



**HAL**  
open science

# Analyse locale de l'hydrodynamique d'un broyeur à billes agité pour le traitement de dispersions solide-liquide

Romain Gers

► **To cite this version:**

Romain Gers. Analyse locale de l'hydrodynamique d'un broyeur à billes agité pour le traitement de dispersions solide-liquide. Génie des procédés. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2009. Français. NNT : 2009INPT024H . tel-04411968

**HAL Id: tel-04411968**

**<https://theses.hal.science/tel-04411968>**

Submitted on 23 Jan 2024

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

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



# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Institut National Polytechnique de Toulouse*  
Discipline ou spécialité : *Génie des Procédés et de l'Environnement*

---

Présentée et soutenue par *Romain GERS*  
Le 7 juillet 2009

Titre : ***Analyse locale de l'hydrodynamique d'un broyeur à billes agité pour le traitement de dispersions solide-liquide***

---

### JURY

<i>Pascal Guiraud</i>	<i>Membre</i>
<i>Aziz Omari</i>	<i>Rapporteur</i>
<i>Huai Zhi Li</i>	<i>Rapporteur</i>
<i>Arno Kwade</i>	<i>Membre</i>
<i>Christine Frances</i>	<i>Membre</i>
<i>Dominique Anne-Archard</i>	<i>Membre</i>
<i>Eric Climent</i>	<i>Membre Invité</i>
<i>Dominique Legendre</i>	<i>Membre Invité</i>

---

**Ecole doctorale :** *Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés*  
**Unité de recherche :** *Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse (LGC) et Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT)*  
**Directrices de Thèse :** *Christine Frances et Dominique Anne-Archard*

---

# Résumé

Le broyage réalisé dans un broyeur à billes agité est un procédé permettant de produire des nanoparticules en suspension dense. L'étude réalisée a pour objet l'analyse de l'influence de l'hydrodynamique sur le processus de réduction de taille. La première partie de l'étude a porté sur la modélisation de l'hydrodynamique globale dans ce broyeur en considérant un fluide équivalent de propriétés rhéologiques variables, représentant le mélange des billes de broyage et de la suspension à broyer. Les champs de vitesse, obtenus par simulation numérique directe (DNS), ont permis de déterminer une cartographie des collisions avec leurs caractéristiques et d'en déduire les mécanismes responsables de la fragmentation. A partir de la connaissance des vitesses d'impact et des nombres de Reynolds caractéristiques des collisions dans le broyeur, un dispositif expérimental a été conçu reproduisant, à plus grande échelle, le rapprochement d'une bille de broyage mobile vers une bille fixe. Les profils de vitesse de drainage ont été mesurés par vélocimétrie par image de particules (PIV) sous différentes conditions expérimentales et différentes configurations d'impact. Ces mesures ont permis de calculer les trajectoires de particules fictives dans l'entrefer entre les sphères et d'estimer une efficacité de capture des particules. On observe qu'une augmentation des effets d'inertie de ces particules, en agissant soit sur leur diamètre, soit sur la vitesse de collision, est favorable à leur capture et par conséquent à leur fragmentation. De manière complémentaire, l'examen des trajectoires de particules réelles déposées à la surface de la sphère immobile a révélé que l'efficacité de capture est réduite lorsque le nombre de Stokes des particules augmente.

# Abstract

The stirred media mill is used to produce nanoparticles from dense suspensions. The purpose of our study is to analyse the influence of the hydrodynamics on the fragmentation process. The first part is devoted to the flow modelling in the mill for an equivalent fluid. The constitutive law is accounting for the properties of grinding beads and suspended particles. Velocity fields, obtained by direct numerical simulations, have permitted to analyse the collision characteristics and to determine the major mechanisms leading to fragmentation. By determining the impact velocities and collisional Reynolds we were able to set up an experiment modelling two approaching grinding beads. One bead is mobile while the other is fixed. The flow velocities in the fluid have been measured by PIV for a wide range of conditions. These velocity fields have been used to calculate particle trajectories within the gap between the two beads. This yields to estimate a capture efficiency for particles. We concluded that an increase of the particle diameter or an increase of the impact velocity increases the probability of capture. Additionally, trajectories of deposited particle at the surface of the fixed spheres show that the capture efficiency decreases when the Stokes number of the particle increases.

# Remerciements

En premier lieu je tiens à remercier vivement les membres du jury qui ont accepté de participer à l'appréciation de mon travail et qui en ont permis la reconnaissance. Je salue en particuliers l'effort consenti par Arno Kwade qui a fait l'aller-retour depuis Braunswsheig en Allemagne le jour de ma soutenance, les remarques très encourageantes de mes deux rapporteurs, Aziz Omari et Huai Zhi Li, et Pascal Guiraud qui a accepté de présider aux destinées de cette thèse.

La résussite de ce projet tient en grande partie aux conditions idéales instorées par mes quatres anges gardiens qui m'ont apporté confiance, soutien et compétences tout au long de la thèse. Je veux donc chaleureusement remercier Christine Frances pour s'être battue pour maintenir le financement de cette thèse et pour sa stupéfiante conscience du rôle de directeur de thèse, Dominique Anne-Archard pour sa disponibilité, sa gentillesse et sa participation aux interminables séquences d'acquisition des mesures expérimentales, Eric Climent pour ses précieux conseils sur la partie numérique, ses encouragements permanents et Dominique Legendre pour sa vision globale et ses réflexions sur l'exploitation des expériences.

Les moments difficiles, qui égrainent toute thèse, ne me feront pas oublier les très bons moments passés auprès de mes collègues, aussi bien du Laboratoire de Génie Chimique que de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, au travail comme lors des soirées, et auprès de mes coéquipiers de rugby de Muret.

J'ai ainsi eu la chance de cotoyer ceux qui ont marqué l'Histoire du bureau GIMD (Génie des Interfaces et des Milieux Divisés pour les puristes) du LGC, lieu de conférences interculturelles parfois vives, Sébastien Teychene, Christophe Conan, Nelson Ibaseta Garrido, Mallorie Tourbin, Riccardo Maniero, Mariem Kacem, Nicolas Abi Chebel, Amélie Pouplin, Muhammad Asif Inam, Soualo Ouattara, Lynda Aiche, Nicolas Estime et ceux qui s'y sont associés Vincent Sarrot, Nicolas Reuge, Alicia Aguilar Corona, Micheline Abbas, Ilyes Zahi, Adrien Gomez, Huberson Akin, Caroline Strub, Joachim Krou Nguessan, Marianne Lebigaut, Norbert Völkel, Laurent Fidaire.

L'IMFT n'a pas non plus été en reste grâce aux discussions avec Rémi Bourguet, Benjamin Levy, Karim Debbagh, David Bailly et Frank Auguste, les soirées africaines organisées par Serge Adjoua et la collaboration d'Irène Renaud, les repas du groupe EMT2 chez Xavier Benoit-Gonin. Je remercie Matthieu Roudet qui, comme moi a navigué entre les deux labos, et qui m'a permis de passé toutes les étapes de la thèse avec plus de souplesse.

C'est à l'IMFT aussi que j'ai eu plaisir à travailler avec mes collègues de TP ou de TD donnés à l'ENSEEIHt Irène Renaud, Fabien Chauvet, Nicolas Brosse, Agathe Chouippe, Jean-François Parmentier, Marie Cabana et Stéphanie Véran. J'en profite également pour remercier les professeurs de l'ENSEEIHt Wladimir Bergez, Hélène

Roux, Marie-Madeleine Maubourguet, Alexei Stoukov et Rachid Ababou aux cotés de qui il a été très agréable de travailler.

