rheologica Acta*, *26*(5), 437–446.

Kerekes, R. J., & Schell, C. J. (1992). Characterization of fibre flocculation regimes by a crowding factor. *Journal of pulp and paper science*, *18*(1), J32–J38.

Knutsen, J. S., & Liberatore, M. W. (2009). Rheology of high-solids biomass slurries for biorefinery applications. *Journal of Rheology*, *53*(4), 877–892.

Liddel, P. V., & Boger, D. V. (1996). Yield stress measurements with the vane. *Journal of non-newtonian fluid mechanics*, *63*(2), 235–261.

Magnin, A., & Piau, J. M. (1987). Shear rheometry of fluids with a yield stress. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, *23*, 91–106.

Martinie, L., Rossi, P., & Roussel, N. (2010). Rheology of fiber reinforced cementitious materials: classification and prediction. *Cement and Concrete Research*, *40*(2), 226–234.

Mason, S. G. (1950a). The flocculation of pulp suspensions and the formation of paper. *Tappi*, *33*(9), 440–444.

Mason, S. G. (1950b). The motion of fibres in flowing liquids. *Pulp Paper Mag. Can*, *51*(4), 93–100.

Mason, S. G. (1954). Fiber motions and flocculation. *Tappi*, *37*(11), 494–501.

Nan, W., Wang, Y., Ge, Y., & Wang, J. (2014). Effect of shape parameters of fiber on the packing structure. *Powder Technology*, *261*, 210–218.

Pimenova, N. V., & Hanley, T. R. (2004). Effect of corn stover concentration on rheological characteristics. In *Proceedings of the Twenty-Fifth Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals Held May 4–7, 2003, in Breckenridge, CO* (p. 347–360). Springer.

Samaniuk, J. R., Wang, J., Root, T. W., Scott, C. T., & Klingenberg, D. J. (2011). Rheology of concentrated biomass. *Korea-Australia Rheology Journal*, *23*(4), 237–245.

Soszyński, R. M. (1987). *The formation and properties of coherent flocs in fibre suspensions*. University of British Columbia.

Stickel, J. J., Knutsen, J. S., Liberatore, M. W., Luu, W., Bousfield, D. W., Klingenberg, D. J., … Monz, T. O. (2009). Rheology measurements of a biomass slurry: an inter-laboratory study. *Rheologica Acta*, *48*(9), 1005–1015.

Stickel, J. J., & Powell, R. L. (2005). Fluid mechanics and rheology of dense suspensions. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, *37*, 129–149.

Swerin, A., Powell, R. L., & Ödberg, L. (1992). Linear and nonlinear dynamic viscoelasticity of pulp fiber suspensions. *Nordic Pulp and Paper Research Journal (Sweden)*.

Switzer III, L. H., & Klingenberg, D. J. (2003). Rheology of sheared flexible fiber suspensions via fiber-level simulations. *Journal of Rheology*, *47*(3), 759–778.

Switzer, L. H., & Klingenberg, D. J. (2004). Flocculation in simulations of sheared fiber suspensions. *International Journal of Multiphase Flow*, *30*(1), 67–87.

Toll, S. (1998). Packing mechanics of fiber reinforcements. *Polymer Engineering & Science*, *38*(8), 1337–1350.

Vaxelaire, J., & Cézac, P. (2004). Moisture distribution in activated sludges: a review. *Water Research*, *38*(9), 2215–2230.

Viamajala, S., McMillan, J. D., Schell, D. J., & Elander, R. T. (2009a). Rheology of corn stover slurries at high solids concentrations–effects of saccharification and particle size. *Bioresource technology*, *100*(2), 925–934.

Viamajala, S., McMillan, J. D., Schell, D. J., & Elander, R. T. (2009b). Rheology of corn stover slurries at high solids concentrations–effects of saccharification and particle size. *Bioresource technology*, *100*(2), 925–934.

Wikström, T., & Rasmuson, A. (1998). The yield stress of pulp suspensions–The influence of fibre properties and processing conditions. *Nordic Pulp&Paper Research J.*, *13*, 78–85.

Williams, S. R., & Philipse, A. P. (2003). Random packings of spheres and spherocylinders simulated by mechanical contraction. *Physical Review E*, *67*(5), 051301.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011a). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and Bioengineering*, *108*(5), 1031-1041.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011b). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and Bioengineering*, *108*(5), 1031-1041.

Wouterse, A., Luding, S., & Philipse, A. P. (2009). On contact numbers in random rod packings. *Granular Matter*, *11*(3), 169–177.

Zafari, A., & Kianmehr, M. H. (2012). Livestock manure management and pelleting. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *14*(3), 78–84.

Zou, R. P., & Yu, A. B. (1996). Evaluation of the packing characteristics of mono-sized non-spherical particles. *Powder technology*, *88*(1), 71–79.

III.7. Annexes

III.7.1. Annexe III.1 : Influence de la masse de l'échantillon sur la teneur en eau liée (WC)

Pour tester l'influence de la masse d'échantillon sur la valeur de MS_{wc}, nous avons choisi de réaliser les essais suivants uniquement sur le mélange N.4 :

- 3 tests pour des masses de 5 et 6 g.
- 9 tests pour 3 g afin d'estimer l'impact de l'hétérogénéité de l'échantillon sur ces mesures.
- 1 test pour 4 g.

Une courbe de séchage, comme celle présentée dans la **figure III.3** a été tracée pour chaque essai. Les analyses de ces courbes montrent que la détermination de WC doit être faite avec soin et discernement. Nous avons essayé d'utiliser la fonction Savitzky–Golay sur Matlab sans réussir. Pour cela, nous avons adopté l'utilisation de la fonction «moyenne mobile» dans le logiciel Excel pour lisser ces courbes afin de déterminer le WC avec la meilleure précision. Nous avons ensuite calculé la MS_{wc} correspondant à chaque WC déterminé.

Les résultats obtenus sont représentés dans les **tableaux III.10, III.11 et III.12** ci-dessous. La comparaison entre les moyennes de MS_{wc} obtenues dans ces tableaux montre qu'un changement léger de la détermination de WC, environ 0,3 g eau/g matière sèche, provoque un changement significatif dans les valeurs de MS_{wc} estimée à ± 1,1 % de MS.

Ces tableaux montrent également que les valeurs obtenues de MS_{wc} subissent des écart-type variant de ± 2,6 à 5,3 % (échantillons de 6, 5 et 3 g). Ces valeurs illustrent l'incertitude liée à l'hétérogénéité de l'échantillon.

Tableau III.10 : *Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-type (valeur moyenne estimée du point WC)*

Masse d'échantillon (g)	M initial (g)	M wc (g)	M final (g)	MS (%)	MS wc (%)	MSwc moyen (%)	Ecart-type
6	5,918	1,871	0,46	7,773	24,586	21,444	3,184
6	6,033	2,318	0,499	8,271	21,527		
6	6,043	3,079	0,561	9,283	18,220		
5	4,913	1,494	0,26	5,292	17,403	22,504	5,383
5	4,973	1,557	0,438	8,808	28,131		
5	4,944	1,993	0,438	8,859	21,977		
4	4,018	2,242	0,377	9,383	16,815	16,815	
3	3,048	1,139	0,248	8,136	21,773	18,195	2,614
3	3,022	1,687	0,229	7,578	13,574		
3	3,048	1,519	0,254	8,333	16,722		
3	2,824	1,28	0,267	9,455	20,859		
3	3,08	1,715	0,269	8,734	15,685		
3	2,955	1,336	0,237	8,020	17,740		
3	2,962	1,456	0,263	8,879	18,063		
3	3,151	1,239	0,249	7,902	20,097		
3	3,049	1,315	0,253	8,298	19,240		
2	2,05	1,399	0,169	8,244	12,080	12,080	

Tableau III.11 *: Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-types (valeur maximale estimée du point WC)*

Masse d'échantillon (g)	M initial (g)	M wc1 (g)	M final (g)	MS (%)	MS wc1 (%)	MSwc moyen (%)	Ecart-type
6	5,918	1,954	0,46	0,078	23,541	20,615	2,933
6	6,033	2,419	0,499	0,083	20,628		
6	6,043	3,174	0,561	0,093	17,675		
5	4,913	1,559	0,26	0,053	16,677	21,463	5,012
5	4,973	1,642	0,438	0,088	26,675		
5	4,944	2,082	0,438	0,089	21,037		
4	4,018	2,317	0,377	0,094	16,271	16,271	
3	3,048	1,232	0,248	0,081	20,130	17,101	2,376
3	3,022	1,775	0,229	0,076	12,901		
3	3,048	1,61	0,254	0,083	15,776		
3	2,824	1,352	0,267	0,095	19,749		
3	3,08	1,806	0,269	0,087	14,895		
3	2,955	1,432	0,237	0,080	16,550		
3	2,962	1,546	0,263	0,089	17,012		
3	3,151	1,306	0,249	0,079	19,066		
3	3,049	1,419	0,253	0,083	17,829		
2	2,05	1,475	0,169	0,082	11,458	11,458	

Tableau III.12 *: Données expérimentales des tests du séchage pour le mélange N.4 (l'échantillon hydrolysé) et calculs de MSwc moyen et leurs écart-type (valeur minimale estimée du point WC)*

Masse d'échantillon (g)	M initial (g)	M wc1 (g)	M final (g)	MS (%)	MS wc1 (%)	MSwc moyen	Ecart-type
6	5,918	1,787	0,46	0,078	25,741	22,316	3,471
6	6,033	2,227	0,499	0,083	22,407		
6	6,043	2,984	0,561	0,093	18,800		
5	4,913	1,389	0,26	0,053	18,719	23,750	5,435
5	4,973	1,484	0,438	0,088	29,515		
5	4,944	1,903	0,438	0,089	23,016		
4	4,018	2,168	0,377	0,094	17,389	17,389	
3	3,048	1,047	0,248	0,081	23,687	19,198	2,898
3	3,022	1,601	0,229	0,076	14,304		
3	3,048	1,428	0,254	0,083	17,787		
3	2,824	1,205	0,267	0,095	22,158		
3	3,08	1,619	0,269	0,087	16,615		
3	2,955	1,246	0,237	0,080	19,021		
3	2,962	1,371	0,263	0,089	19,183		
3	3,151	1,179	0,249	0,079	21,120		
3	3,049	1,221	0,253	0,083	20,721		

Les résultats obtenus avec l'incertitude liée à l'hétérogénéité de l'échantillon sont représentés en **figure III.13**.

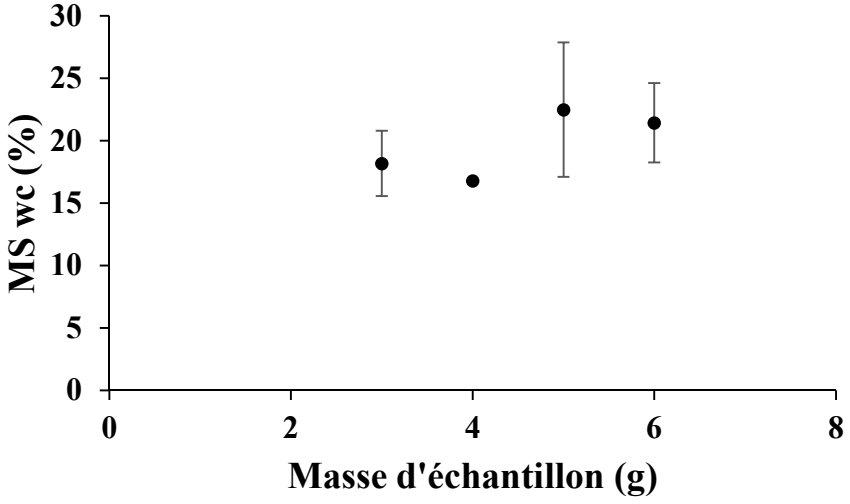


Figure III.13 : *MS_{wc} pour plusieurs poids du mélange N.4 (échantillon hydrolysé)*

La figure montre que les valeurs moyennes de MS_{wc} des échantillons de 2 à 6 g varient de 16,8 à 22,5%. Cette figure montre également l'absence d'une corrélation entre la MS_{wc} et la masse de l'échantillon.

(García-Bernet et al., 2011) ont vérifié que WC ne dépendait pas de la masse de l'échantillon et du volume d'eau ajoutée. Ils ont effectué des essais de séchage en utilisant du charbon actif (Norit GNC 1240) et également du digestat pour un échantillon de masse variant de 1 à 6 g et d'un volume d'eau compris entre 5 et 30 ml. La précision de WC était de 5 et 6 % pour le charbon actif et le digestat respectivement.

En accord avec ce qui a été trouvé par (García-Bernet et al., 2011), nous pouvons conclure que la détermination de WC de notre échantillon est indépendante de la masse d'échantillon.

III.7.2. Annexe III.2 : Protocole d'essai de séchage

- Mettre un récipient d'aluminium de 9 cm de diamètre sur la balance Sartorius MA40 puis tarer.
- Mettre 3 g de l'échantillon, déjà saturé depuis plusieurs jours, dans le récipient.
- Ajouter de l'eau jusqu'à atteindre une masse totale de 17 g. Une couche mince d'environ 2 mm sera formée.
- Disperser l'échantillon dans l'eau ajoutée et attendre une heure avant de démarrer le chauffage.
- Démarrer le chauffage à une température constante de 100 °C.
- Arrêter le chauffage après une stabilisation de la masse pendant 10 min.

III.7.3. Annexe III.3 : Caractéristiques granulométriques du lisier et de l'ensilage

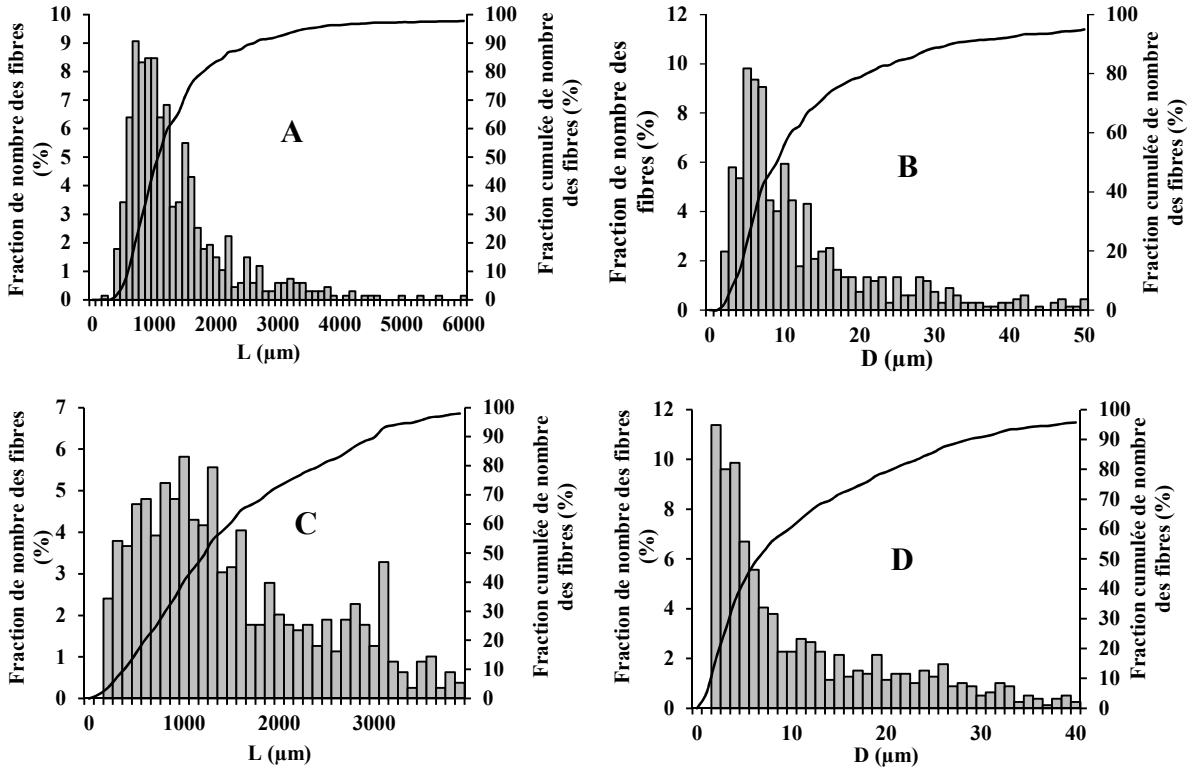


Figure III.14 : *La fraction de nombre de fibres en fonction de la longueur et le diamètre pour le lisier (A et B) et l'ensilage (C et D)*

III.7.4. Annexe III.4 : Etude bibliographique de l'effet du rapport d'aspect (r_p) sur la fraction volumique maximale des fibres.

Le but de cette étude est de savoir la $F_{v\,max}$ théorique dans le mélange N.3.

La caractérisation granulométrique détaillée dans le paragraphe **III.4.1.1** a montré que les fibres utilisées dans nos mélanges sont courtes car leurs $r_p \leq 50$ (Switzer III & Klingenberg, 2003), rigides et orientées aléatoirement.

Les résultats des auteurs, représentés ci-dessous, sont discutés en fonction du rapport d'aspects r_p sachant que tous les auteurs ont utilisé des fibres monodispersées. Rappelons que pour les fibres de nos matériaux les valeurs moyennes des rapports d'aspects selon les définitions se situent entre 8 et 20 (**tableau III.5)**.

(Evans & Gibson, 1986) ont proposé, suite à des études expérimentale et théorique sur des fibres courtes et fines, la formule suivante :

$$F_{v\,max} = k\frac{d}{L} \qquad \textit{Eq 16}$$

d et L sont le diamètre et la longueur des fibres respectivement. k constant = 4 théoriquement et 5,4 expérimentalement. Si nous appliquons leur formule, nous trouvons $0{,}5 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}2$ avec k = 4 et $0{,}67 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}27$ pour k = 5,4 pour l'intervalle $8 \leq r_p \leq 20$. Ils ont donné également une autre formule, légèrement plus précise, pour le calcul de la $F_{v\,max}$.

$$F_{v\,max} = \frac{4\,d}{L}\left(\frac{1}{1+\frac{d}{L}}\right) \qquad \textit{Eq 17}$$

L'application de cette formule donne $0{,}44 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}19$ pour l'intervalle $8 \leq r_p \leq 20$.

(Zou & Yu, 1996) ont travaillé sur la quantification de la porosité du remplissage (ε), définie comme le rapport en volume des pores à l'ensemble du volume. Donc, la $F_{v\,max}$ = 1 - la porosité. Ils ont proposé une corrélation empirique (appelée modèle ZY) pour quantifier la relation entre la porosité et la sphéricité (ψ) des particules cylindriques dans un remplissage aléatoire

$$ln\,\varepsilon = \psi^{5{,}58}\,exp[5{,}89\,(1-\psi)]\,ln\,0{,}4 \qquad \textit{Eq 18}$$

$$\psi = \frac{(1{,}5\, r_p)^{2/3}}{r_p + 0{,}5} \qquad Eq\ 19$$

L'application de ces formules donne $0{,}45 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}27$ pour l'intervalle $8 \leq r_p \leq 20$.

(Toll, 1998) a fait une étude théorique sur la $F_{v\,max}$ des fibres rigides et droites. Il a rassemblé, dans la **figure III.15**, les résultats de leur étude avec d'autres études.

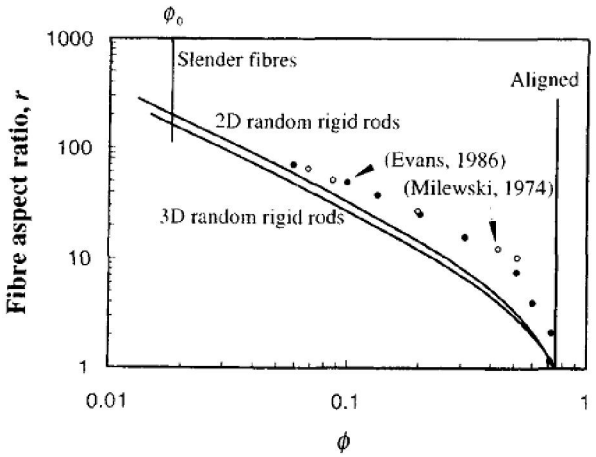


Figure III.15 : *Fraction volumique maximum des fibres en fonction du r_p (Toll, 1998)*

Avec les travaux de (Toll, 1998), nous obtenons $0{,}25 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}15$ pour $8 \leq r_p \leq 20$. Avec les travaux d'Evans ou Milewski nous obtenons $0{,}5 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}25$ pour $8 \leq r_p \leq 20$.

(Martinie et al., 2010) ont étudié l'effet du rapport d'aspect des fibres rigides et droites sur la $F_{v\,max}$. La figure ci-dessous montre leurs résultats.

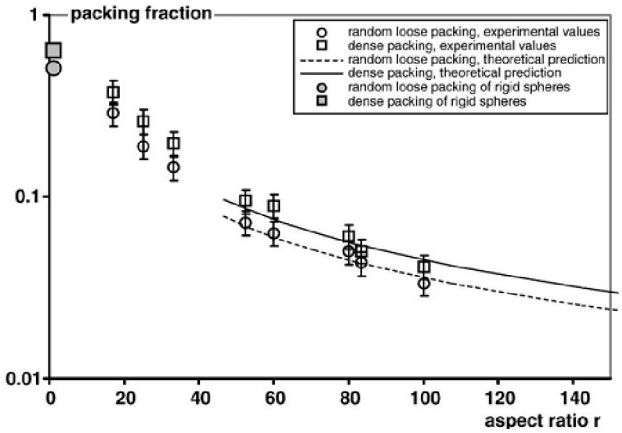


Figure III.16 : *Fraction volumique maximum des fibres en fonction du r_p (Martinie et al., 2010)*

L'application de nos valeurs de r_p $8 \leq r_p \leq 20$ sur la courbe ci-dessus donne $0{,}25 \geq F_{v\,max} \geq 0{,}43$

(Nan et al., 2014) ont simulé numériquement le remplissage de fibres rigides avec des paramètres de forme différents. La **figure III.17** montre une comparaison entre leurs résultats

et ceux d'autres auteurs cités dans leur article. (Nan et al., 2014) ont justifié la porosité relativement élevé par rapport d'autres auteurs par les différents algorithmes de simulation utilisées et des conditions d'emballage divers.