Je tiens à remercier également Annaïg Pedrono et Hallez Yannick qui m'ont permis de démarrer avec JADIM, Sebastien Cazin et Emmanuel Cid pour la préparation et le suivi des expériences, les membres de l'atelier de l'IMFT qui ont participé au montage de la manip, Jean-Marc Sfedj, Laurent Mouneix et Jean-Pierre Escafit. Je n'aurais évidemment pas pu faire du numérique sans les appuis de Gilles Martin, Yannick Esposito, Pierre Fauret, Jean-Renaud Murlin du service informatique de l'IMFT et Denis Plotton et Irea Touche au LGC. Je les remercie pour leur disponibilité.

J'adresse également un grand merci à mes amis rencontrés sur et en dehors du terrain de rugby, qui m'ont permis de décompresser et de passer des moments inoubliables. Parmi eux figurent pêle mèle, avec ou sans diminutif, Yoann Tomasi, Domi Saout, Dan, Yaya, Riri, Regis, David, Ludo, Gomis, Mathias Benn, Vidoc, Nico, Greg, Piou-Piou, Jacky, Fred, Cécé, Pascal B., Pascal M., et les autres...

La prise de recul est aussi venue des nombreuses randonnées que j'ai faites, pour une grande part au sein du club montagne de l'ENSEEIH, où des amitiés se sont créées avec deux membres notamment, Sébastien Latres et Jérôme Drouet, qui m'ont accompagné de nombreuses fois dans des courses parfois un peu longues! Merci à eux aussi.

De même je veux remercier Olivier Masbernat pour les repas d'équipe organisés le plus souvent chez lui, repas qui ont permis de se retrouver en dehors du travail, de permettre à tous de se présenter sous un autre jour et de faire partager ses traditions culinaires.

J'ai aussi apprécié l'accueil de Björn Schönstedt lorsque je suis allé travailler quelques jours en Allemagne sur une manip et Martin Morgeneyer que j'ai eu la chance de rencontrer plusieurs fois depuis une école d'été organisée à Porquerolles. Enfin je voudrais remercier mes trois soeurs Audrey, Corinne et Christelle, et surtout mon frère jumeau Roland qui m'a soutenu tout au long de ma thèse.

# Table des matières

Résumé . . . . .	iii
Abstract . . . . .	iv
Remerciements . . . . .	v
Table des matières . . . . .	vii
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Contexte de l'étude</b>	<b>5</b>
1 Présentation du procédé de nanobroyage . . . . .	6
1.1 Production de nanoparticules . . . . .	6
1.2 Présentation du broyeur à billes agité . . . . .	7
1.3 Les limitations du procédé de nanobroyage . . . . .	8
1.4 Paramétrisation du broyage . . . . .	12
1.5 Influence des paramètres opératoires . . . . .	14
1.6 Description de l'hydrodynamique dans la chambre de broyage	18
2 Etat de l'art sur le rapprochement de deux sphères . . . . .	23
2.1 Caractérisation d'une collision par le nombre de Stokes et le	
coefficient de restitution . . . . .	25
2.2 Elastohydrodynamique . . . . .	26
2.3 Bilan de force sur une bille qui impacte une paroi ou une sphère	35
3 Conclusion . . . . .	37
<b>2 Modélisation d'un broyeur à billes agité : hydrodynamique et ca-</b>	<b>39</b>
<b>ractéristiques des collisions</b>	
1 Objectifs de l'étude . . . . .	39
2 Texte de la publication . . . . .	41
3 Introduction . . . . .	41
4 Modelling approach . . . . .	42
4.1 Mill design . . . . .	42
4.2 Numerical method . . . . .	43
4.3 Suspension modelling . . . . .	45
4.4 Reynolds number definition . . . . .	47
5 Spatial structure of the flow field . . . . .	48
5.1 Hydrodynamics in the Newtonian cases . . . . .	48
5.2 Hydrodynamics of non-Newtonian fluids . . . . .	53
6 Determination of collision characteristics . . . . .	55
6.1 Different types of collision . . . . .	56
6.2 Impact parameters . . . . .	57

6.3	Maximum relative velocity and stress intensity in Newtonian fluids . . . . .	58
6.4	Maximum relative velocity and stress intensity in non-Newtonian fluids . . . . .	60
6.5	Prediction of colliding conditions . . . . .	61
7	Conclusion . . . . .	62
8	Acknowledgments . . . . .	63
9	Bilan . . . . .	64
<b>3</b>	<b>Etude expérimentale du rapprochement de deux billes de broyage : moyens et méthodes</b>	<b>65</b>
1	Objectifs et méthodologie . . . . .	65
2	Le modèle expérimental . . . . .	68
2.1	Dimensionnement . . . . .	68
2.2	Nature des sphères utilisées . . . . .	71
2.3	Choix des suspensions . . . . .	73
3	Mesures par PIV et ombroscopie . . . . .	75
3.1	La vélocimétrie par image de particules . . . . .	75
3.2	Synchronisation des différents éléments de la chaîne de mesure	77
3.3	Ombroscopie . . . . .	77
4	Post-traitement des données . . . . .	78
4.1	Pré-traitement avant PIVIS . . . . .	78
4.2	Présentation du code de calcul PIVIS . . . . .	79
4.3	Traitement après PIVIS et validation . . . . .	80
4.4	Nombre de Reynolds de drainage . . . . .	81
4.5	Suivi lagrangien de particules fictives . . . . .	82
5	Suivi de particules placées sur la sphère fixe . . . . .	84
5.1	Choix des billes . . . . .	84
5.2	Technique d'acquisition et exploitation . . . . .	85
6	Bilan . . . . .	86
<b>4</b>	<b>Etude expérimentale du rapprochement de deux billes de broyage : Résultats</b>	<b>89</b>
1	Introduction . . . . .	89
2	Influence de la nature du fluide sur le champ de vitesse de drainage	91
3	Influence de la vitesse de rapprochement sur le champ de vitesse de drainage . . . . .	94
4	Evolution du champ de vitesse en fonction de la distance entre les sphères à même Re . . . . .	95
5	Evolution du champ de vitesse en fonction de la distance à l'axe $z$ . .	96
6	Evolution du champ de vitesse selon le type de rapprochement . . . .	97
6.1	Décalage de $0.5R$ . . . . .	99
6.2	Décalage de $R$ . . . . .	100
6.3	Décalage de $1.5R$ . . . . .	102
6.4	Décalage de $2R$ . . . . .	103
7	Etude du champ de cisaillement entre les sphères . . . . .	105
7.1	Evolution du champ de cisaillement en fonction de la distance entre les sphères . . . . .	105

7.2	Evolution du champ de cisaillement en fonction de la vitesse relative d'approche . . . . .	106
7.3	Evolution du champ de cisaillement en fonction du décalage entre les sphères . . . . .	107
7.4	Evolution du champ de cisaillement en fonction de la nature du fluide . . . . .	111
8	Estimation de l'efficacité de capture de particules en suspension . . .	112
8.1	Détermination des trajectoires de particules à l'aide des champs de vitesse . . . . .	112
8.2	Suivi de particules déposées sur la sphère fixe . . . . .	117
9	Evolution du champ de vitesse lors d'un rapprochement périodique .	119
10	Conclusion . . . . .	124
<b>Conclusion</b>		<b>127</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>131</b>



# Introduction

Ce travail de Thèse s'inscrit dans le contexte très général de la production de nanoparticules, domaine en plein essor actuellement. En effet, les nanoparticules se trouvent utilisées dans de nombreux secteurs d'activité. Une meilleure résistance aux rayures pour les peintures automobiles offerte par des pigments nanométriques, une amélioration des caractéristiques mécaniques des matériaux par l'insertion de nanoparticules limitant les déplacements supramoléculaires et la propagation de fissures, une augmentation de l'efficacité de principes pharmaceutiques ou cosmétiques comme ceux qui sont à la base des sprays pour les personnes asthmatiques (les nanoparticules pénétrant plus profondément dans les poumons) ou à la base des crèmes solaires, ne sont que quelques exemples parmi tant d'autres.