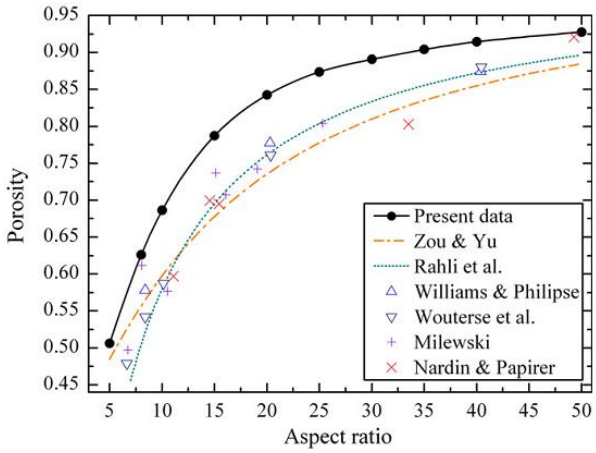
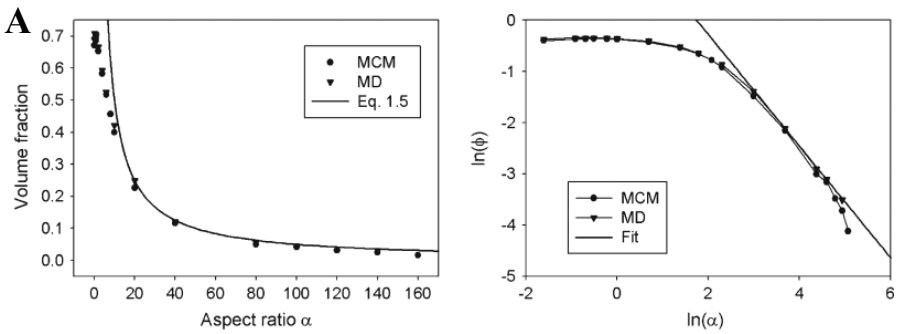


Figure III.17 : *l'évolution de la porosité en fonction du rapport d'aspect pour plusieurs auteurs*

L'application de nos valeurs de r_p $8 \leq r_p \leq 20$ sur la courbe de :

- (Nan et al., 2014) donne $0,35 \geq F_{v\,max} \geq 0,17$.
- Rahli et al. donne $0,45 \geq F_{v\,max} \geq 0,25$.
- Zou et Yu donne $0,42 \geq F_{v\,max} \geq 0,28$.

(Wouterse, et al., 2009) et (Williams & Philipse, 2003) ont adopté des modèles empiriques qui ont été établis en fonction de du remplissage des cylindres, qui ont d'hémisphères à deux extrémités des cylindres. Les figures ci-dessous montrent leurs résultats



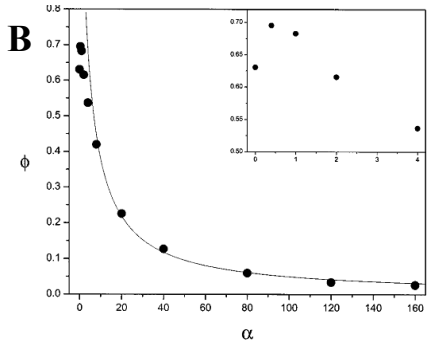


Figure III.18 : *Fraction volumique maximum des fibres en fonction du rp ici noté α par les auteurs selon A) (Wouterse et al., 2009) et B) (Williams & Philipse, 2003)*

L'application de nos valeurs de r_p $8 \leq r_p \leq 20$ sur la courbe de

- (Williams & Philipse, 2003) nous donne $0,45 \geq F_{v\ max} \geq 0,22$.
- (Wouterse, et al., 2009) nous donne $0,45 \geq F_{v\ max} \geq 0,25$

III.7.5. Annexe III.5. Protocole du test de scissométrie

1. Utiliser un récipient et une pale respectant les conditions optimales illustrées en (**figure II.7**) et vérifier que le système d'anti-glissement est bien fixé.
2. Introduire une partie de la quantité envisagée de l'échantillon, chauffé à la température souhaitée, dans le récipient jusqu'à l'épaisseur L2.
3. Faire baisser la pale du scissomètre jusqu'à la hauteur optimale L2 représentée en (**figure II.7**).
4. Ajouter le reste d'échantillon entre les lames du scissomètre jusqu'à atteindre la hauteur optimale de l'échantillon représentée en (**figure II.7**).
5. Revérifier que la température de l'échantillon est à ± 2 °C de la température souhaitée, si la mesure doit être effectuée à une température donnée.
6. Lancer la mesure avec une vitesse de (0,1 tr/min).
7. A la fin de la mesure, sortir la lame du scissomètre, vider le récipient, homogénéiser de nouveau l'échantillon, vider le récipient et refaire la mesure (étapes de 2 à 6) pour estimer la répétabilité.

III.7.6. Annexe III.6 : Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la fraction volumique du mélange N.4

Le seuil d'écoulement du mélange N.4 a été mesuré en utilisant un rhéomètre rotatif de laboratoire. Les mesures ont été effectuées à 65°C ± 2 °C qui représente la température du réacteur de méthanisation de cet échantillon. Le protocole d'échauffement des échantillons est le suivant

- Mettre le récipient contenant l'échantillon dans un bain marie réglé à 5 °C au-dessus de la température souhaitée.
- Sortir le récipient et homogénéiser l'échantillon au moyen d'une spatule par exemple pour accélérer le transfert thermique.
- Vérifier que la température soit identique à la température souhaitée en plusieurs endroits dans la boîte de l'échantillon avant d'effectuer le test.

Les mesures de seuil ont été répétées deux fois pour le mélange N.4. L'incertitude liée à la répétabilité varie entre 0,1 et 3 %.

Pour cet échantillon, nous avons évaporé l'eau en chauffant l'échantillon pour augmenter la MS et ajouté de l'eau pour diminuer la MS.

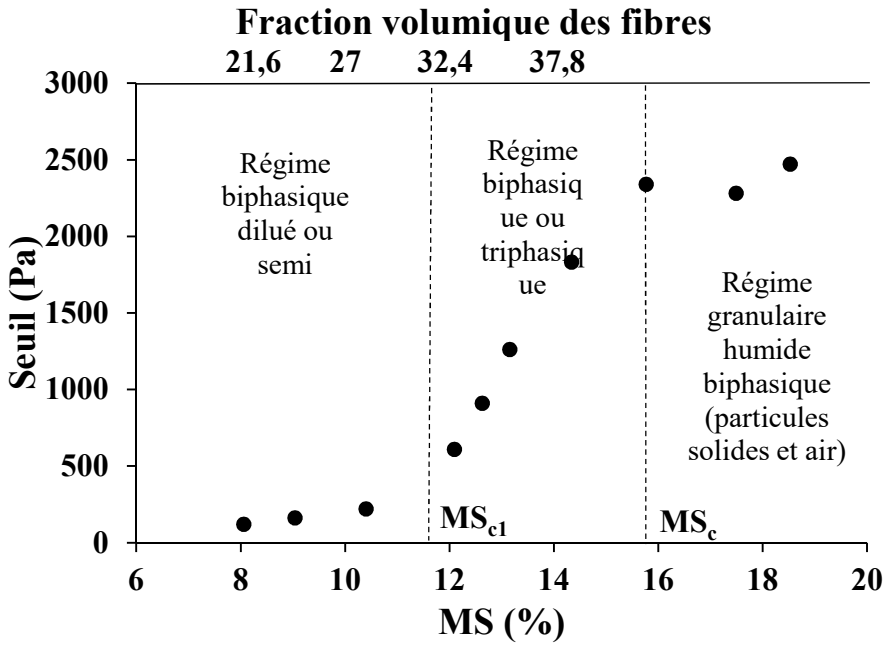


Figure III.19 : *Evolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS et la Fv fibres humides pour le mélange N.4*

III.7.7. Annexe III.7 : Exemple numérique pour la prédiction de la fraction d'eau ajoutée pour atteindre MS_{c2}

L'application des étapes détaillées en paragraphe III.4.4 sur le mélange N.3 nous donne :

WC = 7,8 g eau/ g MS → MS_{wc} = 11,25.

A partir de la MS d'ensilage et du lisier présentées au **tableau III.1,** nous pouvons calculer la fraction d'eau qu'il faut ajouter pour arriver au mélange de MS = 11,25 comme suivant :

Nous établions un tableau Excel de la forme suivante :

	Ensilage	**lisier**	**eau**	**Mélange**
MS (%)	26,8	12,8	0	$MS_{mélange}$
F_m	X	Y	Z = 100 - $F_{m\ ensilage}$ - $F_{m\ lisier}$	100

$$MS_{mélange} = \frac{MS_{lisier} * F_{m\ lisier} + MS_{ensilage} * F_{m\ ensilage} + MS_{eau} * F_{m\ eau}}{F_{m\ mélange}} \qquad Eq\ 20$$

$F_{m\ mélange}$ = 100.

$$F_{m\ eau} = F_{m\ mélange} - F_{m\ ensilage} - F_{m\ lisier} = 100 - F_{m\ ensilage} - F_{m\ lisier} \qquad Eq\ 21$$

Nous changeons la valeur de X et/ou Y jusqu'à arriver à $MS_{mélange}$ demandé. Nous obtiendrons automatiquement la F_m eau ajoutée (Z) suite au calcul de la case correspondante par l'équation **Eq 21**.

Si nous souhaitons déterminer la valeur du seuil à F_m donnée d'eau libre ajoutée ou à MS donnée, il faut soit :

- Mesurer le seuil de contrainte pour plusieurs MS de même échantillon puis il faut tracer l'évolution du seuil en fonction de la MS ou $F_{m\ eau\ libre}$.
- Appliquer les formules proposées dans ce travail pour estimer le seuil d'écoulement.

Chapitre IV : Effets des paramètres opératoires sur la rhéologie des substrats agricoles issus des fumiers pailleux dans un procédé de méthanisation piston en voie sèche : taille, température et matière sèche

Résumé

Les propriétés rhéologiques des suspensions issues des biomasses lignocellulosiques du type fumier ou lisier ont été étudiées en fonction de paramètres opératoires importants pour la conduite du procédé de méthanisation comme la taille des fibres, la température (T) et le taux de matière sèche (MS). Ces suspensions fibreuses denses ont montré un comportement rhéofluidifiant avec la présence d'un seuil d'écoulement. Les évolutions de la viscosité apparente, du seuil d'écoulement ou des paramètres du modèle d'Herschel–Bulkley pour ajuster les résultats expérimentaux ont été caractérisées et discutées en fonction des paramètres opératoires. Les méthodologies expérimentales mises au point pour maîtriser la séparation de phases, l'évaporation de l'eau, et le glissement sur les parois lors des essais rhéométriques sont présentées.

Table des matières du chapitre IV

Chapitre IV : Effets des paramètres opératoires sur la rhéologie des substrats agricoles issus des fumiers pailleux dans un procédé de méthanisation piston en voie sèche : taille, température et matière sèche 165
Table des matières du chapitre IV 167
Notations et symboles du chapitre IV 169
IV.1. Introduction 171
IV.2. Matériaux utilisés et leurs préparations 173
IV.3. Méthodes utilisées 175
IV.3.1. Méthodologie de hachage 175
IV.3.2. Rhéométrie 176
IV.3.2.1. Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS) 176
IV.3.2.2. Rhéomètre de laboratoire 176
IV.4. Caractérisations massique, volumique et granulométrique des matières 180
IV.5. Effet de la taille des fibres végétales 181
IV.5.1. Revue bibliographique 181
IV.5.2. Résultats et discussions 184
IV.5.2.1. Propriétés rhéométriques 184
IV.5.2.2. Impacte de hachage sur la granulométrie des fibres de la matière 2 190
IV.5.2.3. Influence de la taille du hachage sur la teneur en eau liée et l'impact sur la rhéologie des matériaux. Etude réalisé sur la matière 2 192
IV.6. Effet de la température 193
IV.6.1. Revue bibliographique 193
IV.6.2. Résultats et discussions 196
IV.7. Effet de la MS et/ou la fraction volumique des fibres 201
IV.7.1. Revue bibliographique 201
IV.7.2. Résultats et discussions 206
IV.8. Conclusions et perspectives 212
IV.9. Références bibliographiques 213
Annexe IV.1. Comparaison des mesures du seuil d'écoulement de la matière 2 avec le CLEAG et un scissomètre 215

Notations et symboles du chapitre IV

HB	Modèle d'Herschel–Bulkley
τ	Contrainte de cisaillement (Pa)
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement (gradient de vitesse) (s^{-1})
τ_0	Seuil d'écoulement (Pa)
k	Consistance du fluide ($Pa.s^n$)
n	Indice de la rhéofluidification (-)
MS	Taux de matière sèche (%)
T	Température (°C)
r_p	Rapport d'aspect des fibres ≡ L/d
L	Longueur de la fibre (m)
d	Largeur de la fibre (m)
E	module d'élasticité ($N.m^{-2}$)
F_v	Fraction volumique des fibres humides
CLEAG	Couette Large Entrefer Anti Glissement
M_i	Couple (N.m)
Ω_i	Vitesses angulaire (1/s)
Z	R_i / R_o
R_i, R_o	Rayon intérieur et extérieur respectivement
μ_{app}	Viscosité apparente (Pa.s). $\mu_{app} = \tau / \dot{\gamma}$
$\mu_{réf}$	Viscosité de référence (Pa.s)
E_a	Energie d'activation (J/mol)
R	Constante universelle des gaz (8,3144 J mol^{-1} K^{-1})
T_{abs}	Température absolue (°K = 273,15 + °C)
a	Facteur (Pa)
f	Facteur ($Pa.m^{-h}$)
j	Facteur ($Pa.s.m^{-u}$)
v	Facteur (Pa.s)
c, b, d, h, u, w	Exposant (-)

IV.1. Introduction

Les matériaux utilisés en méthanisation agricole en voie sèche sont des mélanges de fumier et/ou de lisier, des résidus agricoles et de l'eau. Ces mélanges, appelés également biomasses lignocellulosiques, sont essentiellement des suspensions concentrées en fibres naturelles.

Les matériaux utilisés dans ce travail sont des mélanges d'au moins deux constituants parmi les suivants : fumier, lisier, paille, ensilage de maïs et eau. Ces matériaux largement décrits dans le chapitre I, sont des suspensions d'origine animale (déjections animales) concentrées ou très concentrées en particules plus ou moins fibreuses et spongieuses d'origine végétale (déchets agricoles). Ces particules fibreuses sont caractérisées notamment par des dimensions centimétriques ou millimétriques. Du fait de ces caractéristiques distinctives, les matériaux étudiés dans ce travail ont rarement été étudiés dans la littérature scientifique.

La méthanisation en réacteur piston en voie sèche est une nouvelle offre qui ouvre la porte à une opportunité de valorisation améliorée de ces déchets traduite par une augmentation du rendement de la production de biogaz (m^3 biogaz / m^3 volume du réacteur) par rapport à la méthanisation classique (voie liquide). Par contre, l'optimisation de ce procédé, qui fonctionne en mode semi-continu, repose notamment sur une maîtrise du contrôle des propriétés rhéologiques et biologiques de ces matériaux lors de la méthanisation.

En effet, le contrôle et la prédiction du comportement rhéologique de ces matériaux lors de la méthanisation est un élément clé pour optimiser le mouvement et les transferts de matière et les transferts thermiques. Néanmoins, les études des caractérisations rhéologiques de ces matériaux sont rares. En effet, l'exploitation d'un fermenteur en voie sèche peut exiger d'effectuer des modifications sur plusieurs paramètres opératoires pour améliorer l'aspect biologique du procédé. Ces modifications peuvent changer le comportement rhéologique de ces matériaux lors du procédé. Pour cela, il était intéressant d'étudier l'influence des paramètres opératoires sur la rhéologie. Dans cette étude, nous avons choisi d'étudier trois paramètres opératoires : l'influence de la taille des fibres, de la température et du taux de matière sèche sur le seuil d'écoulement et la viscosité de ces matériaux.

Les revues bibliographiques qui sont détaillées, au début de chacun des paragraphes traitant les trois paramètres opératoires, montreront que les matériaux traités par les divers auteurs sont relativement différents de ceux étudiés dans ce travail. Cette différence se reflète par les faibles dimensions des particules solides, le broyage des fibres, la faible teneur en fibre et en MS et les prétraitements chimiques et/ou thermiques des matériaux étudiés. Ces différences peuvent changer l'ordre de grandeur des paramètres rhéologiques de ces matériaux et l'évolution de ces paramètres en fonction des paramètres opératoires. Pour cela, il est nécessaire d'évaluer l'évolution des propriétés rhéologiques des matériaux bruts utilisés dans notre procédé de méthanisation, dite méthanisation agricole en voie sèche semi-continue. Ces matériaux ne sont pas traités chimiquement ou thermiquement et sont caractérisés par des grandes fractions de fibres non broyées et de grandes dimensions.

Nous chercherons dans ce travail à établir de nouvelles connaissances sur la rhéologie des matériaux issus de fumiers bovins avec deux buts principaux :

- Prédire le seuil d'écoulement et la viscosité en fonction des paramètres opératoires,
- Quantifier l'intérêt de modifier ces paramètres.

Pour étudier l'influence de chaque paramètre opératoire sur la rhéologie des matériaux étudiés, nous avons adopté la stratégie suivante :

- Premièrement, nous présenterons la nature des matériaux étudiés et leurs préparations.
- Deuxièmement, nous détaillerons les méthodes utilisées pour caractériser ces matériaux : caractérisation massique, volumique et granulométrique, méthodologie de hachage et méthodologie rhéométrique.
- Ensuite, nous allons présenter séparément l'étude de l'effet de chaque paramètre opératoire sur la rhéologie des matériaux. Pour chaque paramètre, nous proposerons une étude bibliographique, puis nous présenterons et discuterons les résultats expérimentaux, notamment, à la lumière des analyses de la bibliographie.
- Finalement, nous présenterons les conclusions et les perspectives de ce travail.

IV.2. Matériaux utilisés et leurs préparations

Les constituants des matières étudiés dans ce travail (fumier, lisier, ensilage d'herbe ou de maïs) proviennent de l'exploitation « GAEC l'envolée » à Pomeys, Rhône-Alpes, géré par Mickael Rageys. Ils ont été utilisés lors du doctorat de Maxime Dooms au laboratoire DEEP à l'INSA de Lyon qui portait également sur le procédé Arkométha® d'un point de vue biologique (Dooms, 2017).

Chaque matière brute utilisée dans ce travail a été déchiquetée pour adapter les dimensions des particules aux dimensions des réacteurs utilisés dans le travail de (Dooms, 2017). Pour cela, un déchiqueteur à cisailles rotatives « Broyeur déchiqueteur BB230 » marque « BLIK » (**Figure III.1**) réglé à une distance de 1 cm entre les deux lames a été utilisé. Les matériaux ont été déchiquetés plusieurs fois. Le lisier 2 fois et l'ensilage 7 fois.

Les matières suivantes ont été utilisées dans ce chapitre :

- **Matière 1** : Il s'agit d'un mélange qui a subi 4 jours d'hydrolyse à une température de 65 °C suivis de 10 jours à une température de 55 °C dans des réacteurs de laboratoire. Ces deux réacteurs permettaient de simuler le comportement du procédé d'Arkométha® avec un compartiment dédié à l'hydrolyse et un autre à la méthanogénèse. Sa MS est de 10,6 %. Les caractéristiques des constituants de l'entrant de cette matière avant le traitement biologique sont données dans le **tableau IV.1.**

Tableau IV.1 : *Constituants de l'entrant de la matière 1, leur MS et F_m*

Fumier		**Lisier**		**Ensilage d'herbe**		**Eau**
F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)
8,82	37	58,82	7,2	17,65	27	14,71

$$F_m\ (\%) = \frac{Masse\ de\ constituant}{Masse\ totale\ du\ mélange} * 100 \qquad Eq\ 1$$

$$MS\ (\%) = \frac{Masse\ du\ constituant\ sèche}{Masse\ du\ constituant\ humide} * 100 \qquad Eq\ 2$$

Un processus de hachage détaillé ultérieurement a été appliqué pour hacher cette matière à 3, 5 et 8 mm. Les propriétés d'écoulement de cette matière ont été mesurées par le CLEAG (Couette large Entrefer Anti Glissement) présenté ultérieurement.

- **Matière 2** : Il s'agit du lisier pailleux à MS = 12,8 % étudié dans le chapitre III. Le même processus de hachage appliqué à la matière 1 a été utilisé pour hacher cette matière à 3, 5 et 10 mm. Le seuil d'écoulement de cette matière a été mesuré par le CLEAG et par un scissomètre monté sur un rhéomètre de laboratoire.

- **Matière 3 :** Il s'agit d'un mélange composé de 76,3 % de lisier à MS = 12,8 %, de 11,4 % d'ensilage de maïs à MS de 26,8 % et de 12,3 % d'eau. La MS du mélange était de 12,8 %. Le seuil d'écoulement a été mesuré par scissométrie au moyen du rhéomètre de grandes dimensions (RGDS) décrit dans le chapitre II.

- **Matière 4 :** c'est un mélange composé de 87 % de lisier à MS = 12,8 % et de 13 % d'ensilage de maïs à MS = 26,8 % utilisés pour constituer la matière 3. La MS du mélange était d'environ 15 %. La dilution par de l'eau a été ensuite appliquée sur la matière initiale pour abaisser la MS. Les mesures des propriétés rhéologiques, seuil d'écoulement et viscosité, ont été effectuées ici à quatre MS différentes, pour étudier l'effet de l'évolution de MS, en utilisant le CLEAG.

Le **tableau IV.2** représente les constituants des matières 2, 3 et 4.

Tableau IV.2 : *Constituants des matières 2,3 et 4. leurs MS et F_m*

Matière	Lisier		Ensilage de maïs		Eau ajoutée	MS du mélange
	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	MS (%)	F_m (%)	
2	100	12,8	0	0	0	12,8
3	76,3	12,8	11,4	26,8	12,3	12,8
4	87	12,8	13	26,8	0	15

IV.3. Méthodes utilisées

Plusieurs instrumentations et méthodologies ont été développées dans ce travail pour s'adapter aux contraintes imposées par les matériaux étudiés : une méthodologie pour hacher les fibres à longueur donnée, deux rhéomètres pour mesurer les propriétés d'écoulement, le RGDS et un rhéomètre de laboratoire équipé d'une géométrie spécifique.

IV.3.1. Méthodologie de hachage

Une méthodologie de hachage a été mise au point pour étudier l'effet du changement de la longueur des fibres sur les propriétés rhéologiques. Les mesures de seuil sur un échantillon congelé puis décongelé et un autre non-congelé, montrent que la congélation ne modifie pas les caractéristiques rhéologiques de nos substrats. Ce constat a été exploité pour développer la méthodologie du hachage qui est détaillée ci-dessous.

Des moules en silicone mou (**figure IV.1 - A**) présentant des sillons d'une largeur de 5 mm et d'une hauteur équivalente ont été fabriqués. La matière brute a été étalée manuellement dans le moule. Une pince à épiler a été utilisée ensuite pour faire entrer toutes les fibres dans les sillons. Ensuite, ces moules ont été congelés (**figure IV.1 - B**). Puis, les barres des substrats congelés ont été démontées (**figure IV.1 - C**) et coupées, dans le sens de la largeur, avec une cisaille (**figure IV.1 - D**) à la longueur souhaitée. Ceci permet finalement de réaliser des petits cubes de substrats congelés qui ont des particules de longueur maximum égale à la longueur souhaitée.

Les longueurs de hachage ont été fixées à 3, 5 et 8 ou 10 mm.

La matière sèche a été mesurée avant et après le hachage pour chaque matière. Une augmentation légère d'environ 0,5 % de MS a été observée et la quantité d'eau nécessaire pour revenir à la MS initiale a été ajoutée.

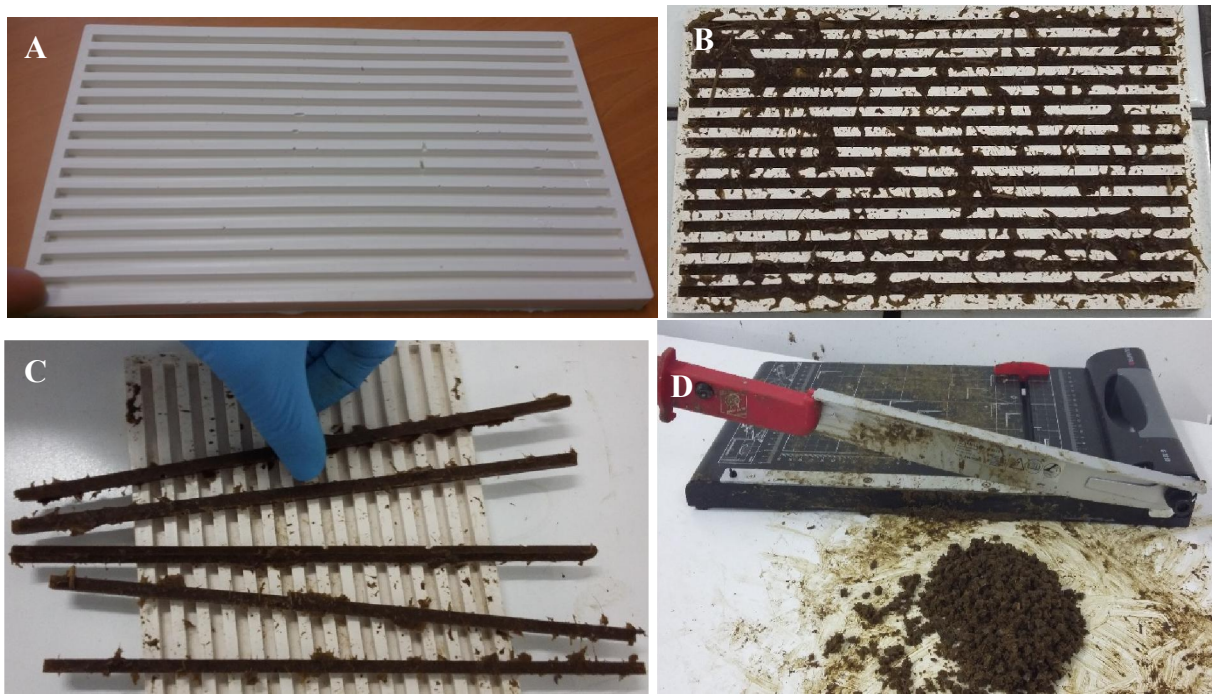


Figure IV.1 : *A : moule de silicone utilisé pour préparer les matières avant le hachage ; B : moules remplis et congelés ; C : Barres des substrats congelées et démontées ; D : Substrats après le hachage.*

IV.3.2. Rhéométrie

IV.3.2.1. Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS)

Ce rhéomètre rotatif a été conçu et réalisé au laboratoire Rhéologie et Procédé dans le cadre de la thèse. Il est dédié à la mesure des propriétés rhéologiques des matériaux bruts. Les caractéristiques détaillées de ce rhéomètre et son étalonnage sont largement détaillés dans le chapitre II : instrumentation RGDS.

Dans ce travail nous avons utilisé le récipient cylindrique moyen de hauteur H = 240 mm et de diamètre D = 200 mm avec la pale de scissomètre correspondante de hauteur H = 120 mm et de diamètre D = 80 mm

IV.3.2.2. Rhéomètre de laboratoire

Un rhéomètre de laboratoire ARG2 de TA instruments a été utilisé dans le cadre de ce travail. Il fonctionne à couple contrôlé avec un couple maximum de 0,2 N.m. Dans cette étude, il a permis de mesurer le couple en réponse à une vitesse angulaire imposée à différentes

températures. Ce rhéomètre a été utilisé pour mesurer le seuil d'écoulement par scissométrie et les propriétés d'écoulement avec le CLEAG.

IV.3.1.2.1. Mesure de seuil d'écoulement par scissométrie

Les dimensions de la pale et du récipient utilisés, la description du système d'anti-glissement, ainsi que la validation de l'ensemble, sont décrites dans le chapitre III au paragraphe III.3.2.2.1.

IV.3.1.2.2. Mesure de viscosité par une géométrie Couette de Large Entrefer Anti Glissement (CLEAG)

Une géométrie Couette de large entrefer a été développée et nommée CLEAG pour Couette de Large Entrefer Anti Glissement. Cette géométrie est adaptée à la longueur des fibres des matières et permet d'éviter le glissement aux parois des suspensions concentrées étudiées. Les détails de cette instrumentation sont donnés dans la **figure IV.2**. L'entrefer entre les deux cylindres intérieur et extérieur est de 13,6 mm. Les cylindres extérieurs et intérieurs sont munis de rainures de 6 mm de profondeur et 5 mm de largeur pour emprisonner le substrat fibreux et éviter le glissement

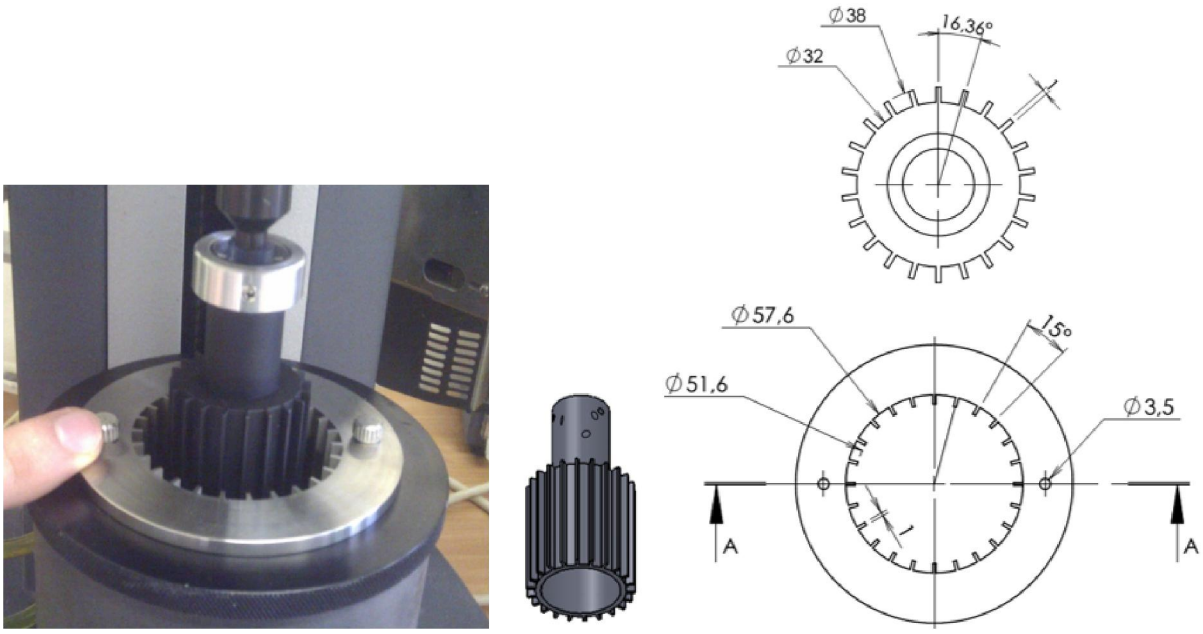


Figure IV.2 *: Géométrie Couette Large Entrefer Anti-Glissement (CLEAG) pour les matières hachées*

Pour les géométries à entrefer large où $0,5 < (Z = R_i / R_o) < 0,99$ comme le CLEAG, où R_i et R_o sont les rayons intérieur et extérieur respectivement, le taux de cisaillement apparent n'est pas homogène dans l'entrefer. Il faut donc calculer le taux de cisaillement à la

paroi du rotor où est calculée la contrainte de cisaillement. Pour cela, la méthode de correction de large entrefer adoptée dans (Macosko, 1994) et détaillée ci-dessous a été utilisée pour le dépouillement des mesures effectuées par cette géométrie (CLEAG). Les calculs des taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$) et des contraintes de cisaillement (τ) ont été effectués en utilisant les mesures des vitesses angulaire Ω_i (1/s), et des couples M_i respectivement et en appliquant les équations suivantes :

$$\dot{\gamma}\,(R_i) = \frac{2\,\Omega_i}{n\,(1 - Z^{\frac{2}{n}})} \qquad \textit{Eq 3}$$

Où n est la pente de la courbe de ln (M_i) en fonction de ln (Ω_i) mesurées pour plusieurs vitesses de rotation ; donc, $n = \frac{d \ln M_i}{d \ln \Omega_i}$

A partir de la mesure du couple au niveau du rotor (en N.m), la contrainte de cisaillement appliquée par le rotor a été calculée par l'équation ci-dessous :

$$\tau(R_i) = \frac{M_i}{2\,\pi\,R_i^2\,L} \qquad \textit{Eq 4}$$

où L est la hauteur du rotor (m).

Cette méthode de correction a été validée en faisant des mesures sur deux fluides d'étalonnage newtoniens :

- S20 (huile silicone étalon de chez Paragon Scientific Ltd) de viscosité 29,4 mPa.s à 25 °C avec lequel une viscosité d'environ 32,25 mPa.s a été mesurée représentant un écart d'environ 9 %.
- S30000 (huile silicone étalon de chez Paragon Scientific Ltd) de viscosité 72,4 Pa.s à 25 °C avec lequel une viscosité d'environ 68,7 Pa.s a été mesurée représentant un écart d'environ 5 %.

Ces écarts sont acceptables compte tenu de la forme des interfaces, des incertitudes de mesures du rhéomètre et de la température de la matière.

Donc, cette méthode de correction a été appliquée sur toutes les mesures effectuées par la géométrie CLEAG.

Après de nombreux essais préliminaires, une méthodologie de conditionnement de la matière a été établie pour prendre en compte les spécificités des matériaux étudiés telles que la haute teneur en fibres et la séparation des phases lors du test. Ces phénomènes font de la mise en place de la matière et de la réalisation du test dans des conditions contrôlées un véritable défi, qui a demandé des soins particuliers et de temps de manipulation important. Nous avons suivi donc le protocole suivant pour effectuer l'essai :

1. Introduire une quantité de matière suffisante pour remplir le volume de la partie basse du Couette jusqu'au niveau inférieur du rotor.
2. Baisser le rotor.
3. Remplir l'entrefer entre les deux cylindres en utilisant une spatule si nécessaire.
4. Effectuer la mesure à un seul taux de cisaillement et prendre en compte le couple maximal mesuré. En effet, les matériaux concentrés denses ne supportent pas une déformation trop élevée à cause des effets perturbateurs comme la séparation des phases et l'effet de la centrifugation. De ce fait, la valeur de couple mesurée évolue au cours du temps. Pour cela, nous avons supposé que le couple maximal mesuré représente le régime d'écoulement permanent de ces matériaux.
5. Enlever la matière.
6. Recommencer les étapes de 1 à 4 pour mesurer la contrainte correspondant à chaque taux de cisaillement imposé.

IV.4. Caractérisations massique, volumique et granulométrique des matières

Pour essayer d'établir un lien entre la rhéologie et les paramètres physiques des matériaux étudiés, il nous est apparu indispensable, au-delà de la mesure de la matière sèche, de déterminer les fractions massiques et éventuellement volumiques des constituants des matériaux. Pour cela, ces caractérisations ont été faites pour la matière 4 utilisée pour traiter l'effet de la MS et/ou la $F_{v\ fibre\ humide}$.

Nous avons déterminé les paramètres suivants :

1. La fraction volumique des fibres humides gonflées ($F_{v\ fibre\ humide}$) dans un volume donné de matière humide.
2. La fraction volumique maximale ($F_{v\ max}$) des fibres correspondant à la frontière entre les régimes biphasique et triphasique.

Les méthodes suivies pour déterminer ces paramètres sont présentées dans le chapitre III.

Egalement, des caractérisations granulométriques des particules fibreuses ont été effectuées sur la matière 2, utilisée pour traiter l'effet de hachage, pour déterminer la longueur, la largeur et le rapport d'aspect des fibres avant et après hachage. La méthode de cette caractérisation et les outils utilisés sont détaillés également dans le chapitre III. Le nombre de fibres prises en compte est identique pour les deux échantillons de matière 2 avant et après hachage.

IV.5. Effet de la taille des fibres végétales

IV.5.1. Revue bibliographique

(Viamajala et al., 2009) ont mesuré les propriétés rhéologiques de suspensions concentrées à très concentrées (10 ≤ MS ≤ 40 %) en cannes de maïs en utilisant deux tailles de particules (20 mesh = 0,841 mm et 80 mesh = 0,177 mm). Ces deux dimensions ont été obtenues en broyant les cannes de maïs sèches par un broyeur à couteaux de laboratoire. Pour plusieurs MS variant entre 10 et 40 %, ils ont montré que la viscosité apparente et le seuil d'écoulement augmentent avec la taille des particules. Ils ont justifié leurs résultats en notant que les fibres longues peuvent avoir des interactions plus longues (en termes de durée) que les fibres plus courtes. Ils ont ajouté que ces interactions conduisent à des collisions, des frottements ou des enchevêtrements plus importants dans les suspensions ayant des particules plus longues et cela conduit donc à des viscosités plus élevées. Ils ont introduit aussi une deuxième explication due à la réduction de taille des particules de biomasse lignocellulosique : ces particules contiendraient probablement moins de macro-pores ou des macro-pores plus petits, de telle sorte que moins de liquide se retrouverait à l'intérieur des macro-pores (l'eau liée) et de ce fait plus d'eau libre resterait disponible. Ceci se traduit par moins d'interactions entre les particules et donc des viscosités apparentes inférieures. Cette deuxième justification reste une hypothèse sans vérification expérimentale. Des tests de séchage, déterminant le taux d'eau liée (WC), ont été effectués dans notre étude afin de voir l'effet du hachage sur le taux d'eau liée.

(Wiman et al., 2011) ont utilisé un scissomètre pour mesurer les propriétés rhéologiques des boues, formées à partir d'épinettes écorcés, prétraitées chimiquement et thermiquement. Ils ont étudié l'effet du hachage par un hachoir à couteaux. Ils ont trouvé que le seuil et la viscosité augmentent en diminuant la taille (le diamètre selon leur explication) des particules. Ils ont montré que le hachage réduit le diamètre des grandes particules (> 100 μm) tandis que les particules fines (< 10 μm) ne sont pas affectées.

(Zafari & Kianmehr, 2012) ont utilisé un scissomètre pour étudier l'évolution du seuil d'écoulement de fumier de vache composté, en fonction du taux de MS et de la taille de particules. Ils ont utilisé des matières possédant des particules de taille variant de 0,2 à 2 mm. Ils ont trouvé, pour une matière de MS donnée, que le seuil augmente en diminuant la taille de

particules. Ils ont justifié ce résultat par le fait que la diminution de la taille de particules va diminuer le volume des espaces poreux entre les particules et causer plus de contacts solide-solide, augmentant ainsi le seuil. De toute façon, leurs observations correspondent aux milieux granulaires (solides et air) qui ne sont pas comparables aux matériaux biphasiques saturés (solide et liquide) traités dans ce chapitre.

(Tian et al., 2014) ont étudié l'effet de changement de la taille des particules solides (20 mesh = 0,841 mm et 80 mesh = 0,177 mm) sur les propriétés rhéologiques des fumiers composés de lisier avec de la canne de maïs hachée et prétraitée chimiquement. Ils ont montré que dans leur étude, l'effet de la taille dépend de la MS. Ainsi, à 4,23% de MS, les propriétés rhéologiques ne sont pas affectées par la taille des particules. Par contre, le lisier à 7,32% de MS a montré une chute de la contrainte de cisaillement de 10,37% en diminuant la taille des particules de 20 à 80 mesh. Ils ont justifié ce résultat par le fait que le hachage des cannes de maïs casse ces tissus et provoque une transformation d'une fraction d'eau liée aux particules en eau libre qui diminue la viscosité ce qui est en accord avec l'hypothèse de (Viamajala et al., 2009).

La revue bibliographique, pour les quatre auteurs sauf (Zafari & Kianmehr, 2012), présentée ci-dessus montre que la diminution de la longueur des particules dans les matériaux qu'ils étudient se traduit par une diminution des contraintes nécessaires au cisaillement de ces matériaux.

Néanmoins, ces trois auteurs n'ont pas proposé de lois d'évolution des grandeurs rhéologiques en fonction de la taille des fibres pour essayer de quantifier ces évolutions. Pour tenter d'éclaircir ce point, nous avons analysé les travaux de la littérature relatifs aux suspensions de fibres papetières.

(Bennington et al., 1990) ont mesuré le seuil de cisaillement de la pâte de bois contenant des fibres fibrillées flexibles et des suspensions de fibres de nylon synthétique, relativement rigides. À partir des mesures effectuées sur plusieurs fractions volumiques des fibres F_v (0,5% < F_v < 40%) de plusieurs longueurs (de 0,6 à 7,12 mm) avec des diamètres variant de 0,03 à 0,045 mm, ils ont représenté l'évolution du seuil d'écoulement en fonction des paramètres indiqués dans l'équation ci-dessous.

$$\tau_0 = a\, E^c\, r_p^d\, F_v^b \qquad \textit{Eq 5}$$

Où : a, b, c et d : constantes. E : module d'élasticité (N. m^{-2}).

r_p : rapport d'aspect de la fibre $r_p \equiv L/d$ où L est la longueur et d est la largeur de la fibre.

F_v : fraction volumique de fibre humide.

Ils ont trouvé les relations suivantes pour la suspension synthétique et la pâte de bois respectivement :

$$\tau_0 = 2{,}27 \,.\, 10^{-2}\, E^{0{,}157}\, r_p^{2.95}\, F_v^{2{,}87} \qquad R^2 = 0{,}899$$

$$\tau_0 = 6{,}32 \,.\, 10^{6}\, E^{-0{,}168}\, r_p^{0{,}3\ 16} F_v^{3{,}1} \qquad R^2 = 0{,}981$$

A partir de ces deux équations, nous observons que la F_v est le paramètre le plus important avec un exposant d'environ 3 quels que soient le type et les dimensions des fibres.

L'exposant négatif sur le module d'élasticité de la pâte de bois affiché dans l'équation ci-dessus indique que les fibres les plus flexibles donnent la contrainte de cisaillement la plus importante. Ceci indique que d'autres forces, en plus de celles résultant de la flexion des fibres élastiques, contribuent à la résistance du réseau. En particulier, des fibres plus souples permettraient un plus grand nombre de contact entre les fibres adjacentes et augmenteraient ainsi la contribution de la liaison de surface mécanique.