De nombreux procédés sont utilisés pour produire ces nanoparticules. Ils se divisent en deux grandes familles, selon l'approche sur laquelle ils s'appuient : soit par croissance à partir d'atomes ou de molécules, soit par réduction de taille de particules micrométriques. Parmi les procédés qui se basent sur la deuxième approche, le broyeur à billes agité est un des plus efficaces et un des plus facilement extrapolables à l'échelle industrielle. Il permet en outre de traiter des suspensions denses. La chambre de broyage est une cuve cylindrique remplie à 50% de billes de broyage (taux de charge apparent en billes de 75% à 80% par rapport au volume de la chambre). Le broyeur est alimenté par une suspension contenant les particules à broyer dont la concentration volumique est couramment comprise entre 10 et 30%. Les billes et la suspension (particules, fluide suspendant et additifs éventuels) sont agitées à très grande vitesse par un agitateur central. Les particules sont écrasées lors des collisions entre billes de broyage.

Bien que de type de broyeur soit développé depuis 25 ans environ pour produire des particules microniques, la connaissance du fonctionnement de cette technologie est encore très imparfaite. Les études menées par une analyse globale du procédé ont essentiellement permis de connaître l'influence sur la distribution de taille du produit des différentes conditions opératoires : vitesse de rotation de l'agitateur, diamètre des billes de broyage, diamètre des particules à broyer, concentration de certains additifs modifiant la viscosité de la suspension, concentration en billes de broyage ou en particules, temps de broyage, débit d'alimentation, ... etc. Mais les mécanismes de fragmentation ne sont pas identifiés clairement. Malgré tout, ce broyeur est capable de produire des particules de quelques dizaines de nanomètres seulement, voire moins sous certaines conditions, en particulier si on utilise des billes de quelques centaines de microns de diamètre. Mais pour atteindre cette performance, le coût énergétique est relativement important et s'accompagne d'une pollution de la suspension par des morceaux de billes de broyage, par fracturation ou érosion, du fait de l'intensité des chocs.

Quelles que soient les conditions de broyage et la nature du produit à broyer, le procédé se heurte à une taille limite de particule, taille en dessous de laquelle on ne peut descendre, indépendamment de la durée de l'opération. En prolongeant celui-ci, on observe même dans certains cas une augmentation du diamètre moyen des particules broyées à cause du phénomène d'agrégation. Cette limite à laquelle on se heurte peut donc être soit de nature mécanique (matériau non fracturable en dessous d'une certaine taille par rapport à l'énergie disponible dans le broyeur et usure des billes de broyage), soit de nature physico-chimique (agglomération des particules nouvellement créées sous l'effet de fortes interactions de surface, attractives à courte distance), ou encore d'origine hydrodynamique (complexité de l'écoulement dans le broyeur générant des zones d'efficacités différentes au niveau global et ralentissement important des billes de broyage lors de l'impact sous l'effet du drainage du film liquide interstitiel).

L'objectif de cette Thèse est d'approfondir le rôle du facteur hydrodynamique dans le processus de réduction de taille par broyage dans un broyeur à billes agité. L'étude s'appuie sur l'analyse de l'hydrodynamique conduisant à la fragmentation, tant au niveau global qu'au niveau local. L'expérience montre que la taille des particules, leur concentration, la nature des interactions interparticulaires jouent un rôle lors de ce processus. Toutefois, on ignore l'importance qu'ont ces paramètres en fonction des vitesses d'impact et de la taille des billes. De même, on ne sait pas s'il existe une taille minimale en dessous de laquelle la probabilité pour qu'une particule subisse une contrainte lors de l'impact des billes devient négligeable. En effet, seules les particules restant à l'intérieur d'un volume actif entre les billes peuvent être fragmentées. Les écoulements dans le broyeur ont donc été étudiés, en fonction de la nature de la suspension, par simulation numérique directe. Ils ont livré les conditions dans lesquelles se produisent les collisions entre deux billes de broyage. Il a alors été possible de caractériser le phénomène de collision pendant lequel les particules sont transportées par le fluide dans un voisinage du point de contact entre les billes. Nous avons calculé le mouvement de particules dans l'entrefer selon leurs tailles, selon la vitesse de rapprochement de deux billes de broyage et selon la nature du fluide qui les porte. Nous avons pu en déduire une efficacité de capture et ainsi de déterminer le type de choc le plus efficace, celui qui doit être favorisé pour améliorer le rendement du procédé.

Dans ce mémoire, le premier chapitre fait le bilan des connaissances relatives aux deux objectifs poursuivis dans cette Thèse : l'étude de l'hydrodynamique globale dans le broyeur et la caractérisation d'un choc élémentaire entre deux billes. Il présente donc le broyeur à billes agité et ses performances dans une première partie, puis traite des éléments théoriques disponibles sur l'écoulement de drainage entre deux sphères qui se rapprochent dans une deuxième partie.

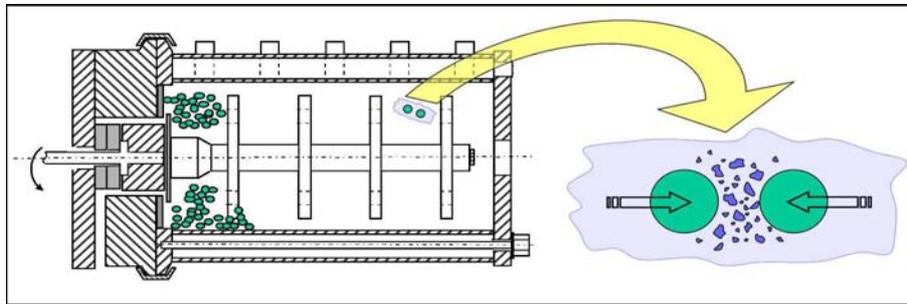
Le second chapitre expose les résultats de la modélisation de l'hydrodynamique globale dans ce broyeur par un fluide équivalent, représentant le fluide réel composé des trois phases que sont les billes de broyage, les particules à broyer et le fluide porteur. Les champs de vitesse dans la chambre de broyage, obtenus par simulation numérique directe, servent à déterminer les caractéristiques des collisions (vitesses d'impact, angles de collision). Le troisième chapitre présente les moyens et méthodes qui ont été mis en place dans des campagnes de mesures expérimentales

par PIV (*Particle Image Velocimetry*) et par PTV (*Particle Tracking Velocimetry*) afin de comprendre le piégeage des particules lors d'une collision entre deux billes de broyage. Cette étude expérimentale a été réalisée en se plaçant dans les conditions de choc déterminées numériquement lors de l'étude globale du broyeur, présentée au chapitre 2. Les mesures de champs de vitesse par PIV ont permis d'étudier le drainage du liquide lors du rapprochement de deux sphères et de calculer des trajectoires de particules dans l'entrefer. Une campagne de visualisation a permis de dégager les conditions de capture de particules déposées à la surface de l'une des sphères. Les trajectoires de ces particules ont ainsi pu être reconstruites à partir des séquences d'images pour différentes vitesses d'approche, réalisant ainsi une méthode de vélocimétrie par suivi de particules (PTV). Les résultats de ces deux campagnes de mesures sont présentés et analysés dans le chapitre 4. Enfin, une conclusion générale reprend les différents résultats obtenus lors de ce travail et développe les perspectives qui s'offrent pour sa poursuite.



# Chapitre 1

## Contexte de l'étude



**Introduction** Ce premier chapitre comprend deux parties principales qui correspondent aux deux axes majeurs de ce travail de Thèse. La première porte sur la compréhension de l'influence de l'hydrodynamique globale dans un broyeur à billes agité pour la production de nanoparticules. Après avoir situé le contexte de la production de nanoparticules par fragmentation, nous décrivons le fonctionnement d'un broyeur à billes agité, support de cette Thèse.

Plusieurs travaux ont été réalisés au Laboratoire de Génie Chimique sur l'analyse du procédé de broyage dans un broyeur à billes agité. Pour avoir des informations générales sur ce procédé, on pourra en particulier consulter les travaux de Bel Fadhel (1998) et de Garcia (2001). Par ailleurs, une étude du procédé de nanobroyage appliqué à la production d'actifs pharmaceutiques est actuellement menée au LGC par Soualo Ouattara, doctorant INPT. Nous nous limiterons ici à la présentation de travaux relatifs à l'influence de quelques paramètres opératoires sur l'efficacité du procédé afin de mettre en avant les grandeurs caractéristiques utilisées pour l'optimisation des procédés de broyage.

La seconde partie s'intéresse à l'hydrodynamique locale qui contrôle la manière dont sont capturées et broyées les particules entre les billes de broyage à chacune de leur collision dans un broyeur à billes agité. Cette partie expose les principaux résultats relatifs à l'hydrodynamique d'un fluide seul, newtonien ou non, comprimé entre deux sphères qui se rapprochent.

# 1 Présentation du procédé de nanobroyage

Nous nous intéressons ici aux procédés mis en oeuvre pour la production de nanoparticules par fragmentation et plus spécifiquement aux broyeurs à billes agité. Ce procédé est utilisé à l'échelle industrielle pour la production de nanoparticules et il connaît depuis quelques années un développement fulgurant.

## 1.1 Production de nanoparticules

Toutes les industries sont concernées par les nanoparticules. Le Conseil Général des Mines avait prédit un marché mondial de l'ordre de 700 milliards de dollars pour 2008 par rapport aux 45.5 milliards investis en 2004. On peut supposer que ce chiffre a été atteint puisque la National Science Foundation table sur 1000 milliards vers 2010-2015. Les nanoparticules présentent des propriétés magnétiques, électriques ou optiques spécifiques. Par exemple, du fait de leur très faible diamètre combiné à une surface importante, il est possible d'augmenter l'efficacité des catalyseurs dans l'industrie chimique, donc de réduire la taille des réacteurs et les quantités de réactifs utilisés. Elles servent également à renforcer la dureté et la résistance des matériaux composites, ou des alliages classiques, en contraignant la propagation des lignes de fracture, mais aussi à augmenter la résistance des enduits face aux rayures. De plus, elles permettent de produire de l'électricité solaire à bas coût (procédé de Nanosolar) et pourraient même à l'avenir participer au traitement de certains cancers. On peut en effet utiliser des nanoparticules toxiques pour les tumeurs, enrobées d'un matériau qui favorise l'accès à la tumeur et qui peut libérer la nanoparticule sous l'effet d'un champ électrique, ou bien utiliser les nanoparticules comme simple vecteur de principe actif comme dans le cas de la Lodamine, anticancéreux qui inhibe la vascularisation des cellules tumorales. Voilà seulement quelques exemples de leurs utilisations potentielles.

Pour fixer maintenant les idées, voici quelques chiffres concernant leur production : 10 000 *t/an* de dioxyde de titane pour le bâtiment et la cosmétique ; 200 000 *t/an* de dioxyde de silice pour renforcer le caoutchouc, comme acidifiant dans l'agroalimentaire ou abrasif dans les dentifrices ; 240 000 *t/an* de noir de charbon pour les pneumatiques (70% de la production), les encres et le caoutchouc ; 500 000 *t/an* d'alumines ( $Al_2O_3$ ) pour l'éclairage et le polissage.

Les nanoparticules sont des particules dont les trois dimensions sont inférieures à 100 *nm*. A titre de comparaison, le diamètre d'une molécule d'ADN varie entre 2 et 12 nanomètres, celui d'un globule rouge vaut 5000 nm et celui d'un cheveu humain de 10000 à 50000 nm. Du fait de leur taille, les nanoparticules s'agrègent à l'état de poudre sèche en quelques secondes sous forme d'agrégats nanostructurés à cause des fortes interactions. La stabilisation des nanoparticules (vis à vis de l'agrégation) est plus facile à réaliser en milieu liquide en modifiant les conditions physico-chimiques (pH, ...) et/ou par l'ajout d'agents dispersants.

De nombreux procédés sont susceptibles de produire des nanoparticules soit par une approche ascendante (les nanoparticules sont construites atome par atome ou molécule par molécule), soit par une approche descendante (les nanoparticules sont produites par fractionnement d'un matériau microstructuré). Parmi les méthodes ascendantes, on peut citer les procédés de synthèse en phase gaz (la condensation, l'ablation par laser pulsé, la pyrolyse spray, la synthèse par plasma thermique, ...),

les procédés de synthèse en phase liquide comme la précipitation ou la réaction en milieu confiné et enfin les procédés de synthèse en phase solide comme la précipitation de métaux au sein d'un verre ou d'une matrice polymère. Parmi les procédés par méthode descendante, le broyage est apparu comme l'un des moyens les plus efficaces et l'un des plus facilement extrapolables à l'échelle industrielle. La technologie des broyeurs à billes agités s'est avérée être particulièrement intéressante pour la production de nanoparticules en suspension concentrée. Elle constitue une alternative possible aux procédés de précipitation dans le cas de produits naturels ou de produits synthétiques pas ou peu solubles en solution aqueuse. La présentation du procédé de broyage à l'aide de la technologie des broyeurs à billes, support de ce travail de doctorat, fait l'objet du paragraphe suivant.