Pour ce qui concerne le rapport d'aspect, l'exposant plus faible trouvé pour les fibres de bois est attribué par ces auteurs à la très large distribution des longueurs de fibres dans cette suspension, comme cela est illustré en **figure IV.3 - a**

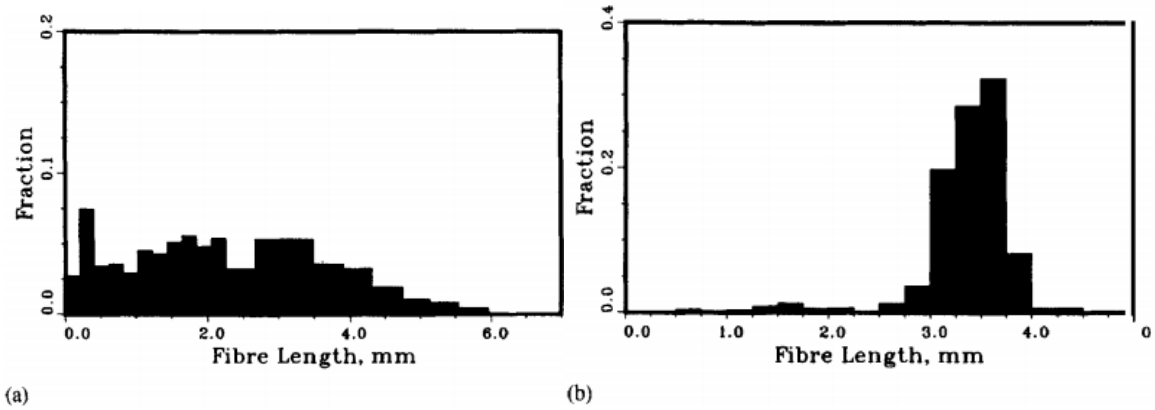


Figure IV.3 : *La distribution de la longueur des fibres pour a) la pâte de bois et b) la suspension de fibres de nylon synthétique (Bennington et al., 1990)*

IV.5.2. Résultats et discussions

IV.5.2.1. Propriétés rhéométriques

Des mesures préliminaires, non présentées dans ce document, ont montré que les matériaux étudiés dans notre travail, type fumier, possèdent un seuil d'écoulement et un comportement rhéofluidifiant comme souligné également par d'autres auteurs (Pimenova & Hanley, 2004) ; (Pimenova & Hanley, 2003) ; (Kumar et al., 1972) ; (Viamajala et al., 2009) ; (Ehrhardt et al., 2010) et (Tian et al., 2014). Le modèle d'Herschel–Bulkley (HB), qui s'écrit ci-dessous sous une forme monodimensionnelle, a été donc adopté pour représenter leurs comportements en écoulement de cisaillement.

$$\tau = \tau_0 + k\,\dot{\gamma}^n \qquad Eq\ 6$$

Où, τ est la contrainte de cisaillement (Pa).

τ_0 est le seuil d'écoulement (Pa).

$\dot{\gamma}$ est le taux de cisaillement (s^{-1}).

k est la consistance du fluide ($Pa.s^n$).

n est l'indice de rhéofluidification.

Dans l'équation (**Eq 6**) la contrainte de cisaillement est la somme de la contribution de la contrainte du seuil d'écoulement (τ_0) caractérisant le fluide au repos et d'une contribution visqueuse ($k\dot{\gamma}^n$) dépendante du gradient de cisaillement lorsque le fluide est cisaillé.

La **figure IV.4-A** montre les mesures expérimentales des contraintes de cisaillement en fonction du taux de cisaillement effectuées sur la matière 1 hachée à 3, 5 et 8 mm. Ces mesures ont été effectuées avec le CLEAG à 55°C qui représente la température du réacteur biologique. Les mesures ont été effectuées selon le protocole détaillé en paragraphe **IV.3.1.2.2**. La méthode des moindres carrées a été adoptée pour ajuster ces résultats par le modèle d'HB.

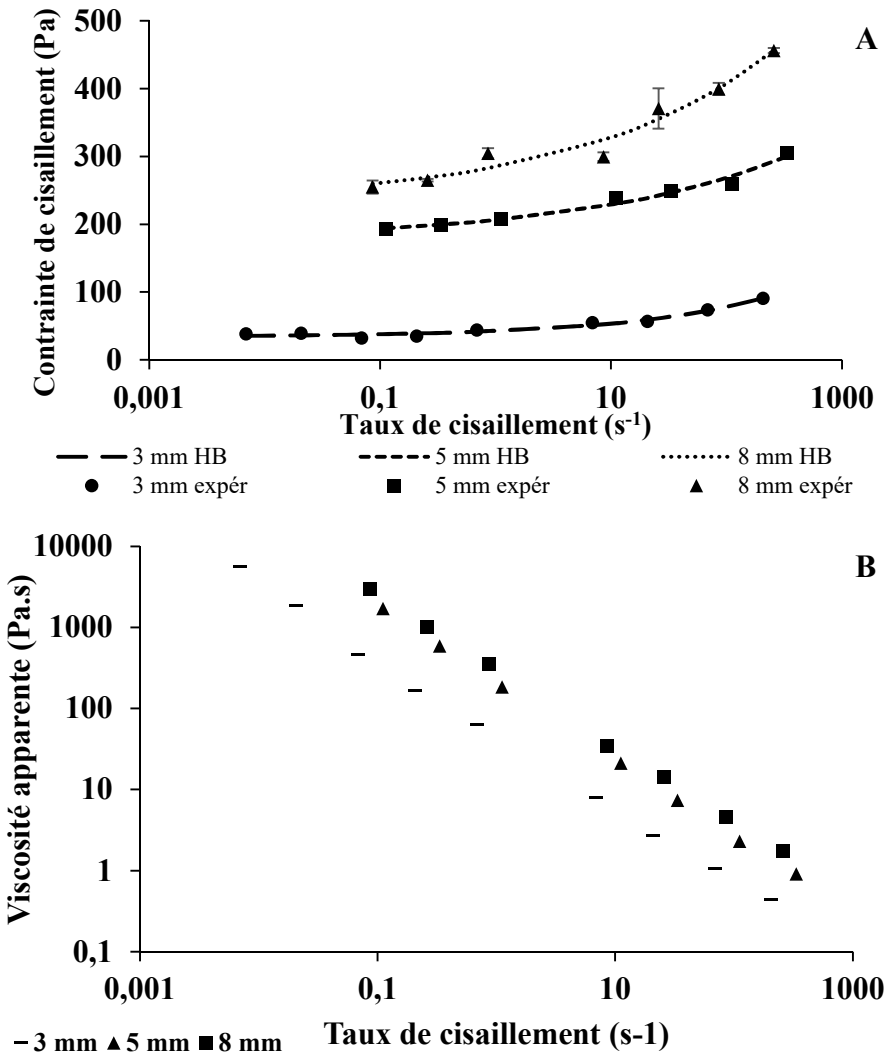


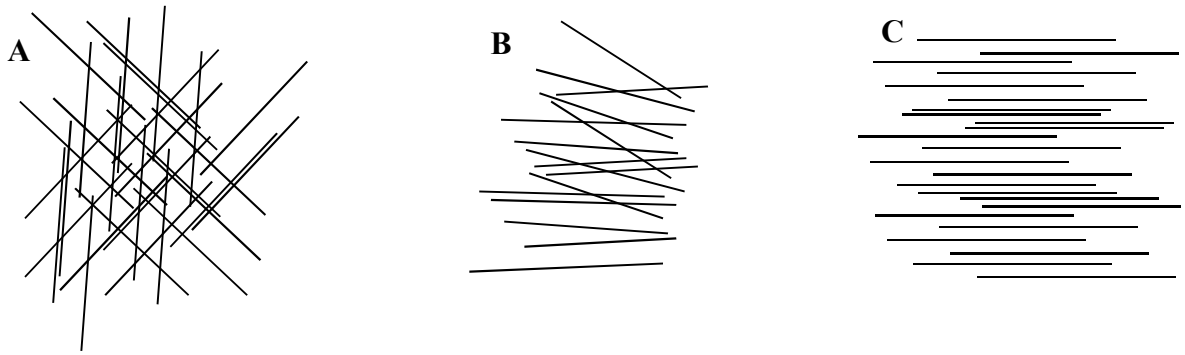
Figure IV.4 *: courbes d'écoulement de la matière 1 à plusieurs tailles de hachage. Les points et les courbes représentent les mesures expérimentales et l'ajustement par le modèle d'HB respectivement.* ***A*** *:* τ *en fonction de* $\dot{\gamma}$*,* ***B*** *:* μ_{app} *en fonction de* $\dot{\gamma}$

La **figure IV.4-A et B** mettent en évidence une diminution du niveau des contraintes et de viscosité apparente lorsque la longueur de hachage diminue.

Ces diminutions remarquables des contraintes conduisent nécessairement à diminuer l'énergie nécessaire pour mettre la matière en mouvement lors du procédé de méthanisation agricole en voie sèche.

Par ailleurs, le comportement rhéofluidifiant observé en **figure IV.4-B** et aux hauts gradients de cisaillement dans toutes les courbes de la **figure IV.4-A** peut être justifié par la proposition de (Sato, 1995) qui a suggéré que, dans les suspensions concentrées, les particules interagissent pour former un réseau tridimensionnel responsable du seuil d'écoulement (**Figure IV.5-A**). La déstructuration progressive de ce réseau, ou bien la réorganisation des

fibres, réduisant le nombre de contact et orientant les fibres (**Figure IV.5-B et C**), à cause du cisaillement, conduit à l'abaissement de la viscosité apparente et du comportement rhéofluidifiant (**figure IV.4-B)**. En effet, le comportement rhéofluidifiant est un phénomène très général qui reflète la tendance des particules à s'organiser pour faciliter l'écoulement. La microstructure de la suspension évolue pendant l'écoulement afin de réduire au minimum la dissipation de l'énergie, facilitant ainsi l'écoulement de la suspension (Fall, 2008).



Seuil d'écoulement ou cisaillement très faible *Cisaillement moyen* *Cisaillement fort*

Figure IV.5 *: Organisation des fibres selon le taux de cisaillement*

Les valeurs du seuil, de k et de n obtenues suite à l'ajustement par le modèle d'HB sont présentées dans le tableau ci-dessous pour les différentes tailles de hachage.

Tableau IV.3 : *Seuil, k et n pour la matière 1*

Taille (mm)	Seuil (Pa)	k (Pa.s^n)	n(-)
3	34	8,8	0,35
5	177	29,8	0,24
8	231	53,7	0,26

Ces résultats font apparaître que :

- Le seuil d'écoulement (τ_0) et la consistance du fluide décroissent en hachant la matière plus finement.
- L'indice de rhéofluidification (n) est relativement indépendant de la taille des fibres compte tenu des incertitudes.

L'équation **Eq 5** proposée par (Bennington et al., 1990), peut être simplifiée dans notre cas en prenant quelques considérations :

- nous avons supposé que le module d'élasticité est indépendant de la longueur des fibres.
- d est constant : la méthode de hachage coupe les fibres uniquement dans le sens de la longueur donc la variation de r_p est uniquement due à la variation de L.
- Fv est constante.

Donc l'**Eq 5** peut être écrite sous la forme suivante :

$$\tau_0 = f\ L^h \qquad Eq\ 7$$

Un modèle similaire a été utilisé dans ce travail pour ajuster les valeurs obtenues pour la viscosité apparente $\mu_{app} = \tau / \dot{\gamma}$

$$\mu_{app} = j\ L^u \qquad Eq\ 8$$

La **figure IV.6** montre les résultats expérimentaux du seuil d'écoulement et de la viscosité apparente en fonction de la taille de hachage à 3, 5 et 8 mm.

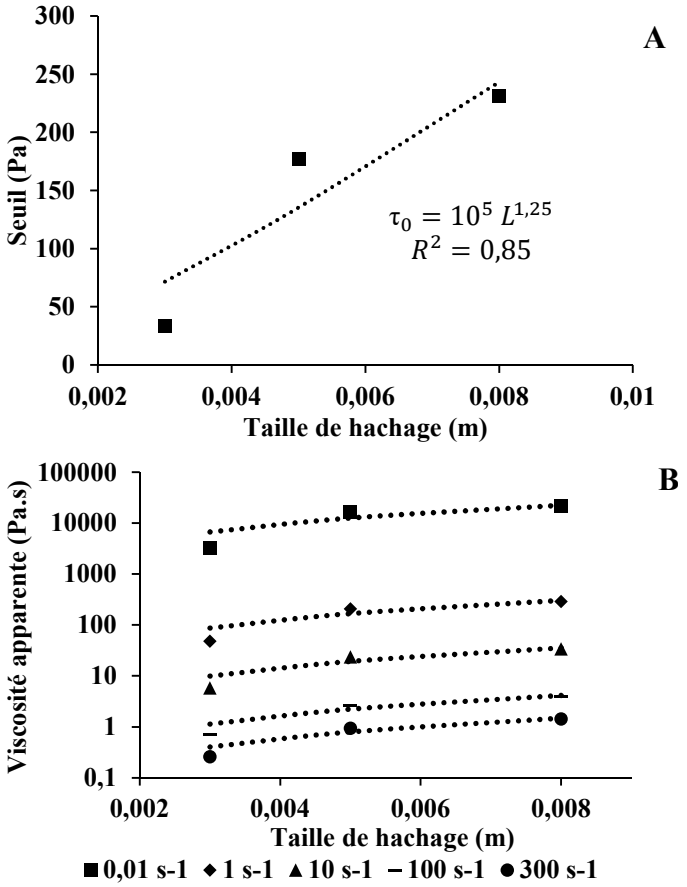


Figure IV.6 : *Mesures rhéomètriques du seuil d'écoulement (A) et de la viscosité apparente (B) de la matière 1 en fonction de la taille de hachage. Pour les deux figures les points représentent les mesures rhéomètriques et les lignes pointillées représentent les ajustement mathématiques.*

L'équation affichée dans la **figure IV.6-A** montre que :

- La valeur de l'exposant (h) est de 1,25.
- Le préfacteur (f) possède une valeur de 10^5 Pa.m^{-h}.
- Le facteur de régression associé à ces valeurs étant cependant de 0,85 seulement.

Les valeurs du pré facteur (j) et de l'exposant (u) obtenues suite à l'ajustement des μ_{app} en fonction de la taille de hachage et pour plusieurs taux de cisaillement (**figure IV.6-B**) sont représentées dans le tableau ci-dessous

Tableau IV.4 *: Valeurs de j et u pour la matière 1 aux taux de cisaillement divers avec L exprimé en m*

$\dot{\gamma}$ (s^{-1})	j (Pa.s.m^{-u})	u (-)	R^2
0,01	8,5 10^6	1,23	0,87
1	1,4 10^5	1,27	0,9
10	1,8 10^4	1,3	0,91
100	2,4 10^3	1,32	0,93
300	9,1 10^2	1,33	0,93

Le **tableau IV.4** montre que :

- le préfacteur (j) décroît d'environ une décade lorsque $\dot{\gamma}$ augmente d'une décade.
- L'exposant (u) diminue d'une valeur moyenne d'environ 0,02 en augmentant le taux de cisaillement d'une décade.

Il n'est pas possible de savoir si les variations du préfacteur (j) et de l'exposant (u) sont significatives ou non car il n'y avait pas assez de mesures pour déterminer les écart-types. Ces résultats sont nouveaux. La revue bibliographique ne montre pas d'études similaires.

Nous supposons que les diminutions de τ_0 et de μ_{app} ne sont pas attribués au même mécanisme. En effet, en hachant la matière plus finement, la longueur des fibres devient moins importante. Cela provoque deux phénomènes :

- Un seuil d'écoulement moins important à cause de la réduction de l'enchevêtrement entre les fibres. Cela conduit à un réseau fibreux moins résistant.
- Pour un taux de cisaillement donné, nous attribuons la diminution de la viscosité apparente avec la taille de hachage (**Figure IV.6-B**) à la diminution de la contrainte de

cisaillement en fonction de la taille de hachage (**Figure IV.4-A**). En effet, la contrainte est liée directement aux interactions physiques entre les fibres, notamment le nombre de points de contacts de chaque fibre avec les autres et la résistance de l'orientation des fibres lors de l'écoulement. Ces deux derniers types d'interactions sont plus remarquables dans les fibres les plus longues par rapport à celles moins longues.

L'effet de hachage sur le seuil d'écoulement a été également étudié pour la matière 2 où nous sommes allés plus loin en recherchant les raisons de diminution de seuil d'écoulement avec la taille de hachage. Cela a été effectué en faisant des caractérisations granulométriques et des tests de séchage pour la matière 2 avant et après le hachage. Ces tests n'ont pas effectués sur la matière 1 à cause de souci de temps et de disponibilité de cette matière.

La **figure IV.7** montre l'évolution de τ_0 de la matière 2, mesuré à 20 °C, en fonction de la taille de hachage effectué à 3, 5 et 10 mm. Les mesures ont été répétées quatre fois pour chaque taille de hachage et en utilisant deux appareils : le CLEAG et un scissomètre.

Par souci de clarté, nous ne présentons ici que les mesures obtenues avec le CLEAG, géométrie utilisée pour caractériser la matière 1 ci-dessus. L'écart-type des quatre mesures obtenues avec cette géométrie pour la matière 2 est de 7 à 12 Pa aux faibles vitesses de rotation. La comparaison entre le CLEAG et le scissomètre est présenté en annexe IV.1.

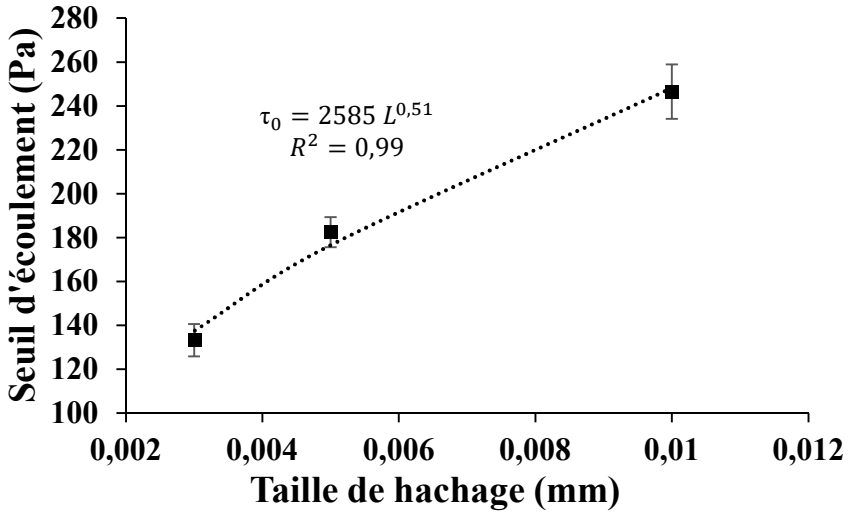


Figure IV.7 : *Seuil d'écoulement de la matière 2 mesuré par le CLEAG. Les points représentent les mesures expérimentales et la ligne représente l'ajustement avec l'Eq 7.*

L'équation 7 a été utilisée pour représenter les mesures. La **figure IV.7** montre que l'exposant (h) est de l'ordre de 0,5 avec un très bon facteur de régression. Cette valeur est similaire à celle de l'ordre de 0,3, obtenue par (Bennington et al., 1990) sur de la pâte de bois. Notons que la caractérisation granulométrique de la matière 2 brute, présentée dans le chapitre III (**figures III.2 et III.3**), met en évidence une large distribution des r_p des fibres comme c'est justement le cas pour la pâte de bois utilisée par (Bennington et al., 1990).

Par contre, dans le paragraphe précédent, pour les mesures réalisées avec la matière 1, l'exposant (h) est de 1,25, soit de l'ordre de deux fois supérieur à celui de la matière 2. Cette augmentation peut être attribuée à la méthode d'analyse des résultats. En effet, le seuil d'écoulement de la matière 1 a été mesuré par la géométrie CLEAG et par ailleurs, le modèle d'HB a été utilisé pour déterminer ce seuil. Par contre, pour la matière 2, le seuil est évalué à partir des mesures à faibles vitesses mais aucun modèle rhéologique n'est mis en œuvre pour le déterminer. L'incertitude liée à la mesure et l'absence de calage par un modèle adéquat peuvent expliquer les différences dans l'exposant h entre matière 1 et matière 2.

IV.5.2.2. Impacte de hachage sur la granulométrie des fibres de la matière 2

Nous avons observé dans les **figures III.4 (A1 et A2)**, illustrant les caractéristiques granulométriques de la matière 2 brute, que les fibres ayant des longueurs supérieures à 3 mm sont peu nombreuses par rapport aux fibres plus courtes. Cela veut dire que la plupart des fibres possèdent des longueurs inférieures aux longueurs de hachage. Cependant, le hachage impacte clairement la rhéologie de ces matériaux et il convient de déterminer l'effet du hachage sur les dimensions des fibres. Pour cela, nous avons effectué des caractérisations granulométriques de la matière 2 après le hachage à 3 mm.

La **figure IV.8** montre la fraction du nombre des fibres en fonction de la longueur avant et après le hachage à 3 mm. Cette figure montre que les fibres les plus touchées par le hachage sont celles de longueur inférieure à 1,5 mm environ. La courbe de la matière brute dans cette figure montre que le déchiqueteur a laissé peu de fibres avec une longueur > 3 mm. Il était réglé à 1 cm mais la plupart des fibres possèdent des longueurs < 3 mm.

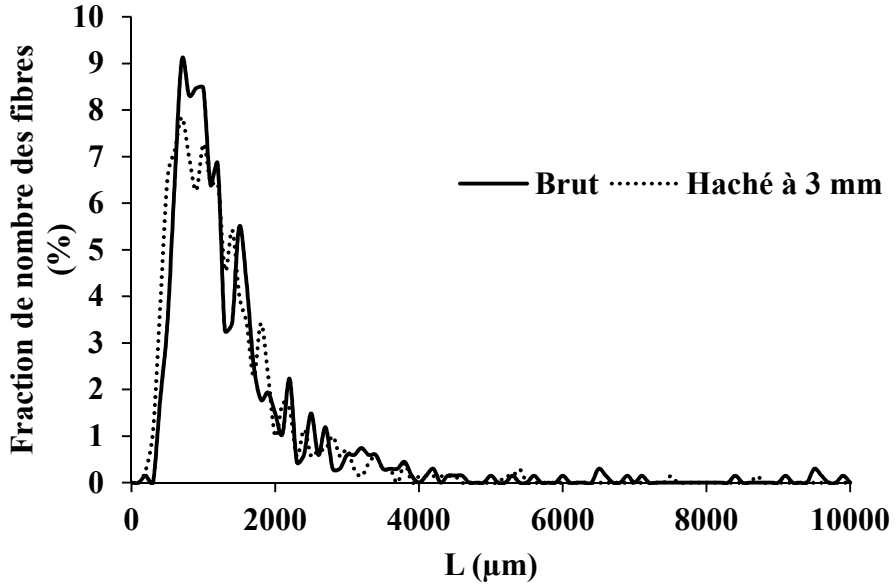


Figure IV.8 : *Fraction de nombre des fibres de la matière 2 en fonction de la longueur*

La **figure IV.8** montre que le hachage n'a pas impacté uniquement les fibres de longueur supérieure mais également une partie des fibres de longueur inférieure que la taille de hachage.

Le **tableau IV.5** montre la longueur moyenne, la largeur moyenne, et le r_p moyen des fibres, ainsi que le nombre et la fraction de nombre des fibres avec L > 3 mm pour les matières brutes et hachées.

Tableau IV.5 *: Caractéristiques granulométriques de la matière 2 avant et après le hachage*

	Longueur (µm)	**Largeur (µm)**	**r_p**	**Nombre et fraction des fibres avec L > 3 mm**
Matière 2 brute	1490	150	18,5	50 fibres = 7 % de total
Matière 2 hachée	1250	162	13,3	29 fibres = 4 % de total

L'analyse des résultats granulométriques affichées dans le **tableau IV.5** montre que le hachage a réduit le r_p moyen des fibres d'environ 28 % (de 18,5 à 13,3). Le **tableau IV.5** indique également que cette réduction n'est pas uniquement attribuée à la diminution de la longueur moyenne (17%) mais également à la largeur moyenne de la matière hachée qui est supérieure de celle du brut d'environ 7 %. Ce tableau montre aussi que le hachage a diminué le nombre des fibres ayant une longueur > taille de hachage (3 mm). Donc, les fibres longues sont peu nombreuses dans la matière brute mais elles ont été réduites d'environ 40% après le hachage.

IV.5.2.3. Influence de la taille du hachage sur la teneur en eau liée et l'impact sur la rhéologie des matériaux. Etude réalisé sur la matière 2.

La revue bibliographique détaillée au début de ce chapitre a montré que quelques auteurs ont justifié la diminution de la contrainte de cisaillement après le hachage par l'effet d'une fraction d'eau liée est devenue libre à cause du hachage (Viamajala et al., 2009) et (Tian et al., 2014). Pour cela, avons souhaité évaluer l'effet du hachage sur le taux d'eau liée. Le **tableau IV.6** montre la teneur en eau liée de la matière 2 mesurée à différentes tailles de hachage.

Tableau IV.6 *: Taux d'eau liée (WC) pour la matière 2*

Matière 2	WC (g eau/g MS)	Ecart-type (g eau/g MS)
brut	5,64	0,95
haché à 5 mm	4,54	0,65
haché à 3 mm	4,63	0,07

Les résultats présentés dans le **tableau IV.6** montrent que la teneur maximale en eau liée n'est pas significativement impactée par le hachage jusqu'à 3 mm. Cela indique que le hachage jusqu'à 3 mm pour les matériaux étudiés dans ce travail n'augmente pas la fraction d'eau libre contrairement à l'hypothèse de (Viamajala et al., 2009) et aux résultats de (Tian et al., 2014). En effet, la dimension du broyage utilisé dans leurs travaux (0,84 et 0,177 mm) est beaucoup plus fine que notre hachage. De plus, ils utilisent un broyage destructif de la structure des fibres contrairement à notre hachage. Dans ce cas de broyage fin, nous supposons que les micro-pores et les tissus contiennent de l'eau liée pouvant être cassés ou coupés. Par conséquent l'eau à l'intérieur devient de l'eau libre et n'est pas retenue par les fibres. La taille de hachage effectuée dans notre travail est loin de cette hypothèse et c'est pour cela que nous n'avons pas trouvé un effet de notre hachage sur le taux d'eau liée.

En conclusion, la réduction des contraintes d'écoulement à cause du hachage de la matière met en évidence l'effet bénéfique du hachage sur l'énergie nécessaire pour mettre un mélange de fumier et résidus agricoles en mouvement lors de la fermentation. Le hachage n'a pas changé significativement la teneur en eau liée. Par contre, il déconstruit le réseau fibreux, l'ensemble des longueurs, conduisant ainsi à réduire l'ensemble des propriétés rhéologiques de ces matériaux, à savoir le seuil d'écoulement et la viscosité apparente. Nous supposons que la taille de hachage optimal à l'échelle industrielle peut être déterminée en croisant deux courbes : le coût de hachage avec le bénéfice énergétique en fonction de la taille. Plusieurs paramètres peuvent également être pris en compte comme la durée de hachage et le nombre de fois de passage dans le hachoir, etc…

IV.6. Effet de la température

IV.6.1. Revue bibliographique

Plusieurs auteurs ont traité l'effet de la température sur la rhéologie de fumiers et/ou de lisier. Le **tableau IV.7** présente un résumé de ces travaux.

La plupart de ces chercheurs ont présenté l'effet de la température sur leurs matériaux en utilisant la loi d'Arrhenius :

$$\mu_{app} = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} = \mu_{réf}\, e^{\left(\frac{E_a}{R\,T_{abs}}\right)} \qquad Eq\ 9$$

Où : μ_{app} : la viscosité apparente (Pa.s).

$\mu_{réf}$: viscosité de référence (Pa.s).

E_a : l'énergie d'activation (J/mol).

R : la constante universelle des gaz (8,3144 J mol^{-1} K^{-1}).

T_{abs} : la température absolue en Kelvin (°K = 273,15 + °C).

Tableau IV.7 : *Revue bibliographique des travaux concernant l'effet de la température sur la rhéologie des biomasses. Les valeurs citées de la viscosité apparente sont calculées à °γ = 100 s^{-1}*

Auteur	Matière	MS (%)	Taille	Température (°C)	Géométrie	°γ (s^{-1})	Modèle rhéologique et résultats	Modélisation de l'effet de T et résultats
(Shetler & Chen, 1983)	lisier de vache	2,6 – 19,3	99% < 1 mm 90%< 0,5 mm	14 - 64	Couette d'entrefer de 0,733 cm sans contrôler le glissement sur les parois	20 - 200	Loi de puissance (LP) : $\tau = k\,\dot{\gamma}^n$ T↗ : μ_{app} ↘, n → et k ↘ À : 40 – 50 °C et 12,11% MS la μ_{app} = 0,01 – 0,04 Pa.s	loi d'Arrhenius pour μ_{app} avec E_a = 13,8 ± 2,2 kJ.mol^{-1}. Elle est indépendante de la MS
(Chen, 1986)	Idem (Shetler & Chen, 1983)						$\tau = \eta_0 \gamma^{\circ} + K''\,\gamma^{\circ n''}$ η_0 est la viscosité limitante et K" et n" sont des paramètres rhéologiques	loi d'Arrhenius pour μ_{app} avec E_a = 18,1 ± 5,4 kJ.mol^{-1}
(Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992)	fumiers des bovins laitiers marocains	2,5 - 12	----	20 - 60	Couette d'entrefer de 0,6 mm sans contrôler le glissement	1 – 800 selon la MS	(LP) T↗ : μ_{app} ↘, n ↗ et k ↘ À : 40 – 60 °C et 12,1% MS la μ_{app} = 0,15 – 0,4 Pa.s	loi d'Arrhenius pour k MS ↗ E_a ↘. MS=2,5 : E_a = 55,1 kJ.mol^{-1} MS=12,5 : E_a = 26,8 kJ.mol^{-1}
(El-Mashad et al., 2005)	lisier de vache	10	----	30 - 60	Couette avec contrôle du glissement par des papiers rugueux	2,38 - 238	(LP) T↗ : μ_{app} ↘, n → et k ↘ À : 45 – 60 °C et 10 % de MS la μ_{app} = 0,55 – 0,7 Pa.s	K = - 0,3 T + 29 ; R^2 = 0,85 μ_{app} = AT+B loi d'Arrhenius pour μ_{app} E_a = 17 ± 0,3 kJ.mol^{-1}
(Tian et al., 2014)	lisier avec de canne de maïs haché et prétraiter chimiquement	4,23 – 7,32	0,177 – 0,841 mm	25, 35 et 55	Couette d'entrefer de 3 mm sans contrôler le glissement	0 - 70	Puissance, HB, Bingham et Casson T↗ : μ_{app} ↘, k ↘, n → À MS = 4,23% pas d'effet de T T 25→55 : τ ↘ de 7,3 si MS = 5,75% τ ↘ de 11,4 si MS = 7,32%.	
(Minaei et al,. 2015)	Fumier laitier chargé de sable (36%)	7 - 13	----	10 - 50	Couette d'entrefer de 2,9 mm sans contrôler le glissement	1,76 – 225,28	(LP) T↗ : μ_{app} ↘, n → et k ↘ À : 40 – 50 °C, 100 °γ-1 et 13 % MS la μ_{app} = 0,24 – 0,27 Pa.s	loi d'Arrhenius pour μ_{app} MS ↗ E_a ↗, °γ ↗ E_a ↘ E_a = 8,9 ± 4,42 kJ.mol^{-1} (ex)

L'analyse des résultats présentés dans le **tableau IV.7** fait apparaitre que :

- La plupart des auteurs ont travaillé sur des lisiers. Les faibles MS de leurs matériaux indiquent que ce sont des lisiers non pailleux qui ressemblent peu aux matériaux étudiés dans notre travail. Les matériaux les plus proches des nôtres sont ceux utilisés par (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992).
- La plupart des auteurs ne mentionnent pas les tailles des particules dans les matériaux étudiés et ne mentionnent pas s'ils ont pris des mesures contre le glissement sur les parois. Donc nous ne pouvons pas savoir si l'entrefer choisi est compatible avec les dimensions des particules ou non. Par conséquent nous ne savons pas si le cisaillement s'effectue de manière contrôlée ou pas.
- La plupart des auteurs ne prennent pas en compte la présence du seuil d'écoulement de leurs matériaux. Cela ne peut pas être correct, notamment pour du fumier ou du lisier à MS élevée, car plusieurs mesures (non présentées dans ce travail) ont montré que ces matériaux possèdent un seuil d'écoulement même pour des lisiers ne contenant pas des fibres.
- Tous ces auteurs ont trouvé que l'augmentation de la température conduit à diminuer la viscosité apparente (μ_{app}) et la consistance du fluide (k). Par ailleurs, l'indice de rhéofluidification (n) ne variait pas en fonction de la température selon la plupart des auteurs sauf pour (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992) sur les fumiers bovins où n augmente.
- La diminution de la viscosité en augmentant la température, ce qui est compatible avec la théorie de l'énergie d'activation (Mayr, 2006), ce qui a été représentée par la loi d'Arrhenius qui exprime l'évolution de la température en fonction de l'énergie d'activation. La théorie de l'énergie d'activation suppose qu'au niveau moléculaire, une température plus élevée rend le mouvement thermique des particules et des molécules plus intenses, ce qui affaiblit les interactions du réseau entre les particules ou alors brise certaines liaisons chimiques de longues chaînes de molécules et les rend solubles (Liu et al., 2015).

IV.6.2. Résultats et discussions

Les températures choisies dans ce chapitre correspondent à celles de réacteurs utilisés dans (Dooms, 2017) qui simulait le procédé Arkométha®.

Pour montrer l'effet de l'évolution de la température sur la rhéologie de nos matériaux, nous avons utilisé :

- **La matière 1** pour montrer l'évolution des propriétés d'écoulement. Un seul test a été effectué, en utilisant la CLEAG, pour chaque taux de cisaillement et chaque température étudiée. La **figure IV.9** montre les résultats obtenus pour 3 températures (45, 55 et 60°C) et leurs ajustements en utilisant le modèle d'HB.
- **La matière 3** pour montrer l'évolution du seuil d'écoulement, mesuré par le RGDS, avec la température. Deux essais ont été effectués pour chaque température (37, 55, 65, 72) (**Figure IV.10**) en utilisant le même échantillon. Les barres correspondent aux deux mesures. Les points représentent les moyennes.

La précision sur la température est de ± 1 °C.

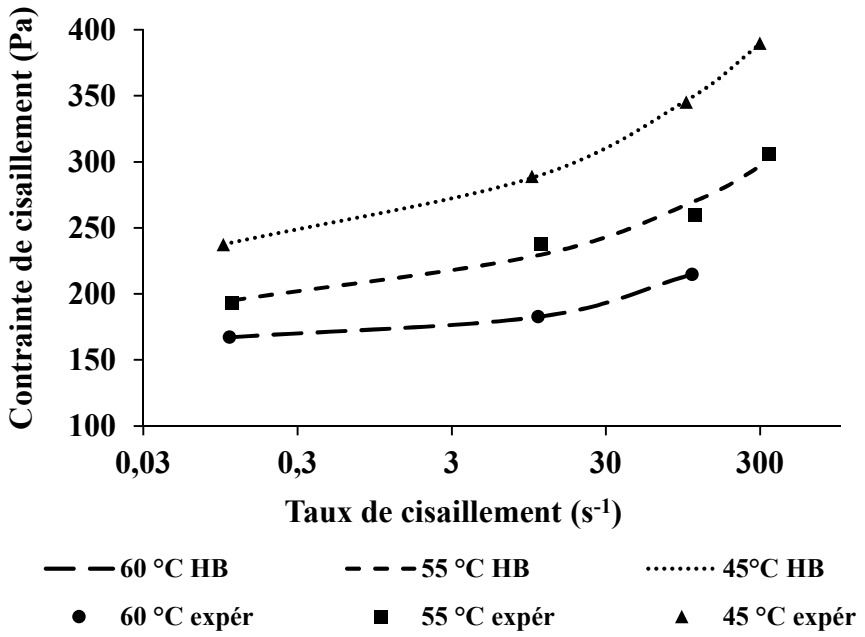


Figure IV.9 : *Courbes d'écoulement de la matière 1 pour des températures diverses*

Les valeurs des paramètres τ_0, k et n trouvés suite à la modélisation de ces résultats expérimentaux en utilisant le modèle d'HB sont présentées dans le **tableau IV.8.**

Tableau IV.8 : *seuil, k et n en fonction de la température pour la matière 1.*

Température (°C)	Seuil (Pa)	k (Pa.s^n)	n(-)
45	215	40	0,26
55	180	26	0,26
60	165	6	0,45

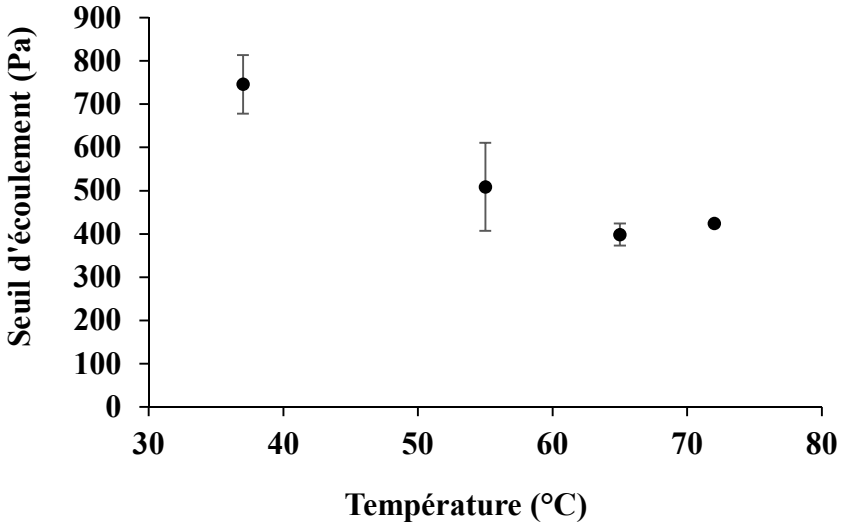


Figure IV.10 : *Seuil d'écoulement de la matière 3 à diverses températures.*

La diminution de la contrainte de cisaillement et du seuil d'écoulement en fonction de la température, observée en **figure IV.9** et **IV.10** respectivement peut être justifiée par le fait que les forces de cohésion entre les molécules peuvent être réduites en raison du mouvement thermique lorsque les matières ont été chauffées. Le mouvement thermique donc diminue, potentiellement et partiellement, la viscosité de la matrice liquide composée des particules organiques non fibreuses et de l'eau. Nous détaillerons ultérieurement la différence entre le seuil d'écoulement et la viscosité en termes de réponse au changement de la température.

Les résultats présentés dans les **figures IV.9** et **IV.10** et le **tableau IV.8** montrent que le seuil d'écoulement (τ_0) et la consistance du fluide (k) diminuent en augmentant la température. Ces résultats sont compatibles avec les revues bibliographiques détaillées dans le **tableau IV.7**.

Le modèle d'Arrhenius a été utilisé également pour ajuster le seuil d'écoulement des matières 1 et 3 en fonction de la température comme indiqué dans l'équation suivante :

$$\tau_0 = \tau_{0\,réf}\, e^{\left(\frac{E_a}{R\,T_{abs}}\right)} \qquad \textit{Eq 10}$$

La **figure IV.11** montre l'évolution du ln (τ_0) en fonction de ln (1/T) pour les matières 1 et 3 afin de trouver l'énergie d'activation de ces deux matières.

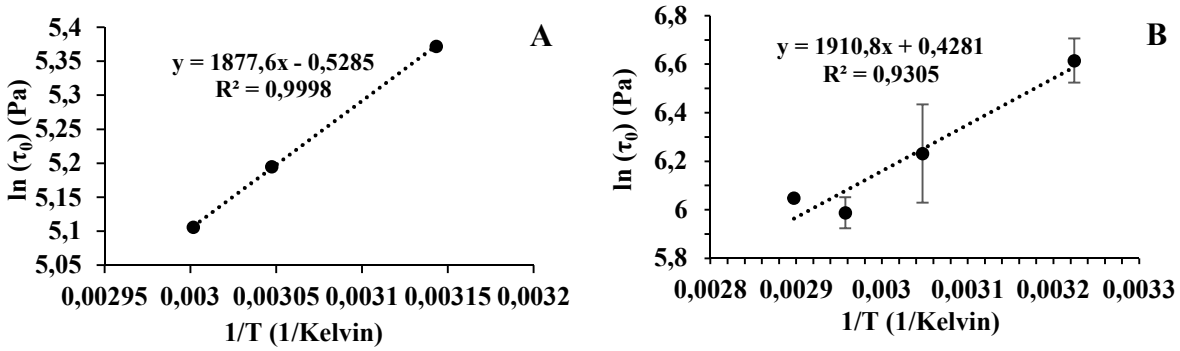


Figure IV.11 *: Ajustement de l'évolution du seuil de la matière 1 (A) et 3 (B) en fonction de la température en utilisant la loi d'Arrhenius*

La **figure IV.11** montre également les équations des courbes de tendances qui passent par les points expérimentaux. Les énergies d'activation obtenues à partir de ces équations sont de 15,5 kJ.mol^{-1} et 15,9 kJ.mol^{-1} pour les matières 1 et 3 respectivement. Ces résultats sont nouveaux. La revue bibliographique ne donne pas de mesure de l'énergie d'activation pour l'évolution du seuil d'écoulement pour ce type des matériaux.

La viscosité apparente a été calculée pour la matière 1 à plusieurs taux de cisaillement et à diverses températures (**Tableau IV.9**).

Tableau IV.9 : *μ_{app} de la matière 1 à température et taux de cisaillement divers*

T (°C)	$\dot{\gamma}$ (s^{-1})	μ_{app} (Pa.s)
60	0,1	1604
	10	19,7
	100	2,19
	300	0,77
55	0,1	1894
	10	24,1
	100	2,71
	300	0,96
45	0,1	2315
	10	30,5
	100	3,51
	300	1,25

Ces résultats montrent que μ_{app} de ces matériaux décroit en augmentant $\dot{\gamma}$ et en augmentant T.

Les résultats expérimentaux de la viscosité apparente à T diverses et à plusieurs $\dot{\gamma}$ ont été ajustés en utilisant la loi d'Arrhenius exprimée en équation **Eq 9**. Afin de trouver l'énergie d'activation de la matière 1 à plusieurs $\dot{\gamma}$, ln (μ_{app}) a été tracé en fonction de (1/T) (**Figure IV.12**).

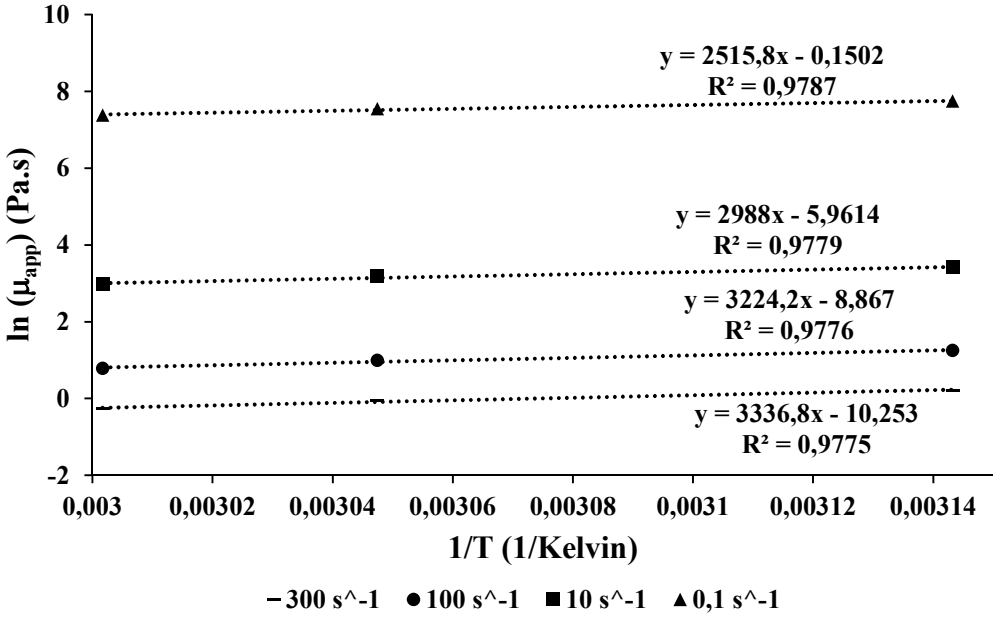


***Figure IV.12** : Ajustement de l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la température pour la matière 1 en utilisant la loi d'Arrhenius et pour plusieurs taux de cisaillement. Les points représentent les résultats expérimentaux et les lignes représentent les ajustement mathématiques.*

La **figure IV.12** montre également les équations des courbes de tendances qui passent par les points expérimentaux. Les énergies d'activations et $\mu_{réf}$ correspondants à ces équations sont représentés en **tableau IV.10**.