## 1.2 Présentation du broyeur à billes agité

La chambre des broyeurs à billes agités est généralement une cuve cylindrique, au centre de laquelle se trouve un agitateur de géométrie variable, formé soit d'hélices, d'anneaux, de disques pleins, crantés ou troués. La paroi interne de la chambre de broyage peut également comporter des chicanes. Sur la figure 1.1 est schématisé un broyeur à billes agité de laboratoire (Drais Perl Mill PML V/H). Sur ce dispositif, l'agitateur est composé de quatre disques perforés montés sur un arbre d'agitation et la chambre est dépourvue de chicanes. Grâce à un jeu de poulies, plusieurs vitesses de rotation sont possibles entre 2000 et 4000 *tr/min*. L'agitateur met en mouvement des billes de broyage qui occupent entre 70 et 85% du volume apparent de la chambre de broyage ainsi que la suspension à traiter. Les billes de broyage peuvent être en verre, en alumine ou en céramique. Les particules à broyer sont pré-dispersées dans un liquide et la suspension homogène alimente le broyeur grâce à une pompe. Le liquide porteur est fréquemment de l'eau, avec ou sans additifs, mais d'autres fluides peuvent également être utilisés en fonction des applications industrielles (alcool, acétone, ...). La concentration en solide dans la suspension varie entre 5 et 50% en volume. L'opération de broyage s'effectue en mode discontinu (batch) ou en continu. Le mode batch est surtout utilisé en laboratoire pour des essais de formulation. Industriellement, le broyeur fonctionne en continu. Un système de séparation en sortie de la chambre de broyage, constitué par une fente de séparation ou une cartouche tamisante, permet d'évacuer la pulpe broyée tout en maintenant les billes de broyage à l'intérieur de la chambre. Lorsque la finesse du produit souhaitée est faible, plusieurs passes sont nécessaires. Le broyeur fonctionne alors en mode pendulaire (avec deux cuves qui alternativement assurent l'alimentation et le recueil du produit en sortie) ou en recirculation (le produit en sortie est renvoyé dans la cuve d'alimentation). Sur les broyeurs à billes récents, la cuve de broyage est positionnée horizontalement ou verticalement ; elle est fermée, évitant tout risque d'évaporation ou de contamination par l'air ambiant. De plus, les chocs entre billes et la fragmentation des particules induisent un échauffement important rendant le refroidissement de la pulpe nécessaire. Il s'effectue soit grâce à la circulation d'un fluide frigorigène dans la double enveloppe de la chambre, soit par passage dans un échangeur de chaleur externe lors d'un fonctionnement en recirculation.

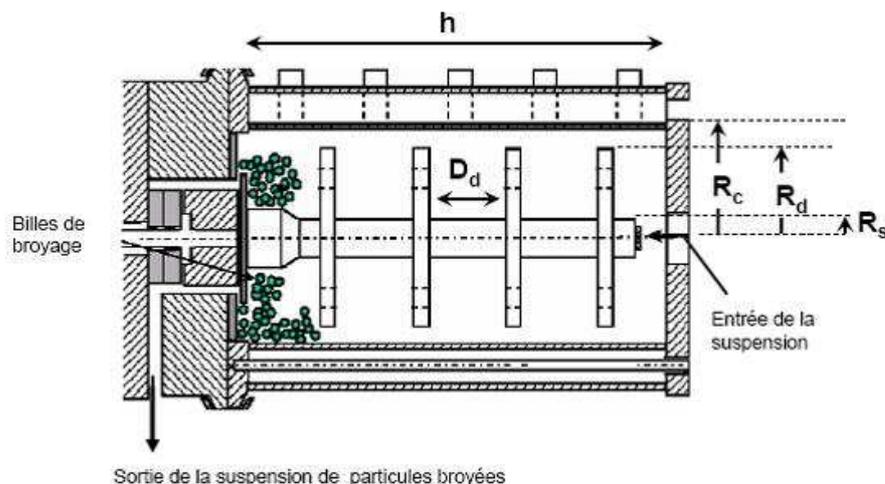


FIG. 1.1 – Schéma d'un broyeur à billes agité, ici un *DraisPerlMillPMLV/H*.

### 1.3 Les limitations du procédé de nanobroyage

Le broyeur à billes agité affiche ainsi de très bonnes performances en terme de production de particules submicroniques. Mais la production de nanoparticules ( $< 100nm$ ) s'avère encore difficile, du fait de l'effort énergétique considérable qu'il faut exercer, de l'usure importante des billes de broyage, de la contamination du produit qu'elle génère et enfin de la nécessité de stabiliser la suspension au cours du procédé de réduction de taille. Les limitations du procédé peuvent être classées en trois catégories : mécanique, physico-chimique et hydrodynamique.

#### Le facteur mécanique

Le facteur mécanique intervient dans la capacité des particules à résister au broyage. Il apparaît aussi dans la résistance à l'usure des billes de broyage soumises à une agitation intense dans la chambre de broyage. Les propriétés mécaniques comme la dureté (échelle de Mohs) ou l'élasticité des particules et des billes influent sur le procédé de fragmentation. Par ailleurs, de nombreux travaux ont montré qu'il existait une taille minimale en deçà de laquelle il n'était plus possible de fragmenter les particules.

**Taille limite théorique de rupture d'un matériau :** Schönert (1988) prédit que l'on est confronté à une taille minimale de fragment comprise entre 10 et 100  $nm$  pour des matériaux fragiles. Sa prédiction se fonde sur une estimation de la distance  $\delta$  entre deux fissures au sein du matériau :

$$\delta = 0.4 \frac{WE_b}{\sigma_y^2} \quad (1.1)$$

où  $W$  est l'énergie qu'il faut fournir pour qu'une fissure se propage,  $E_b$  le module de Young du matériau et  $\sigma_y$  la contrainte seuil. A titre d'exemple, les particules d'alumine utilisées par Stenger et al. (2005a) se fissurent au delà de  $5J/m^2$  et pour une contrainte seuil de  $9 GPa$ . Leur module de Young valant  $400 GPa$ , on doit donc

pouvoir obtenir des particules légèrement inférieures à 10  $nm$ . Ce n'est qu'une valeur théorique puisque une distance entre deux fissures n'est pas équivalente à une taille de fragment. Dans le cas des matériaux ductiles, la limite théorique de rupture est fortement relevée, aux environs de  $1\mu m$  d'après Schönert (1988).

Par ailleurs, Walker et al. (1937) ont explicité une "loi générale de broyage". Cette loi relie l'énergie spécifique nette  $E_s$  ( $kW.h/t$ ) fournie par l'agitateur à la taille caractéristique des particules broyées  $D_p$  (en général le diamètre moyen) :

$$dE_s = -k \frac{dD_p}{D_p^n} \quad (1.2)$$

où  $k$  est une constante dépendant du broyeur et du matériau à broyer et  $n$  un indice lié au régime de fragmentation. Elle traduit simplement le fait que plus l'agitateur transmet d'énergie à la suspension, plus les particules recueillies sont petites. En intégrant l'équation précédente sur  $D_p$ , on obtient l'énergie spécifique  $E_s$  telle que :

$$E_s = \frac{k}{n-1} \left( \frac{1}{D_{m,p}^{n-1}} - \frac{1}{D_{m,b}^{n-1}} \right) \quad (1.3)$$

où  $D_{m,p}$  et  $D_{m,b}$  signifient respectivement diamètre moyen des particules et diamètre moyen des billes de broyage. En faisant l'hypothèse que la taille caractéristique des billes est bien supérieure à celle des particules, soit  $D_b \gg D_p$ , la taille moyenne finale des particules s'écrit :

$$D_{m,p} = \left( \frac{k}{(n-1)E_s} \right)^{1/(n-1)} \quad (1.4)$$

Cette théorie, bien que simpliste en apparence, prédit assez bien la taille des particules en fin de broyage (He et al., 2005 ; Kwade et al., 1996).