***Tableau IV.10 :** Energie d'activation pour la matière 1*

°γ (s^{-1})	$\mu_{réf}$ (Pa.s)	E_a ($kJ.mol^{-1}$)	R^2
0,1	0,86	20,9	0,98
1	2,5 10^{-3}	24,8	0,98
10	14 10^{-5}	26,8	0,98
300	3,5 10^{-5}	27,7	0,98

Le **tableau IV.10** montre que l'énergie d'activation croît en augmentant $\dot{\gamma}$ où $E_a \approx 21$ $kJ.mol^{-1}$ pour $\dot{\gamma}$ = 0.1 s^{-1} et augmente jusqu'à environ 28 $kJ.mol^{-1}$ pour $\dot{\gamma}$ = 300 s^{-1}. Ces valeurs sont relativement plus élevées que celles trouvées par (Chen, 1986) qui a trouvé E_a =

18,1 ± 5,4 kJ.mol^{-1}, (El-Mashad et al., 2005) E_a = 17 ± 0,3 kJ.mol^{-1} et (Minaei et al,. 2015) E_a = 8,9 ± 4,42 kJ.mol^{-1}.

La diminution de E_a en décroissant $\dot{\gamma}$ jusqu'à arriver au seuil d'écoulement où E_a est minimale provient du fait que les mesures du seuil et de la viscosité ne reposent pas sur les mêmes mécanismes. Nous proposons les raisons ci-dessous pour justifier nos résultats :

- Le seuil d'écoulement de ce milieu est attribué aux forces de points de contact entre les fibres enchevêtrées. Le seuil d'écoulement est une grandeur rhéologique statique. Lors de la mesure du seuil d'écoulement, il n'y a pas, localement dans le produit, de vitesse entre les fibres et la matrice liquide et entre les fibres elles-mêmes. Les forces hydrodynamiques de la matrice liquide sur les fibres sont donc négligeables. Mais également les forces hydrodynamiques dans les points de contact des fibres sont négligeables aussi. Le frottement est alors plutôt un frottement limite tendant vers un frottement sec relativement indépendant de la viscosité de la phase liquide.
- Par contre, les mesures de la viscosité apparente s'effectuent en mettant la matière en mouvement suite aux taux de cisaillements appliqués. Localement dans la matière, il y a une vitesse de déplacement entre les fibres et la phase liquide et des déplacements des fibres entre elles aux niveaux des points de contact. Ces déplacements engendrant des forces hydrodynamiques. Ces forces sont directement reliées à la vitesse mais aussi à la viscosité de la matrice liquide qui est une grandeur sensible à la température. La viscosité du matériau est donc une grandeur plus sensible à température que le seuil d'écoulement. Pour cela l'E_a de la μ_{app} est plus élevée que celle de seuil d'écoulement. Pour la même raison l'énergie d'activation de la viscosité apparente augmente en augmentant le taux de cisaillement car la participation de la phase liquide, sensible à la température, augmente de plus en plus avec le taux de cisaillement affectant les forces hydrodynamiques appliquées aux fibres.

En conclusion de ce chapitre sur l'effet de la température, il apparaît que la sensibilité du seuil d'écoulement et de la viscosité apparente à la température peuvent être présentées en utilisant le modèle d'Arrhenius représenté en équations **Eq 9 et 10** avec des énergies d'activation d'environ 15 kJ.mol^{-1} et de 21 à 28 kJ.mol^{-1} pour le seuil d'écoulement et la viscosité apparente respectivement. Ces valeurs sont utiles pour les calculs thermiques de l'installation.

IV.7. Effet de la MS et/ou la fraction volumique des fibres

Dans ce chapitre, au-delà de l'étude du seuil d'écoulement étudié dans le chapitre III, nous avons également étudié l'évolution du comportement visqueux de ces matériaux, représenté par la viscosité apparente ou par les paramètres k et n du modèle d'Herschel-Bulkley, en fonction de la MS et de la fraction volumique des fibres humides.

IV.7.1. Revue bibliographique

L'évolution du seuil de contrainte en fonction de la MS a été étudiée en détail dans le chapitre III. La loi la plus utilisée dans la littérature pour lier le seuil d'écoulement à la matière sèche est $\tau_0 = a\ MS^b$ avec b variant entre 2 et 7 selon les matériaux étudiés. Nous avons montré que cette loi d'une part n'est pas la meilleure pour représenter le seuil d'écoulement et d'autre part, elle ne donne pas un sens physique des résultats obtenus contrairement au modèle de percolation présenté dans l'équation ci-dessous :

$$\tau_0 = p\ (MS - MS_c)^q \qquad \textit{Eq 11}$$

Ce modèle distingue le régime concentré qui commence à $MS = MS_c$, du régime dilué où $MS < MS_c$ et où le seuil ne suit plus le modèle de percolation. Ce modèle a été utilisé pour représenter les résultats expérimentaux de ce travail.

Comme il est montré en plusieurs endroits dans ce chapitre, le comportement rhéologique de ces matériaux peut être présenté par le modèle d'HB (**Eq 6**) présenté par un seuil d'écoulement et une contribution visqueuse. Le modèle de percolation, utilisé pour représenter l'évolution du seuil d'écoulement en fonction de la MS, a également été utilisé dans ce travail pour représenter les résultats expérimentaux des contraintes liées à la partie visqueuse en utilisant l'équation ci-dessous :

$$\tau_{visq} = v\ (MS - MS_c)^w \qquad \textit{Eq 12}$$

Où $\tau_{visq} = \tau_{\dot{\gamma}} - \tau_0$ *Eq 13*

$\tau_{\dot{\gamma}}$ représente la contrainte à taux de cisaillement donné (Pa).

Le **tableau IV.11** résume les résultats de la recherche bibliographique concernant l'évolution des propriétés d'écoulement en fonction de la MS pour des produits de type fumier ou lisier.

Tableau IV.11 : *Revues de la littérature pour l'effet de la MS sur les propriétés rhéologiques des biomasses*

Auteur	Matière	MS (%)	Taille	Température (°C)	Géométrie	°γ (s^{-1})	Modèle rhéologique et résultats
(Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992)	fumiers des bovins laitiers marocains	2,5 - 12	----	20 - 60	Couette d'entrefer de 0,6 mm sans contrôler le glissement	1 – 800 selon la MS	(LP) MS↗ : μ_{app} ↗, k ↗ et n ↘ À 20 °C : à MS = 12,1% : k = 10, n = 0,32 à MS = 9,1% : k = 2, n = 0,42
(Landry et al., 2004)	lisier de mouton, volaille, porc et vache	10 - 25	----	17 - 24	Couette de laboratoire (Lab) (à 0,07 – 38,75 s^{-1}) et de RGD (Large) sans contrôler le glissement (0,61 – 24,37 s^{-1})		(LP) MS↗ : μ_{app} ↗, k ↗ et n → À MS = 15 % : (Lab) k = 22,9, n = 0,41 et (Large) k = 31,3, n = 0,3 À MS = 10 % : (Lab) k = 2,6, n = 0,42 et (Large) k = 5,3, n = 0,11
(Pimenova & Hanley, 2004) et (Pimenova & Hanley, 2003)	Suspensions des cannes de maïs	5 - 30	120 µm	14 - 64	Lame hélicoïdale	500 - 2700	Loi de puissance, HB, Casson et Bingham : MS↗ : μ_{app} ↗, k ↗ et n ↘ MS | τ_0 (Pa) | k ($Pa.s^n$) | n (-) 10 | 2,57 | $2,5 * 10^{-8}$ | 0,991 15 | 12,7 | 0,09 | 0,982 17 | 22,9 | 1,57 | 0,917 $\tau_0 = 8,1 . 10^4 MS^{4,6}$
(Stickel et al., 2009)	pâtes de tiges de maïs traitées mécaniquement et chimiquement (hydrolysées)	15 - 30	1 – 2000 µm		Scissomètre avec petite entrefer (PE = 1 mm) et grande entrefer (GE = 7 mm), plan-plan (avec collier et surface rugueuse) et torque rhéomètre	Selon l'appareil : De 100 à 260	MS ↗ : τ ↗ Plan-Plan : Modèle d'HB à 1 s^{-1} : τ = 200 et 970 Pa pour MS = 15 et 20% respectivement Scissomètre à PE : τ_0 = 900 Pa à MS = 17% Scissomètre à GE : τ_0 = 260 Pa à MS = 15,4% Torque rhéomètre : Bingham : μ_{app} à 100 s^{-1} = 410, 140 et 45 à 30, 25 et 20% de MS (Chute de 67, 67 et 80 % respectivement) $\tau_0 = a\ MS^{5,7 \pm 0,5}$
(Viamajala et al., 2009)	Suspensions des cannes de maïs	10 - 40	0,177-0,841 mm	20	Géométrie plan-plan avec un entrefer de 1,5 mm	0,15 - 9	Casson et Bingham MS ↗ : τ_0 ↗ et μ_{app} ↗ $\tau_0 = 0,5 . 10^6 MS^{3,57}$

Auteur	Matière	MS (%)	Taille	Température (°C)	Géométrie	°γ (s^{-1})	Modèle rhéologique et résultats
(Ehrhardt et al., 2010)	suspensions des cannes de maïs hydrolysé	20 - 25	300 µm		Rhéomètre de couple (torque rheometer)		$\tau_0 = a\ MS^{4,6}$
(Samaniuk et al., 2011)	biomasses lignocellulosiques très concentré en tiges des maïs haché	5 - 35	de micromètre aux centimètres	55	Rhéomètre torque et un scissomètre		expérimentalement : MS ↗ seuil ↗ MS = 20, 25 et 30 % : τ_0 = 31, 40 et 80 kPa $\tau_0 = 2,1 \cdot 10^6\ MS^{2,77}$ Simulation : $10^{11}\ F_v^{5,2}$, $10^8\ F_v^{4,5}$ et $10^5\ F_v^{3,6}$ pour r_p = 75, 40 et 20 respectivement
(Wiman et al., 2011)	Boues prétraité prétraités chimiquement et thermiquement	4 – 12	2 – 10 mm		Scissomètre		MS ↗ seuil et viscosité ↗ Brut : $\tau_0 = 9,1 \cdot 10^{-5}\ MS^5$ Haché : $\tau_0 = 1,9 \cdot 10^{-6}\ MS^{7,1\pm0,3}$
(Tian et al., 2014)	lisier avec de canne de maïs haché et prétraiter chimiquement	4,23 – 7,32	0,177 – 0,841 mm	25, 35 et 55	Couette d'entrefer de 3 mm sans contrôler le glissement	0-70	Modèle de puissance, HB, Bingham et Casson MS↗ : τ_0 ↗, k ↗ et n → MS | τ_0 (Pa) | k ($Pa.s^n$) | n (-) 4,23 | 0,21 | 1,34 | 0,44 5,75 | 3,46 | 1,49 | 0,5 7,32 | 7,08 | 2,6 | 0,46
(Minaei et al,. 2015)	Fumier laitier chargé de sable (36%)	7 - 13	----	10 - 50	Couette d'entrefer de 2,9 mm sans contrôler le glissement	1,76 – 225,28	(LP) MS↗ : μ_{app} ↗, n → et k ↗ À : 20 °C et pour 7, 10 et 13% de MS, k = 0,094, 1,118 et 3,257 et n = 0,776, 0,5476 et 0,504 respectivement.
(Zafari & Kianmehr, 2012)	fumier de vache composté	30 - 60	0,3 – 2 mm	----	un scissomètre pour le seuil d'écoulement	----	MS ↗ : τ_0 ↗

La revue bibliographique présentée dans le **tableau IV.11** nous permet d'indiquer que :

- (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992), (Landry et al., 2004), (Tian et al., 2014) et (Minaei et al,. 2015) utilisent une géométrie Couette pour mesurer les propriétés rhéologiques de leurs matériaux. Ces auteurs ne donnent aucune information sur le contrôle du glissement sur les parois qui est un phénomène courant pour ces matériaux à seuil d'écoulement. Cela soulève une question sur la validité des mesures.
- L'utilisation de la loi de puissance pour représenter les propriétés d'écoulement de ces matériaux, qui possèdent un seuil d'écoulement, est un choix questionnable, notamment aux faibles gradients de cisaillement.
- Pour l'ensemble des auteurs, l'augmentation de la MS accroît la contrainte de cisaillement, le seuil d'écoulement, la consistance du fluide et la viscosité apparente.
- (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992), (Pimenova & Hanley, 2004) et (Pimenova & Hanley, 2003) ont trouvé que l'indice de rhéofluidification est décroît avec l'augmentation de la MS. Par contre (Landry et al., 2004), (Tian et al., 2014) et (Minaei et al., 2015) ont trouvé qu'il est indépendant de MS.
- La faible description des matériaux utilisés par ces auteurs rend la comparaison entre eux et avec nos matériaux difficile. Il nous apparait que les matériaux les plus proches des nôtres sont ceux utilisés par (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992) ; (Minaei et al., 2015) et probablement (Samaniuk et al., 2011) et (Tian et al., 2014).
- Aucun auteur n'a mesuré la fraction volumique des fibres dans ses matériaux. Nous ne pouvons donc pas comparer les résultats de ces auteurs avec nos résultats.

Nous avons montré précédemment qu'il y a des chercheurs, comme (Bennington et al. 1990), qui ont exprimé l'évolution du seuil d'écoulement en fonction de la fraction volumique des fibres au lieu de la MS.

Nous avons montré que ces représentations, en fonction de la MS ou de la fraction volumique des fibres, sont pratiquement identiques car il y a un facteur donné entre la MS et la fraction volumique des fibres. En effet, la méthode utilisée pour faire baisser la MS par l'ajout de l'eau conduit à stabiliser le rapport $F_{v\ \text{fibre humide}}$ / MS. Pour cela, la présentation de l'évolution des résultats rhéologiques en fonction de la MS ou la $F_{v\ \text{fibre humide}}$ est pratiquement identique. Nous avons donc choisi de présenter l'évolution des propriétés rhéologiques en

fonction de MS dans ce travail car ce dernier est un paramètre connu, facile à mesurer et très utilisé dans le domaine de la méthanisation.

La différence entre la MS et la fraction volumique des fibres vient de la définition de chacun de ces paramètres :

- La MS est le rapport de la masse des solides sur la masse totale de l'échantillon. Les solides dans la matière viennent de deux sources : des solides fibreux (pailles, fibres, ensilage, etc.) qui sont caractérisés par un volume important par rapport aux matières organiques non fibreuses et les sables qui possèdent un volume pratiquement négligeable par rapport aux particules fibreuses.
- La fraction volumique des fibres humides est le volume des fibres / le volume total de l'échantillon. Le volume des sables et des particules organiques non fibreuses, qui sont pratiquement négligeables, ne sont pas pris en compte dans ce calcul de la fraction volumique.

IV.7.2. Résultats et discussions

La matière 4 a été utilisée pour montrer l'effet de l'évolution de MS et/ou la fraction des fibres sur les propriétés d'écoulement de ces matériaux. La MS initiale choisie (15,4 %) représente la limite, estimée visuellement, entre le régime biphasique totalement saturé (liquide et solide) et le régime triphasique (liquide, solide et air). Ces deux régimes sont déjà décrits dans le chapitre III. La dilution par de l'eau a été ensuite appliquée sur quatre prélèvements effectués sur la matière initiale pour abaisser la MS. Les MS correspondantes ont été mesurées (15,4, 12,6, 9,7 et 8,3 %). La fraction volumique des fibres humides ($F_{v\ fibre\ humide}$) a été mesurée à une MS donnée puis a été calculée, en utilisant la loi classique de dilution de suspension, représentée dans l'équation ci-dessous, pour les autres MS.

$$F_{v2} = F_{v1} * \frac{MS_2}{MS_1} \qquad \textit{Eq 14}$$

Les résultats sont présentés dans le **tableau IV.12**.

Tableau IV.12 : *La $F_{v\ fibres\ humides}$ (en %) en fonction de la MS pour la matière 4*

MS (%)	$F_{v\ fibre\ humide}$ (%)
8	33,4
9	
10	41,8
11	
12	50,1
13	
14	58,5
15	
16	66,8

Les MS utilisées dans cette étude, variant entre 8,3 et 15,4, correspondent toujours au régime biphasique (fibre et liquide). A partir des calculs de la $F_{v\ fibre\ humide}$ de la matière 4 à MS diverses représentés dans le **tableau IV.12**, la $F_{v\ fibre\ humide}$ maximale correspondante à la MS maximale choisi (15,4 %) est estimée à 65 %.

Le rapport $F_{v\ fibre\ humide}$ / MS, déterminé par la mesure de la $F_{v\ fibre\ humide}$ à MS donnée est de 4,18 (-).

Les propriétés d'écoulement ont été mesurées avec le CLEAG. Un hachage à 5 mm a été appliqué avant de faire les mesures :

Les mesures ont été effectuées selon le protocole détaillé en paragraphe **IV.3.1.2.2**. Pour estimer la reproductibilité des mesures, nous avons adopté la stratégie suivante :

Pour deux échantillons prélevés du même contenant, les couples ont été mesurés en faisant une série complète de mesures pour chaque échantillon (mesure du couple des faibles taux de cisaillement aux taux de cisaillement élevés en utilisant le même échantillon). Les moyennes sont représentées dans la **(Figure IV.13)**. Les barres représentent les deux valeurs mesurées pour chaque taux de cisaillement. Ces barres représentent dans ce cas l'incertitude liée à l'hétérogénéité de l'échantillon.

Cette figure indique également les courbes d'ajustement des résultats expérimentaux par le modèle d'HB. La méthode des moindres carrés a été utilisée pour réaliser cet ajustement. La **figure IV.13** montre ainsi la nature rhéofluidifiante de ces matériaux et la présence d'un seuil d'écoulement, qui font de la loi d'HB un bon modèle pour représenter le comportement de ces matériaux (Tian et al., 2014) ; (Stickel et al., 2009) ; (Pimenova & Hanley, 2004) et (Pimenova & Hanley, 2003).

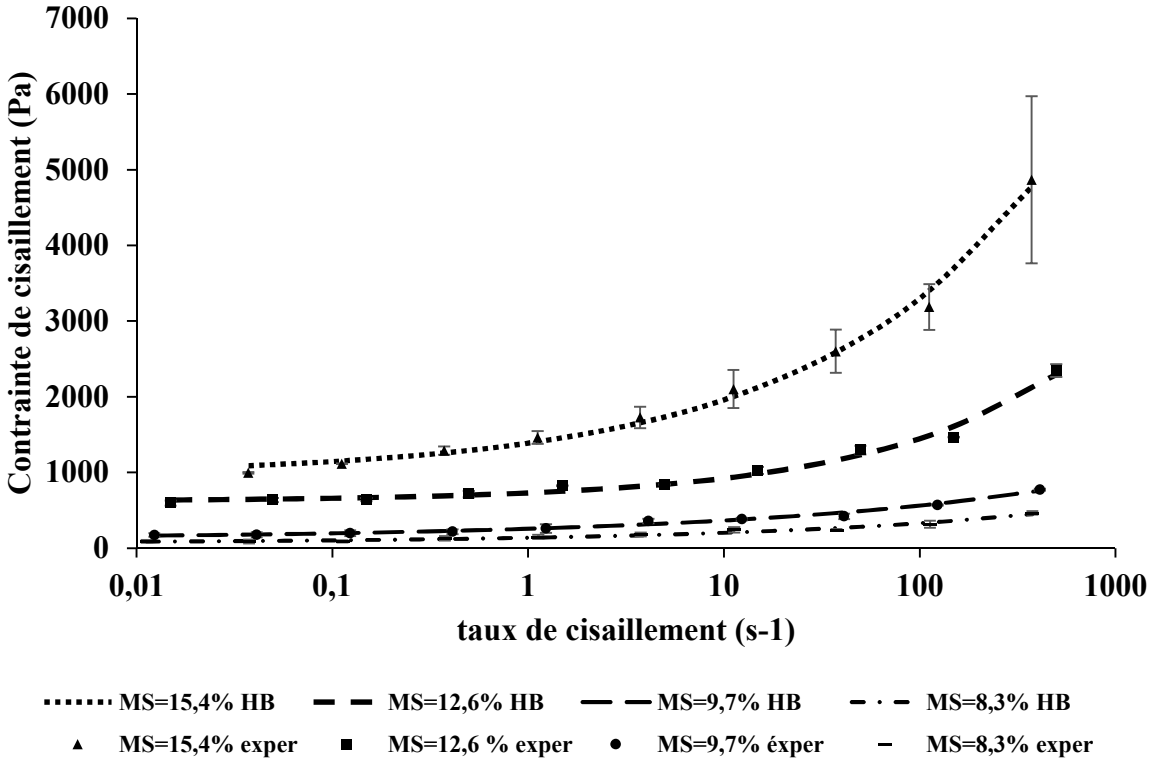


Figure IV.13 : *Courbes d'écoulement de la matière 4 à MS divers. Les points representent les mesures expérimentales et les courbes representent l'ajustement par le modèle d'HB.*

La **figure IV.13** montre que les deux mesures des contraintes de cisaillement pour chaque taux de cisaillement sont relativement proches avec des écarts le plus souvent inférieurs de 10% sauf pour le dernier point dans la courbe d'écoulement à MS=15,4% qui est assez attendu pour un taux de cisaillement élevé et MS élevée où la matière est très concentrée en fibre et le régime est proche de la limite entre les régimes biphasique et triphasique représentés précédemment. Dans ces conditions la mise en place de l'échantillon peut introduire un effet plus remarquable, par rapport aux MS inférieures, sur les mesures.