**Usure des billes** L'usure des billes est un problème crucial. En effet, les billes de broyage subissent aussi les conséquences des collisions. Déformations, vibrations et échauffement se conjuguent pour les endommager. Des éclats de billes, créés par abrasion ou fragmentation, peuvent se retrouver parmi les fragments de particules et polluer la suspension. Pour de nombreuses applications industrielles, la contamination par les billes peut avoir un effet très négatif sur la qualité du produit, en terme de pureté et/ou de propriétés fonctionnelles. Le choix du matériau constitutif des billes est ainsi parfois déterminé en fonction de l'application industrielle, comme par exemple, pour la production d'actifs pharmaceutiques pour laquelle la toxicité des produits formulés n'est évidemment pas admissible. Le phénomène d'usure s'amplifie à mesure que la vitesse de l'agitateur augmente mais semble diminuer lorsque le volume de la chambre de broyage augmente (Mende et al., 2004). Il suffit pour le quantifier de peser la masse totale des billes avant et après broyage. Becker et Schwedes (1999) ont montré que l'usure des billes dépend de leur structure minérale : des billes composées majoritairement d'alumine et formées à partir de cristaux de  $1.5\mu m$  résistent mieux à l'abrasion que les mêmes billes faites de cristaux plus gros. Dans cette étude, les auteurs ont également constaté que la suspension peut attaquer les billes. Par exemple, une bille en acier dans de l'eau conduit à la formation de dihydrogène  $H_2$  et d'un oxyde de fer  $Fe_2O_3$ . La présence de ce gaz modifie alors

l'hydrodynamique dans le broyeur et crée une zone dans laquelle aucune particule ne peut plus être broyée. Mais quelle que soit la structure des billes, leur usure dépend avant tout de la viscosité de la suspension (Mende et al., 2004) : en effet, une forte viscosité limite la violence des collisions en ralentissant les billes en mouvement. On peut supposer qu'un ralentissement de la vitesse des billes au moment de la collision entraîne une diminution de la probabilité de rupture, mais peut-être également une réduction de l'efficacité du broyage. C'est pourquoi il est primordial de contrôler les propriétés de la suspension.

### **Le facteur physico-chimique : stabilisation de la suspension**

Effectivement, la production de fragments de taille inférieure au micromètre fait entrer en jeu de nouvelles forces : mouvement Brownien si les fragments ont une taille comparable à la dimension des molécules constituant la suspension, mais aussi et surtout des forces interparticulaires. Les effets des forces attractives de Van Der Waals et des forces répulsives de type électrostatique sont modélisés par la théorie DLVO ou théorie de Derjaguin, Landau, Verwey and Overbeek. Ces forces sont d'autant plus influentes que les impacts entre billes de broyage produisent une énergie suffisante pour modifier la répartition des charges électriques à la surface des particules, voire changer la structure du réseau cristallin des particules.

Maîtriser les forces attractives permet alors de limiter la réagglomération des fragments nouvellement créés. On essaye ainsi de maîtriser trois processus : une augmentation de la viscosité de la suspension, une sensibilité accrue à la force centrifuge et une perte d'énergie inutilement dissipée à briser des agglomérats qui ne devraient pas exister.

Le contrôle s'exerce au moyen d'additifs et de dispersants en quantité raisonnée. Les additifs utilisés agissent par effet électrostatique ou stérique. Ainsi les adjuvants permettant de modifier la force ionique ou le pH du milieu, et donc le potentiel  $\zeta$  des particules, agissent par effet électrostatique en renforçant la barrière de potentiel répulsive. L'ajout de polymères s'adsorbant à la surface des particules permet au contraire une répulsion par effet stérique. Dans le cas de polymères chargés, les deux mécanismes de répulsion électrostatique et stérique interviennent simultanément ; on parle alors d'effet électrostérique. La figure 1.2 illustre les écarts de performance en terme de broyage selon la valeur du pH dans le cas du dioxyde d'étain concentré à 13% massique : la taille moyenne finale des particules est dix fois plus petite pour un pH de 5 que pour un pH de 11.

La stabilisation par effet stérique ou électrostérique est parfois préférée à la stabilisation électrostatique car elle permet de conserver l'état de dispersion des particules dans la suspension sur de plus longues durées. Les interactions entre les polymères ajoutés et la suspension étant complexes, la nature du polymère et la quantité nécessaire pour assurer la stabilisation des suspensions broyées doivent être soigneusement déterminées. La figure 1.3 illustre l'évolution de la taille moyenne des particules de carbonate de calcium obtenue au cours du temps de broyage, en présence de polyacrylate de sodium (de masse molaire 5100 *g/mol*), pour différentes concentrations du polymère par rapport à la concentration de carbonate de calcium (Garcia et al., 2003). Dans tous les cas, l'ajout doit être raisonné car, comme He et al. (2005) l'ont décrit, un excès d'additifs pourrait adhérer aux billes de broyage, voire créer des ponts entre billes et particules, ce qui est fort pénalisant pour le procédé.

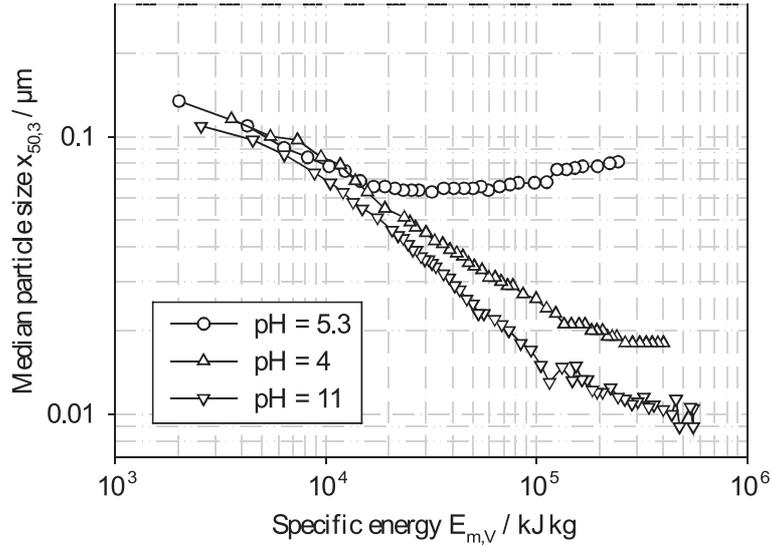


FIG. 1.2 – Influence du pH sur le broyage de  $\text{SnO}_2$  ( $c_m = 0.13$ ) par des billes de  $\text{ZrO}_2(\text{Y}_2\text{O}_3)$  de  $400 \mu\text{m}$  de diamètre pour une vitesse tangentielle en bout de pale de  $10 \text{ m/s}$  d'après Stenger et al. (2005b).

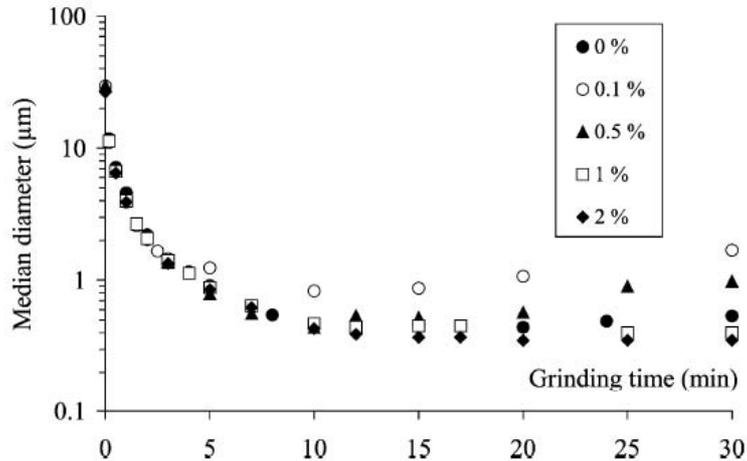


FIG. 1.3 – Diamètre moyen des particules en fonction du temps de broyage pour différentes concentrations de polyacrylate de sodium d'après Garcia et al. (2003).