Les grandeurs rhéologiques de la loi d'HB résultant de l'ajustement des points expérimentaux illustrés dans la **figure IV.13** sont représentées dans le **tableau IV.13** et la **figure IV.14** qui montrent les évolutions de ces grandeurs en fonction de la $F_{v\ fibre\ humide}$ et la MS.

Tableau IV.13 *: Seuil, k et n en fonction de la MS ou la* $F_{V\ fibres\ humides}$ *pour les matières 4*

MS (%)	$F_{V\ paille\ humide}$ (%)	τ_0 (Pa)	k (Pa.s^n)	n (-)
15,4±0,3	64,1	964±106	426±40	0,37±0,06
12,6±0,3	52,6	620±8	112±21	0,44±0,04
9,7±0,4	40,3	124±44	135±19	0,26±0,01
8,3±0,3	34,7	68±14	72±11	0,28±0,03

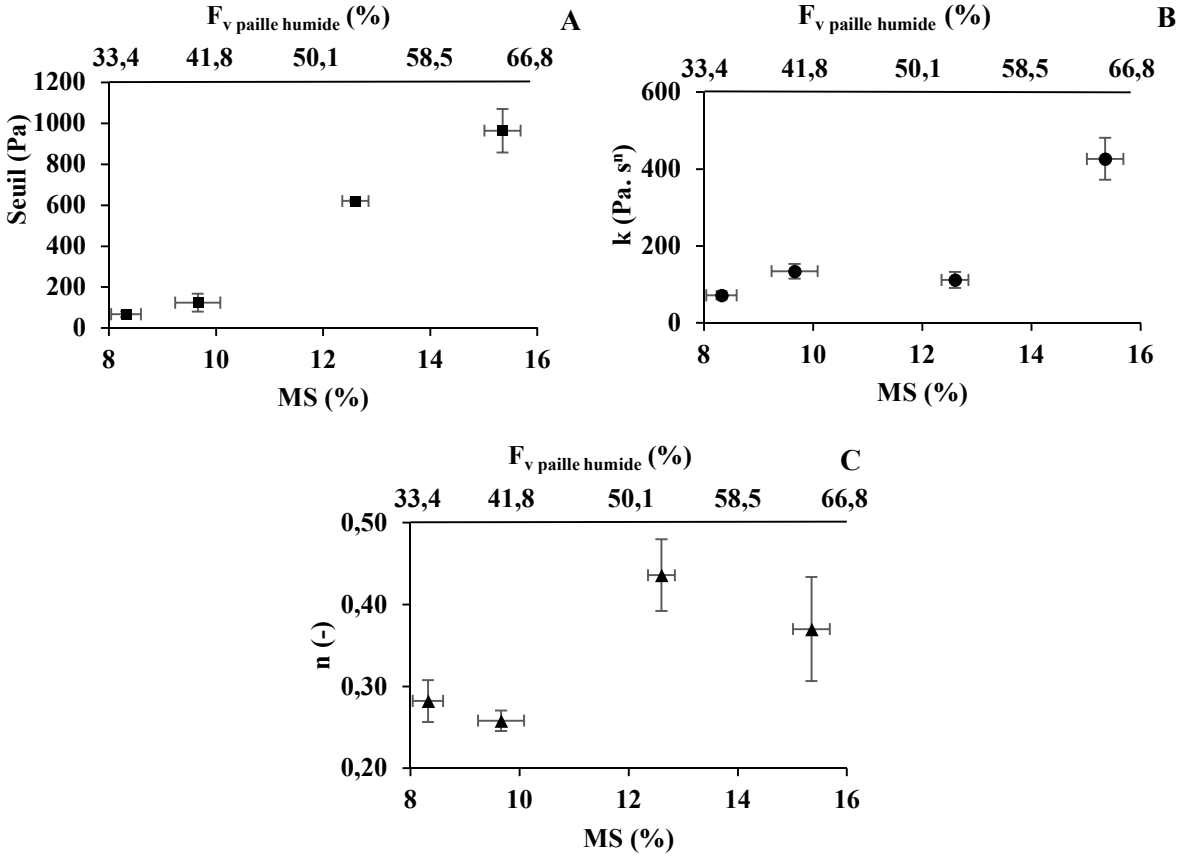


Figure IV.14 : *Evolution du Seuil (A), k (B) et n (C) en fonction de la MS et la* $F_{v\ fibre\ humide}$ *pour la matière 4*

Le **tableau IV.13** et la **figure IV.14** mettent en évidence que l'augmentation de la MS ou de la $F_{v\ fibre\ humide}$ augmente le seuil d'écoulement et le coefficient de consistance du fluide (k). Cette observation est compatible avec les observations de tous les auteurs qui ont intégré le seuil d'écoulement et la consistance du fluide dans l'ajustement de leurs résultats expérimentaux (**Tableau IV.11**). Par contre l'évolution de la MS impacte peu l'indice de rhéofluidification (n). La plupart des chercheurs cités dans le **tableau IV.11** ont trouvé que n est indépendant de l'évolution de MS sauf (Achkari-Begdouri & Goodrich, 1992) qui ont travaillé sur des fumiers des bovins laitiers et ont trouvé que n décroît avec l'augmentation de la MS.

Le **tableau IV.13** montre également que les incertitudes de grandeurs rhéologiques obtenues suite à l'ajustement des mesures expérimentales, de deux échantillons ayant la même MS, avec le modèle d'HB sont relativement faibles ce qui est attendu suite aux incertitudes faibles (10%) de ces mesures.

La croissance du seuil d'écoulement ou de la contrainte d'écoulement en augmentant la MS est due à la diminution de l'eau libre dans le milieu. Cette diminution augmente la fraction massique et volumique des particules solides dans l'unité de volume de la matière. Ceci à son tour conduit à augmenter le nombre de points de contacts, le frottement et l'enchevêtrement entre les fibres et par conséquent plus de contraintes de cisaillement doivent être appliquées pour mettre la matière en mouvement.

Les résultats moyens de seuil d'écoulement (τ_0) de ces deux matières ont été ajustés en fonction de la MS en utilisant le modèle de percolation (**Eq 11**). Les résultats sont représentés dans la **figure IV.15** sachant que les mesures pour MS = 8,32 % n'ont pas été prises en compte car le milieu à cette MS n'était pas a priori dans le régime concentré.

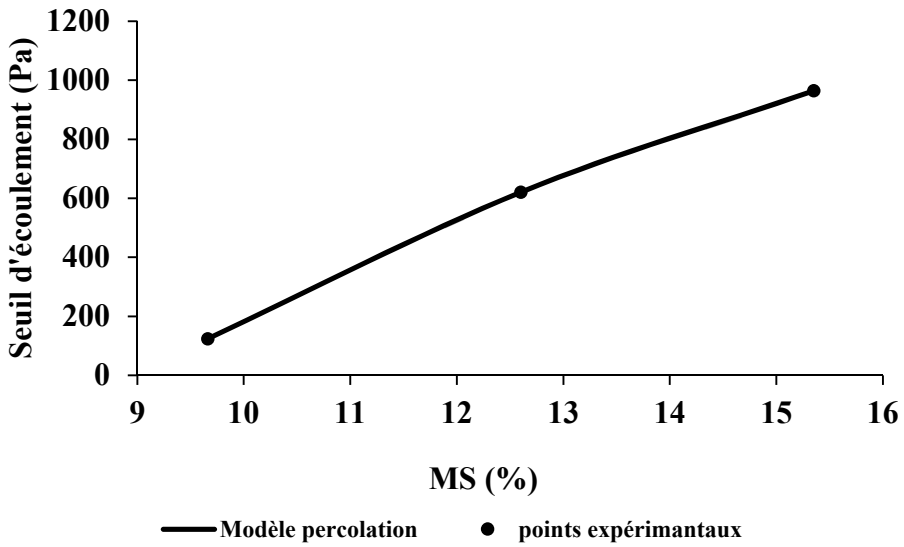


Figure IV.15 : *Ajustement du seuil d'écoulement en utilisant le modèle de percolation Eq 11*

L'équation trouvée suite à l'ajustement dans la **figure IV.15** est la suivante :

$\tau_0 = 7410\ (MS\text{-}0{,}093)^{0{,}72}$; $R^2 = 1$

Cette équation est comparable avec les résultats trouvés dans le chapitre III où l'exposant est d'environ 0,65.

Les résultats expérimentaux des contraintes liées à la partie visqueuse (τ_{visq}) ont été également ajustés en utilisant le modèle de percolation (**Eq 12**). Le préfacteur (v) et l'exposant (w) calculés sont représentés dans le **tableau IV.14** pour plusieurs taux de cisaillement sachant que ces résultats montrent une absence de MS_c (Valeur = 0).

Tableau IV.14 *: les paramètres v et w du modèle de percolation de la partie visqueuse (Eq 12) pour la matière 4 à divers taux de cisaillement*

taux de cisaillement (s^{-1})	v (Pa.s)	w (-)
3	2,9 10^6	4,5
10	4,9 10^6	4,6
30	7,3 10^6	4,5
100	10 10^6	4,5
300	13,5 10^6	4,4

Le **tableau IV.14** montre que le préfacteur (v) augmente avec le taux de cisaillement et que l'exposant (w) est pratiquement indépendant du taux de cisaillement. Ces résultats sont nouveaux. Les revues bibliographiques représentées dans le **tableau IV.11** montrent que personne n'a ajusté les contraintes liées à la partie visqueuse en utilisant ce modèle.

En conclusion de cette partie, sur l'effet de la MS et la fraction volumique des fibres, il apparaît que la MS et la fraction volumique des fibres sont directement liées aux propriétés rhéologiques des matériaux étudiés. Des lois ont été proposées pour exprimer les évolutions de ces propriétés en fonction de la MS. Ces lois peuvent être utilisées pour les estimations énergétiques des installations industrielles en cas d'évolution de la MS.

IV.8. Conclusions et perspectives

La mise en œuvre d'une méthodologie adaptée (CLEAG) lors de la caractérisation rhéologique pour les biomasses lignocellulosiques étudiées ici a permis de contrôler les phénomènes perturbateurs comme la séparation des phases, lors des mesures, dans ces suspensions concentrées fibreuses. Elle a permis de mettre en évidence que ces matériaux sont des fluides rhéofluidifiants avec un seuil d'écoulement. Leurs courbes d'écoulement ont été représentées par le modèle d'Herschel–Bulkley.

L'influence de trois paramètres opératoires sur les propriétés rhéologiques a été étudiée. Les principales conclusions sont les suivantes :

1. La réduction de la longueur des fibres dans les matériaux de l'étude a diminué significativement les seuils d'écoulement. Le hachage effectué a impacté le rapport d'aspect moyen r_p conduisant à une diminution du seuil d'écoulement et aussi de la viscosité. Nous supposons que l'effet de hachage sera encore plus important dans le cas des matériaux à l'échelle industrielle qui possèdent normalement des fibres plus longues. La réduction de la longueur dans ce cas aura un effet bénéfique sur l'énergie nécessaire pour le mélange de ces matériaux.
2. L'augmentation de la température des biomasses lignocellulosiques étudiées diminue le seuil d'écoulement et la viscosité apparente. La sensibilité à la température peut être représentée avec le modèle d'Arrhenius avec des énergies d'activation autour de 15 $kJ.mol^{-1}$ pour le seuil d'écoulement et entre 20 et 28 $kJ.mol^{-1}$ pour la viscosité apparente. Ces valeurs peuvent être utilisées pour estimer les grandeurs rhéologiques en cas de changement de température lors du procédé industriel.
3. Le seuil d'écoulement et la viscosité apparente augmentent lorsque la matière sèche et/ou la fraction volumique des fibres humides augmentent.
4. Des lois d'évolutions du seuil d'écoulement et de la viscosité en fonction des trois paramètres opératoires ont été proposées afin d'estimer ces grandeurs rhéologiques en cas de changement des paramètres opératoires.
5. Dans le futur, il nous apparait utile de multiplier les essais pour améliorer la précision des valeurs des coefficients de ces lois. L'évaluation de l'influence de l'hétérogénéité des produits et à la mise en place de ces suspensions concentrées en fibre anisotropes est également à approfondir.

IV.9. Références bibliographiques

Achkari-Begdouri, A., & Goodrich, P. R. (1992). Rheological properties of Moroccan dairy cattle manure. *Bioresource technology*, *40*(2), 149–156.

Ackerson, B. J., & Clark, N. A. (1981). Shear-induced melting. *Physical Review Letters*, *46*(2), 123.

Bennington, C. P. J., Kerekes, R. J., & Grace, J. R. (1990). The yield stress of fibre suspensions. *The Canadian journal of chemical engineering*, *68*(5), 748–757.

Chen, Y. R. (1986). Rheological properties of sieved beef-cattle manure slurry: Rheological model and effects of temperature and solids concentration. *Agricultural wastes*, *15*(1), 17–33.

Dooms, M (2017). *Etude des compartiments d'hydrolyse et de méthanogenèse d'un procédé de méthanisation en voie épaisse multiétapes phasé en température : le procédé Arkométha ®*, Thèse de doctorat, INSA de Lyon.

Ehrhardt, M. R., Monz, T. O., Root, T. W., Connelly, R. K., Scott, C. T., & Klingenberg, D. J. (2010). Rheology of dilute acid hydrolyzed corn stover at high solids concentration. *Applied biochemistry and biotechnology*, *160*(4), 1102–1115.

El-Mashad, H. M., Van Loon, W. K., Zeeman, G., & Bot, G. P. (2005). Rheological properties of dairy cattle manure. *Bioresource technology*, *96*(5), 531–535.

Fall, A. (2008). *Rhéophysique des fluides complexes: écoulement et blocage de suspensions*. Université Paris-Diderot-Paris VII.

Kumar, M., Bartlett, H. D., & Mohsenin, N. N. (1972). Flow properties of animal waste slurries. *Transactions of the ASAE*, *15*(4), 718–0722.

Landry, H., Laguë, C., & Roberge, M. (2004). Physical and rheological properties of manure products. *Applied Engineering in Agriculture*, *20*(3), 277.

Liu, G.-J., Liu, Y., Wang, Z.-Y., Lei, Y.-H., Chen, Z.-A., & Deng, L.-W. (2015). The effects of temperature, organic matter and time-dependency on rheological properties of dry anaerobic digested swine manure. *Waste Management*, *38*, 449–454.

Macosko, C. W. (1994). *Rheology: Principles, Measurements, and Applications*. New York: Wiley-Blackwell.

Mayr, S. G. (2006). Activation energy of shear transformation zones: a key for understanding rheology of glasses and liquids. *Physical review letters*, *97*(19), 195501.

Minaei, S., Razavi, S. J., & others. (2015). Rheological properties of sand-laden dairy manure: modeling by concentration and temperature. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *17*(1).

Pimenova, N. V., & Hanley, T. R. (2003). Measurement of rheological properties of corn stover suspensions. In *Biotechnology for Fuels and Chemicals* (p. 383–392). Springer.

Pimenova, N. V., & Hanley, T. R. (2004). Effect of corn stover concentration on rheological characteristics. In *Proceedings of the Twenty-Fifth Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals Held May 4–7, 2003, in Breckenridge, CO* (p. 347–360). Springer.

Samaniuk, J. R., Wang, J., Root, T. W., Scott, C. T., & Klingenberg, D. J. (2011). Rheology of concentrated biomass. *Korea-Australia Rheology Journal*, *23*(4), 237–245.

Sato, T. (1995). Rheology of suspensions. *JCT, Journal of coatings technology*, *67*(847), 69–79.

Shetler, E. L., & Chen, Y.-R. (1983). Temperature effect on rheological properties of cattle manure slurry. *Journal of testing and evaluation*, *11*(6), 360–364.

Stickel, J. J., Knutsen, J. S., Liberatore, M. W., Luu, W., Bousfield, D. W., Klingenberg, D. J., Monz, T. O. (2009). Rheology measurements of a biomass slurry: an inter-laboratory study. *Rheologica Acta*, *48*(9), 1005–1015.

Tian, L., Shen, F., Yuan, H., Zou, D., Liu, Y., Zhu, B., & Li, X. (2014). Reducing agitation energy-consumption by improving rheological properties of corn stover substrate in anaerobic digestion. *Bioresource technology*, *168*, 86–91.

Viamajala, S., McMillan, J. D., Schell, D. J., & Elander, R. T. (2009). Rheology of corn stover slurries at high solids concentrations–effects of saccharification and particle size. *Bioresource technology*, *100*(2), 925–934.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011a). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and bioengineering*, *108*(5), 1031–1041.

Wiman, M., Palmqvist, B., Tornberg, E., & Lidén, G. (2011b). Rheological characterization of dilute acid pretreated softwood. *Biotechnology and Bioengineering*, *108*(5), 1031-1041.

Zafari, A., & Kianmehr, M. H. (2012). Livestock manure management and pelleting. *Agricultural Engineering International: CIGR Journal*, *14*(3), 78–84.

Annexe IV.1. Comparaison des mesures du seuil d'écoulement de la matière 2 avec le CLEAG et un scissomètre

La **figure IV.16** montre l'évolution de τ_0 de la matière 2, mesuré à 20 °C, en fonction de la taille de hachage effectué à 3, 5 et 10 mm. Les mesures ont été répétées quatre fois pour chaque taille de hachage et en utilisant deux appareils : le CLEAG et un scissomètre. L'écart-type de ces quatre mesures est d'environ 3 Pa pour les mesures par scissométrie et de 7 à 12 Pa pour les mesures par le CLEAG aux faibles vitesses de rotation.

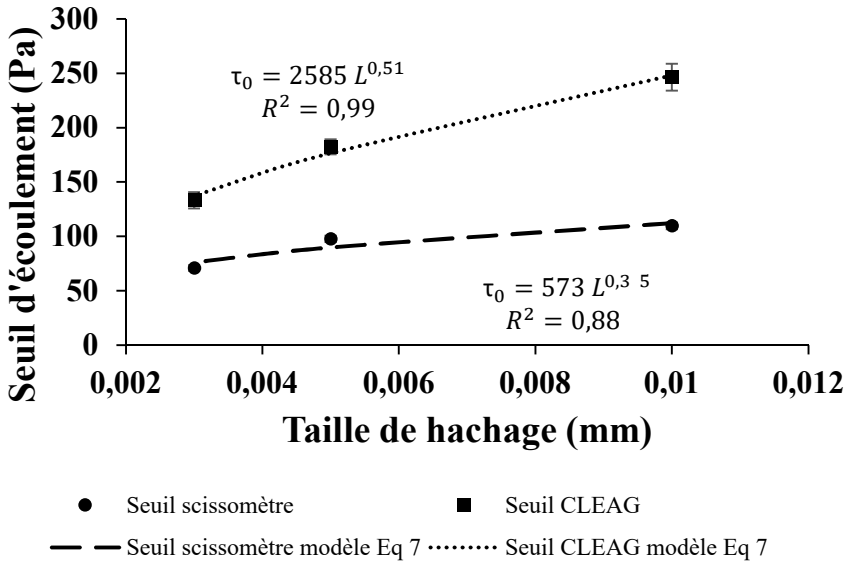


Figure IV.16 : *Seuil d'écoulement de la matière 2 mesuré par la scissométrie et la géométrie CLEAG*

La **figure IV.16** montre des différences entre les valeurs du seuil d'écoulement mesurées par les deux techniques, scissométrie et CLEAG.

La comparaison entre les mesures de ces deux géométries et une troisième technique plan-plan, utilisée comme référence, a été faite pour un gel de Carbopol. Les manipulations ont été effectuées sur un rhéomètre de laboratoire (ARG2). Le scissomètre utilisé dans cette comparaison est celui utilisé dans toutes les mesures du seuil par un rhéomètre de laboratoire dans cette thèse. Les dimensions de la pale et le récipient sont représentées sans le **tableau III.3**. La géométrie plan-plan utilisée possède un diamètre de 60 mm avec une surface rugueuse pour éviter le glissement.

Les mesures des seuils par le scissomètre sont représentées en **tableau IV.15**.

Tableau IV.15 : *Mesure du seuil par scissomètre en fonction de la vitesse de rotation*

Vitesse de rotation (rad/s)	Seuil d'écoulement (Pa)
0,01	133,7
0,005	125,3
0,005	116,5
0,001	125,9
0,001	117,4
0,01	132,7

Les résultats représentés en **tableau IV.15** montre que le seuil d'écoulement a été obtenu pour une vitesse de rotation ≤ 0,005 rad/s. La valeur moyenne est d'environ 121 Pa.

Les mesures des contraintes de cisaillement en fonction du taux de cisaillement par les deux géométries CLEAG et plan-plan sont représentées en **figure IV.17**. Ces mesures sont été effectuées deux fois pour chaque géométrie.

La correction de grand entrefer, détaillée précédemment dans ce chapitre, a été faite pour les mesures effectuées avec la CLEAG. La correction des contraintes obtenues par la géométrie plan-plan a été effectuée en multipliant les contraintes obtenues par un facteur de (0,76) (Macosko, 1994).

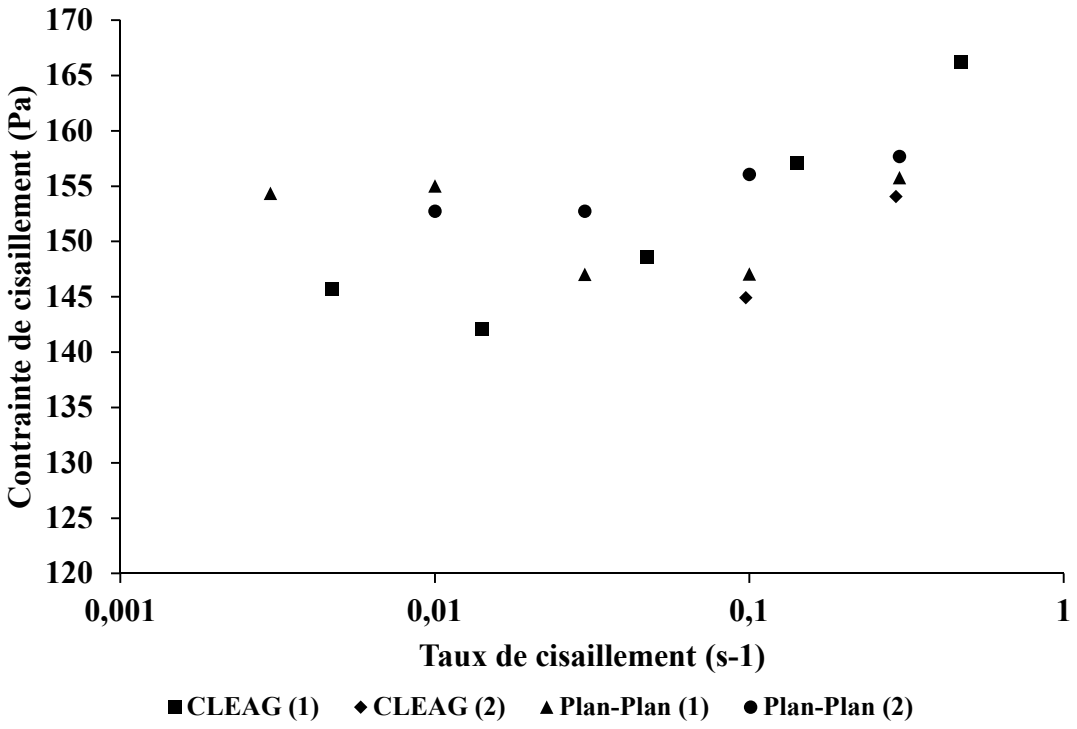


Figure IV.17 *: Résultats expérimentaux des contraintes de cisaillement en fonction du taux de cisaillement après les corrections effectuées par la CLEAG et un plan-plan*

La **figure IV.17** montre que le seuil d'écoulement est d'environ 151 et 143 Pa pour les géométries plan-plan et CLEAG respectivement.

Bien que les résultats obtenus par les trois techniques soient assez proches, nous pouvons observer une différence notamment avec la technique de scissométrie qui donne un seuil d'écoulement plus faible. Cette différence vient de l'effet du principe de mesure qui associe un cisaillement, même faible, dans le cas des géométries plan-plan et Couette alors qu'avec la technique de scissométrie la matière n'est pas en écoulement.

Ces résultats montrent un écart maximal d'environ 13% entre ces géométries.

L'écart des mesures du seuil d'écoulement de la matière 2 entre les deux géométries, le scissomètre et le CLEAG, qui est supérieur à 13%, peut être expliqué par plusieurs phénomènes, que nous proposerons ci-dessous, liés à la mise en place de ce type de matière fibreuse et complexe.

- Un remaniement des fibres moins homogène se produit probablement lors de la mise en place de l'échantillon dans le CLEAG car une spatule a été utilisée pour pousser la partie fibreuse de l'échantillon dans l'entrefer. En effet, l'échantillon, lors des mesures du seuil de la matière 2, était tellement chargé en fibre que ces fibres ont formé entre elles un réseau les empêchant de pénétrer dans l'entrefer sans aide extérieure. Nous supposons que le fait d'avoir poussé les fibres a engendré un remaniement ou une répartition non homogène dans l'ensemble du milieu. Nous supposons que ce phénomène a augmenté à son tour le seuil d'écoulement car le milieu devient plus concentré en fibres en certains endroits. Ce phénomène n'avait pas eu lieu lors de la mise en place de l'échantillon autour du scissomètre.
- l'orientation des fibres qui est restée généralement aléatoire lors de la mise en place de l'échantillon dans le scissomètre. Par contre, cette orientation était probablement impactée lors du processus de la mise en place de l'échantillon, détaillé ci-dessus, dans le cas du CLEAG.

Chapitre V

Conclusions générales, perspectives et applications industrielles

La production de déchets agricoles représente près de 12 000 kg par seconde, soit 375 millions de tonnes par année, en France. L'agriculture arrive en tête des producteurs de déchets devant le BTP selon l'Ademe. Cependant, ce chiffre est le fruit d'une estimation globale reprenant l'ensemble des rejets de l'activité agricole dont les fumiers et lisiers qui représentent à eux seuls 280 millions de tonnes par année. Ces déchets sont bien sûr les résultats des activités économiques mais ils ouvrent les portes à d'autres activités, économiques et environnementales, représentées par la production d'énergie renouvelable à partir de la production de biogaz résultant de la dégradation anaérobie de ces déchets. Ce flux immense a retenu l'attention des autorités françaises qui ont mis en place le plan Energie Méthanisation Autonomie Azote (EMAA) visant l'installation de 1000 méthaniseurs à l'horizon 2020. De ce fait, la notion de « déchets » pour ces résidus agricoles n'est plus d'actualité ; il est dorénavant de mise d'utiliser le terme de « ressources ».

Actuellement, l'offre technologique repose sur la digestion anaérobie en voie liquide continue ou sur la méthanisation en voie sèche discontinue, cette dernière ne nécessitant pas de brassage contrairement à celle en voie liquide, chacune offrant des avantages et des inconvénients. Une autre option, regroupant les avantages des deux précédentes serait la digestion en voie sèche continue. Arkolia Energies a breveté le procédé Arkométha®, soutenu par les investissements d'avenir, qui fonctionne en voie sèche continue et utilise l'injection pneumatique du biogaz pour assurer un mélange, certes efficace mais aussi contrôlé, des matières lors de la méthanisation. La maîtrise du mélange repose essentiellement sur la connaissance des caractères physiques et rhéologiques des résidus agricoles et leurs évolutions en fonction des conditions physico-chimiques et thermiques du procédé. C'est dans ce sens-là que nous avons avancé.

Les revues bibliographiques détaillées dans le chapitre I et II ont montré la rareté des études faites sur la caractérisation rhéologique des résidus agricoles et, notamment, à l'échelle industrielle. Dans ces études, la plupart des auteurs broient leurs matériaux pour adapter la taille des particules solides à la taille d'entrefer de leurs rhéomètres. D'autres auteurs ont utilisés des rhéomètres de grandes dimensions adaptés à leurs produits, béton, laves torrentielles, mais ils ne sont pas adaptés aux contraintes imposées par les produits utilisés dans cette thèse notamment l'hétérogénéité et la forte charge en fibre de dimensions importantes. Pour cela, le **1er objectif de cette thèse** a été de développer une instrumentation spécifique capable de fournir des mesures rhéométriques contrôlées servant à la modélisation numérique de l'écoulement des

matières lors de l'injection de biogaz dans le méthaniseur. Le développement d'un Rhéomètre de Grandes Dimensions pour les Substrats (RGDS) a été détaillé dans le chapitre II. Il s'agit d'un rhéomètre rotatif équipé de plusieurs cellules de mesures thermostatées pour s'adapter aux volumes des échantillons. Chaque cellule est équipée d'une pale scissométrie pour mesurer le seuil d'écoulement. La plus grande cellule est équipée également de deux pales de géométrie type mélangeurs, adaptées aux spécificités des substrats prélevés des méthaniseurs industriels, pour mesurer les contraintes de cisaillement sous écoulement (la viscosité) en utilisant l'analogie de Couette. Ces pales ont été étalonnées avec un fluide newtonien et utilisées avec succès sur un fluide à seuil modèle. Cette instrumentation a été installée sur le site industriel de Napagèse et mise en œuvre par Arkolia Energies. Des mesures préliminaires du seuil d'écoulement et de la viscosité des matériaux prélevés du fermenteur industriel de Napagèse et des pilotes de l'INSA de Lyon ont montré que le RGDS est capable de discriminer l'évolution de la MS, de la température et de la présence de biogaz dans le milieu. Nous avons eu peu de temps pour affiner le réglage de ce prototype et pour étudier l'influence de la mise en place de l'échantillon. Un retour d'expérience d'Arkolia serait utile pour l'améliorer. L'étalonnage du RGDS a montré que les incertitudes sont attribuées au frottement entre l'axe et les paliers lors de la rotation. Un effort doit être fait pour améliorer l'alignement de l'axe. Les paliers actuels pourraient être remplacés par des paliers sous air comprimé diminuant significativement le frottement mais en augmentant la complexité.

Le RGDS est apparu comme une nouvelle instrumentation indispensable car elle permet d'étudier les matériaux réels avec leurs contraintes spécifiques, en particulier, leur forte granulométrie. Elle permet surtout d'étudier les intrants et digestats au plus près de leurs conditions de préparations. En particulier, en permettant de tenir compte de la présence de biogaz, de l'influence des hétérogénéités induites par la trémie mélangeuse alimentant le digesteur etc… Des cellules adaptées pourraient alors être conçues.

- **Le 2ème objectif de cette thèse** a été d'éclaircir l'intérêt de l'utilisation du taux de matière sèche (MS) comme un paramètre contrôlant la rhéologie des résidus agricoles. Les opérateurs des méthaniseurs constatent que la MS traditionnellement utilisée n'est pas un paramètre suffisant pour estimer la rhéologie. Ils ne connaissent pas les paramètres les plus pertinents pour maitriser la rhéologie des résidus agricoles. Le chapitre III a traité cette problématique considérant ces matériaux comme des suspensions concentrées en matières végétales possédant des caractères

spongieux remarquables. L'essai de séchage a été utilisé pour déterminer la teneur en eau liée et la scissométrie pour mesurer le seuil d'écoulement, premier paramètre rhéologique à déterminer. Les résultats obtenus ont confirmé que la MS n'est pas un paramètre pertinent pour contrôler le seuil d'écoulement des déchets agricoles. En revanche, la distribution de l'eau entre eau libre et liée influence de façon importante sur les valeurs du seuil d'écoulement. Nous avons proposé une méthode de détermination des concentrations critiques séparant les régimes semi-concentré, concentré, milieu triphasique non saturé en liquide jusqu'au milieu granulaire humide et leurs relations avec le seuil d'écoulement. Il a été montré que la fraction volumique des fibres humides ou la fraction d'eau libre semblent les paramètres les plus pertinents pour contrôler la rhéologie du milieu. Ces résultats ont mis en évidence l'intérêt de l'utilisation d'essai de séchage pour connaître l'état de la distribution d'eau dans ces matériaux végétaux et, notamment, pour distinguer le milieu granulaire humide du milieu triphasique non saturé. Dans le court terme, il serait utile de faire les mesures avec une masse plus importante pour les matériaux industriels afin de mieux représenter l'hétérogénéité de ces échantillons et afin de vérifier l'indépendance de la masse d'échantillon utilisée sur les résultats obtenus. Il serait utile également de vérifier la limite de l'utilisation de l'essai de séchage pour distinguer les régimes des matériaux. Cela peut être effectué en faisant des essais de séchage et des mesures de seuil d'écoulement par scissomètre sur une large gamme de produits commençant par le lisier non pailleux et le digestat finale.

Le 3ème objectif de cette thèse a été de fournir les premiers résultats des évolutions des propriétés rhéologiques, seuil d'écoulement et viscosité, en fonction des paramètres opératoires utilisés pour faciliter la mise en mouvement du matériau dans le digesteur et pour aider à l'établissement d'une loi de comportement à utiliser dans une modélisation numérique future. Parmi ces paramètres, nous avons choisi la taille des fibres, la température et le taux de la matière sèche. Ne disposant pas du RGDS à ce moment-là, un outil rhéométrique, dit Couette Large Entrefer Anti Glissement (CLEAG) a été spécifiquement conçu pour être en mesure de caractériser les échantillons déchiquetés à l'INSA. Une méthodologie spécifique a été développée pour hacher les fibres sans séparer la phase liquide de la phase solide. La séparation de phases a été soigneusement prise en compte lors des mesures rhéométriques. Les résultats obtenus dans ce chapitre ont montré que l'ensemble des propriétés rhéologiques, le seuil d'écoulement et la viscosité, décroissent en diminuant la taille des fibres et la MS et en

augmentant la température. Plusieurs lois empiriques ont été proposées pour permettre l'estimation des grandeurs rhéologiques en cas de changement des paramètres opératoires. Dans un court terme, il serait nécessaire de multiplier les mesures effectuées pour chaque matière, afin de mieux préciser la répétabilité et la validité des lois proposées.

Au terme de cette thèse, il nous apparaît que la rhéologie des résidus agricoles tournés vers la méthanisation représente un champ de recherche vaste, riche et complexe. Nous proposons les perspectives suivantes pour les recherches futures.

La première est de se rapprocher encore plus du matériau industriel en testant ce matériau au plus près du digesteur. Parmi les conditions industrielles à prendre en compte :

- La taille et la granulométrie des fibres des résidus agricoles. Pour des raisons de temps et de commodité, les matériaux étudiés dans cette thèse sont issus des pilotes de l'INSA pour lesquels les résidus ont été déchiquetés à des dimensions sous centimétriques. Les matériaux méthanisés ont des fibres des longueurs plus élevées dont il faut tenir compte. Par exemple les analyses dans la thèse sont faites pour des ratios longueur/diamètre relativement faibles pour lesquels nous avons considéré des fibres plutôt rigides, ce qui ne pourrait pas être le cas des résidus réels pour lesquels les fibres devraient être considérées comme déformables sous les sollicitations mécaniques.

- La taille des hétérogénéités des substrats : L'échelle de longueur des hétérogénéités des intrants de l'INSA est plutôt la taille de la fibre car les intrants ont été déchiquetés à des tailles relativement petites. La question est ouverte pour les intrants des méthaniseurs industriels où des agrégats peuvent être observés. Par exemple sur le site de Napagèse, la taille des agrégats est essentiellement fixée par la trémie mélangeuse en tête de l'installation imposant des tailles plus grandes que celles étudiées dans la thèse. Notons que la taille et la concentration de ces agrégats peuvent diminuer sous les sollicitations mécaniques. Cette taille peut avoir aussi une influence sur la surface disponible pour les aspects biologiques.

- Le biogaz et le caractère triphasique des substrats : Cet aspect, qui est important pour la rhéologie dans le méthaniseur, n'a pas pu être traité dans cette thèse notamment parce que les échantillons de l'INSA ne possédaient pas de biogaz dans les

conditions appliquées lors des mesures rhéométriques. La prise en compte du biogaz dans la rhéologie demande un soin particulier pour maîtriser le biogaz à l'intérieur de l'échantillon et pour caractériser la répartition et la quantité de biogaz dans la cellule du RGDS lors des mesures. Les échantillons de grand volume doivent être prélevés dans le méthaniseur. Une autre solution serait d'instrumenter le RGDS comme un mini réacteur pour contrôler le biogaz.

Un aspect essentiel de la recherche est l'établissement de la relation entre la rhéologie et la formulation de l'intrant pour optimiser la mise en mouvement du matériau en prenant en compte dans cette optimisation le coût financier et idéalement l'optimisation biologique. Parmi les paramètres à explorer du point de vue de la rhéologie des suspensions d'abord sans biogaz puis avec biogaz :

- La morphologie des végétaux en suspension : la longueur, la section, la surface disponible.
- La nature des végétaux, leurs caractéristiques mécaniques, leurs pouvoirs absorbant en liquide, leurs synergies …
- La concentration en végétaux et les teneurs en eau libre et eau liée.
- L'origine animale des fumiers

Un point intéressant à approfondir du point de vue de la rhéologie des suspensions concentrées est la mécanique des contacts entre les végétaux. Nous avons vu dans nos analyses sur les origines du seuil d'écoulement et de la viscosité l'importance des phénomènes de lubrification, de frottement et des enchevêtrements entre les fibres. La maîtrise de ces phénomènes permettrait de réduire les forces de contact pour avoir des matériaux plus concentrés avec des consistances moindres.

Comme nous l'avons vu dans la thèse, la structure des suspensions est différente selon les teneurs en eau libre ou liée. Il est très utile pour la conduite du process de connaître les concentrations critiques en fonction des paramètres détaillés au-dessus. Nous avons principalement étudié des suspensions saturées en liquide. Toutefois, les suspensions non saturées en liquide donc triphasiques méritent un traitement particulier car leur comportement rhéologique dépend de la direction des sollicitations mécaniques imposées qui peuvent avoir de l'influence sur le compactage et la densité apparente de l'échantillon. Cette connaissance

donnera des indications pour le concepteur de l'installation sur les sollicitations à imposer pour éviter les difficultés de manipulation des matériaux dans cet état.

Un travail est à mener sur les lois de comportements de ces matériaux. La loi d'Herschell Bulkley introduite dans cette thèse est insuffisante pour une partie des suspensions prélevées au long du processus de méthanisation industrielle, notamment pour les intrants. Même pour les suspensions dans le domaine saturé en liquide, le comportement doit être représenté par des lois introduisant l'effet de la sollicitation sur l'état de matériaux qui pourrait par exemple expliquer les seuils d'écoulement «statique » et « dynamique » des suspensions.

Bien sûr, la possibilité de pouvoir faire des mesures rhéologiques in-situ dans le digesteur serait précieuse. Les propriétés rhéologiques sont très sensibles aux modifications de structures et de physico-chimie des matériaux. La mesure in-situ pourrait permettre le pilotage fin du méthaniseur et d'étudier les matériaux au plus près de leur conditions d'élaboration.

Enfin, un objectif ambitieux serait d'établir des corrélations entre les aspects rhéologiques et formulations des substrats et les aspects biologiques afin de comprendre dans le détail et de contrôler le procédé Arkométha®.

Rhéologie des résidus agricoles pour un procédé de méthanisation par voie sèche multi-étapes

Résumé

Le procédé Arkométha® utilise à profit l'injection de biogaz pour mélanger les résidus agricoles (fumier, lisier, ensilage, etc…) lors d'un procédé de méthanisation en voie sèche dans lequel la matière est épaisse. La connaissance des propriétés rhéologiques de ces matériaux, rarement étudiés dans la littérature, notamment à l'échelle industrielle, est un élément indispensable pour maitriser et contrôler le processus de mélange. Cette thèse a pour objectif de développer la compréhension des évolutions physiques et rhéologiques de ces matériaux lors de la méthanisation. La revue bibliographique détaillée dans le deuxième chapitre, a montré la nécessité de disposer d'un rhéomètre capable de mesurer les propriétés rhéologiques de ces produits à l'échelle industrielle. Pour cela, un cahier de charge a été établi à partir des contraintes scientifiques et techniques imposées par ces matériaux considérés comme des suspensions concentrées en fibres de dimensions importantes. Sur cette base, un rhéomètre de grandes dimensions pour les substrats, nommé RGDS, a été construit, validé et mis en service sur site industriel. La technique de scissométrie était utilisée pour mesurer le seuil d'écoulement et des pales type mélangeur, étalonnées en utilisant l'analogie de Couette, permettent de mesurer les propriétés sous écoulement. Dans le troisième chapitre nous avons montré la limite de l'utilisation du taux de matière sèche (MS%) traditionnellement utilisé comme un paramètre contrôlant la rhéologie, comme par exemple, le seuil d'écoulement de ces matériaux. Nous avons montré qu'il est plus pertinent de maitriser la répartition de l'eau dans la suspension pour contrôler les propriétés rhéologiques en prenant en compte le caractère spongieux de la matière lignocellulosique. Nous avons montré comment déterminer les concentrations critiques qui séparent les régimes semi-concentré, concentré, milieu triphasique non saturé en liquide jusqu'à un milieu granulaire humide et leurs relations avec le seuil d'écoulement. Dans le quatrième chapitre nous avons étudié l'effet de l'évolution des paramètres opératoires du procédé de méthanisation comme la taille des fibres, la température et le taux de matière sèche sur les propriétés rhéologiques des matériaux. Plusieurs modèles et lois ont été proposés pour quantifier l'intérêt d'effectuer des modifications des paramètres opératoires sur la rhéologie de ces matériaux.

Mots clés : Rhéologie, méthanisation en voie sèche, fumier, déchets végétaux, suspensions, fibres

Rheology of agricultural residues for a multi-stage dry anaerobic digestion process

Abstract

The Arkometha® process uses biogas injections to mix agricultural residues (manure, slurry, silage, straw) in a dry anaerobic digestion process. Knowledge of the rheological properties of these materials, rarely studied in the literature, and especially not on an industrial scale, is an essential element to supervise and control the mixing process. This thesis aims to improve the understanding of the physical and rheological evolutions of these materials along the anaerobic digestion process. The literature showed the need for a rheometer able to measure the rheological properties of these products at the industrial scale. For this purpose, specifications were established based on the scientific and technical constraints imposed by these materials, which are considered as fiber concentrated suspensions. On this basis, a large rheometer for substrates, called RGDS (for Rheometer Grand Dimensions for the Substrate), was built, validated and commissioned on an industrial site. The van test technique was used to measure the yield stress and mixer blades, calibrated using the Couette analogy, were used to measure shear stresses. In the third chapter we have shown the utilization limits of the total solids (TS%), traditionally used as the main parameter for rheology controlling. In this chapter we treated the yield stress of these materials as a rheological parameter example. We have shown that it is more appropriate to control the water distribution in order to control the rheological properties of theses suspensions by taking into account the spongy nature of the lignocellulosic material. We have shown how to determine the critical concentrations separating the semi-concentrated, concentrated, triphasic and the wet granular behaviors and their relationship with yield stress. In the fourth chapter, we studied the effect of changes in the anaerobic digestion operating parameters, such as fiber size, temperature and TS on the rheological properties of materials. Several models and empirical equations have been proposed to quantify the advantage of making changes in the operating parameters on the rheology of these materials.

Keywords: Rheology, dry methanisation, manure, vegetal waste, suspensions, fibers

Laboratoire Rhéologie et Procédés, 363 rue de la Chimie - Bâtiment B - Domaine Universitaire, BP53, 38041 Grenoble Cedex 09 - France