En concentration optimale, les additifs permettent d'augmenter la concentration massique en particules (Stenger et al., 2005b) mais dans une certaine mesure seulement : la taille moyenne des fragments diminue pour une énergie spécifique donnée mais la viscosité croît si rapidement que l'agitateur s'arrête de lui-même car la pompe n'a plus la puissance nécessaire pour faire pénétrer la suspension dans le réacteur.

## Le facteur hydrodynamique

Le facteur hydrodynamique intervient à deux échelles : celle du broyeur et celle de la collision entre billes. En effet, de par son caractère multiphasique et tridimensionnel, de par la géométrie dans laquelle il évolue, l'écoulement dans le broyeur est extrêmement complexe. Or l'efficacité du procédé dépend de la quantité de particules qui traversent les zones où les mécanismes de réduction de taille sont les plus intenses. Il est donc important de connaître l'étendue spatiale de ces zones en fonction des paramètres du procédé.

De plus, à l'échelle de la collision, le fluide arbitre l'efficacité du procédé : en dissipant peu l'énergie des billes de broyage qui se choquent (faible viscosité par exemple), il laisse à ces dernières beaucoup d'énergie pour casser les particules en suspension mais il favorise en même temps le départ des particules de la zone de contact. Au contraire, si la viscosité est importante, les billes présentent au moment de l'impact une énergie trop faible pour briser les particules que le drainage du liquide n'a pas éjectées. Le compromis est donc difficile à trouver d'autant plus que les facteurs hydrodynamique et physico-chimique se conjuguent. Très peu de travaux de la littérature sont relatifs à l'effet de l'hydrodynamique sur la limitation du procédé de nanobroyage. Nous présentons dans le paragraphe 1.6 les rares travaux de simulation du broyeur qui ont permis de décrire la structure de l'écoulement dans la chambre de broyage.

## 1.4 Paramétrisation du broyage

De nombreux paramètres peuvent influencer la performance du procédé. Ces paramètres sont relatifs à la géométrie du broyeur (volume de la chambre  $V_c$ , géométrie de la chambre et de l'agitateur), aux conditions de fonctionnement (vitesse de rotation de l'agitateur  $N$ , durée de l'opération  $t$  ou temps de séjour des particules dans le broyeur), aux propriétés des billes de broyage (module d'Young  $E_b$ , masse volumique  $\rho_b$ , taille des billes  $D_b$ , taux de remplissage  $\phi$ ), aux propriétés des particules et de la suspension (module d'Young des particules  $E_p$ , taille des particules  $D_p$ , concentration en particules dans la suspension  $c_v$  ou  $c_m$ , masse volumique et viscosité de la suspension). Des études expérimentales ont permis d'établir que trois grandeurs seulement suffisaient à appréhender l'efficacité du procédé : le nombre de collisions  $SN$  ou *Stress number*, l'énergie reçue par une particule piégée entre deux billes de broyage  $SI$  ou *Stress Intensity*, et l'énergie spécifique  $E_s$  qui représente l'énergie totale servant à fracturer les particules (Kwade et Schwedes, 2002).

**Stress Number et Stress Intensity.**  $SN$  représente le nombre de chocs efficaces dans tout le broyeur. On entend par choc efficace un choc qui donne lieu à la capture d'au moins une particule, voire à sa fracture. Il est proportionnel au nombre de collisions entre billes  $N_c$ , à la probabilité de capture d'une particule entre deux billes  $P_s$  et au nombre de particules en suspension  $N_p$  tel que :

$$SN = \frac{N_c P_s}{N_p} \quad (1.5)$$

$N_c$  est estimé à partir du nombre de révolutions de l'agitateur  $N$  ( $s^{-1}$ ), du nombre de billes de broyage  $N_b$ , du temps de broyage  $t$  ( $s$ ), du volume de la chambre de

broyage  $V_c$  ( $m^3$ ), du diamètre des billes  $D_b$ , de la porosité du réseau de billes  $\epsilon$  et du ratio volume de billes sur volume de la chambre de broyage  $\phi$  de sorte que :

$$N_c \propto NtN_b \propto Nt \frac{V_c \phi (1 - \epsilon)}{\frac{\pi D_b}{6}} \quad (1.6)$$

La probabilité de capture  $P_s$  est supposée simplement proportionnelle au volume de fluide séparant deux billes au moment de la collision, aussi appelé volume actif (écriture symbolique car  $P_s$  sans dimension contrairement à  $D_b$ ) :

$$P_s \propto D_b \quad (1.7)$$

Elle devient proportionnelle au carré de  $D_b$  lors du broyage de microorganismes (fracture par cisaillement).

Enfin, le nombre de particules  $N_p$  peut s'exprimer en fonction du volume total des particules ou du volume  $V_c$ , du ratio  $\phi$ , de la porosité  $\epsilon$  et de la concentration volumique en particules de la suspension  $c_v$  :

$$N_p \propto \sum V_p \propto V_c [1 - \phi (1 - \epsilon)] c_v \quad (1.8)$$

$SN$  peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$SN = \frac{\phi (1 - \epsilon) Nt}{V_c [1 - \phi (1 - \epsilon)] c_v D_b^2} \quad (1.9)$$

Contrairement à  $SN$  qui est un nombre sans dimension,  $SI$  (aussi appelé Stress Energy  $SE$ ) est, à un facteur près, une énergie cinétique de collision.  $SI$  mesure l'énergie maximale qui peut être transmise à une particule comprimée entre deux billes de broyage impactant. Il est fonction du diamètre des billes de broyage  $D_b$ , de la masse volumique des billes  $\rho_b$ , de la vitesse la plus grande qu'on puisse trouver dans le broyeur, à savoir la vitesse tangentielle en bout de pale  $v_\theta$  ( $R_d$ ), et des modules de Young  $E_p$  et  $E_b$  respectivement des particules et des billes pour finalement donner :

$$SI = D_b^3 \rho_b v_\theta^2 (R_d) \quad (1.10)$$

dans le cas de particules moyennement dures ( $E_p \ll E_b$ ) et

$$SI = D_b^3 \rho_b v_\theta^2 (R_d) \left(1 + \frac{E_p}{E_b}\right)^{-1} \quad (1.11)$$

pour les particules très dures ( $E_p \simeq E_b$ ). Pour mémoire, plus le module de Young des particules est grand, plus elles sont rigides, plus les billes de broyage se déforment en les brisant et moins l'énergie cinétique des billes sert à fracturer les particules puisque dissipée par les mécanismes élastiques à l'oeuvre. Les billes de broyage sont ainsi généralement constituées de matériaux non-ductiles.

**L'énergie spécifique.** Enfin, troisième et dernier paramètre, l'énergie spécifique  $E_s$  exprime le rapport de l'énergie fournie au fluide par l'agitateur sur la masse des particules  $m_p$ . Elle s'écrit donc en fonction de la vitesse de rotation  $N$ , du couple  $C$  transmis par l'agitateur et de la durée du broyage  $t$  :

$$E_s = \frac{\int_0^t (C(\tau) - C(0)) 2\pi N d\tau}{m_p} \quad (1.12)$$

$E_s$  est donc aussi proportionnelle à l'énergie dissipée dans les collisions, soit au produit de  $SN$  et  $SI$  :

$$E_s \propto SN \times SI \quad (1.13)$$

En conséquence, à énergie spécifique constante, une augmentation de  $SI$  s'accompagne d'une diminution de  $SN$  et inversement. Par exemple, une hausse de  $SI$  due à une augmentation du diamètre des billes de broyage, se traduit par un nombre de contacts entre billes plus faible, donc par une baisse de  $SN$ . C'est pourquoi il existe des valeurs optimales de  $SI$  et  $SN$ . Si le Stress Intensity  $SI$  est supérieur à la valeur correspondant à la fracturation de plusieurs particules piégées dans la zone d'impact, le rendement chute puisque de l'énergie est inutilisée et que le nombre de chocs est trop faible. A l'opposé, si le nombre de chocs  $SN$  est trop grand, on abaisse l'énergie disponible pour chacune de ces collisions. Ainsi le  $SI$  détermine la finesse du produit broyé à énergie spécifique donnée (Kwade et Schwedes, 1997). La figure 1.4 met en évidence des valeurs optimales de  $SI$  vis à vis du diamètre moyen des particules  $x_{50,3}$  pour différentes énergies spécifiques, dans le cas du broyage d'alumine.

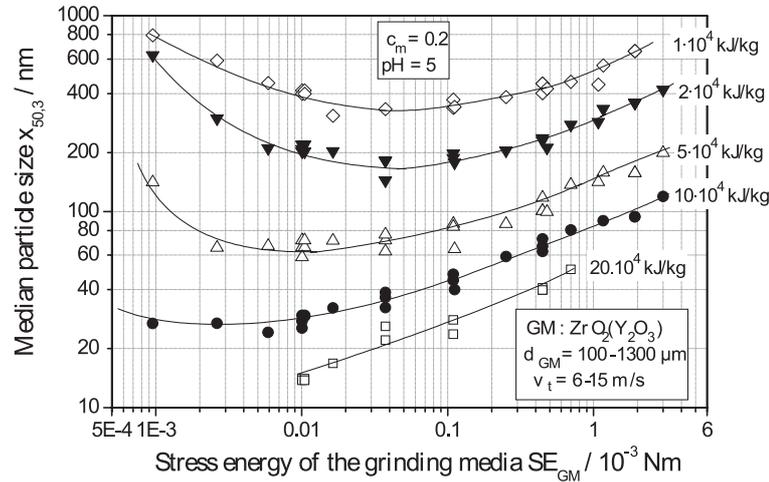


FIG. 1.4 – Evolution du diamètre moyen de particules d'alumine en fonction du  $SI$  (ou  $SE$ ) à énergie spécifique constante d'après Stenger et al. (2005b).

## 1.5 Influence des paramètres opératoires

Les meilleures performances atteintes dans un broyeur à billes agité, en terme de finesse, sont exposées dans Stenger et al. (2005a) et (2005b). Les auteurs font le point sur l'influence des principaux paramètres qui agissent sur l'efficacité du procédé, à savoir le diamètre des billes de broyage, la concentration massique de la suspension et la vitesse d'agitation. Pour cela, ces auteurs utilisent un broyeur d'une contenance de 1 litre. A titre d'exemple, la figure 1.5 montre l'influence de la taille des billes de broyage (billes en oxyde de zirconium stabilisé à l'yttrium) lors du broyage d'une suspension à 20% massique de particules d'alumine à pH 5. La figure présente l'évolution du diamètre médian des fragments en fonction de l'énergie spécifique pour une vitesse de rotation de l'agitateur de  $12 \text{ m/s}$  (vitesse en bout de pale). Pour une énergie spécifique donnée, la taille des particules est d'autant plus faible que la taille

des billes est faible. Cela est venu confirmer de très nombreux travaux antérieurs (voir par exemple Mende et al., 2004 qui déjà préconisaient l'utilisation de billes de broyage petites). Stenger et al. (2005a) ont ainsi obtenu une taille minimale de fragments d'alumine de  $9 \text{ nm}$  à partir de particules de  $600 \text{ nm}$  environ.

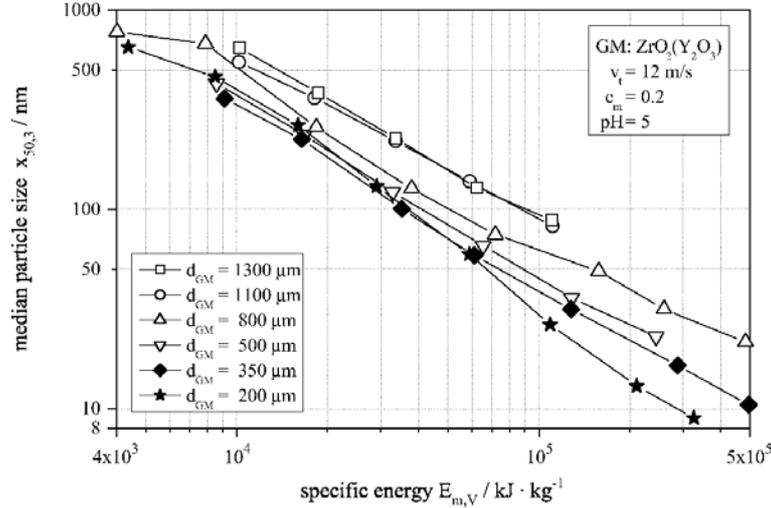


FIG. 1.5 – Influence du diamètre des billes de broyage sur le broyage de l'alumine d'après Stenger et al. (2005a).

Il faut cependant relativiser cette performance : l'énergie spécifique employée est importante ( $3 \cdot 10^5 \text{ kJ/kg}$ ), le temps de broyage est très long (au moins 64h) et les auteurs ne donnent pas d'indication sur le présence ou non d'éclats de billes en suspension, pollution fréquente quand l'agitation est trop forte. Stenger et al. (2005a) expliquent de plus avoir observé l'existence d'un changement de phase d'une partie des fragments d'alumine en gibbsite et bayerite. Reste que cette étude prouve qu'on peut produire des particules de  $10 \text{ nm}$  avec ce procédé grâce à l'emploi de billes de broyage de  $200 \mu\text{m}$ .

Intéressons nous maintenant à l'influence de la concentration massique  $c_m$  en particules dans la suspension. Un exemple très significatif est donné sur la figure 1.6. Il concerne toujours le cas de l'alumine broyée à  $\text{pH} = 5$ , avec deux concentrations massiques en particules différentes (10 ou 20%). Pour chacune des deux concentrations, différents diamètres de billes sont utilisés afin de faire varier l'intensité des collisions sans modifier la vitesse de l'agitateur, égale à  $12 \text{ m/s}$ . Une concentration en particules élevée accélère la diminution de taille des fragments concentration. On obtient ainsi des fractions plus fines à 20% qu'à 10%, à énergie spécifique égale. Toutefois, lorsque la proportion de fragments fins devient importante, la viscosité de la suspension augmente, et finit par devenir telle que l'arrêt de l'opération est nécessaire. Ce phénomène se produit d'autant plus vite que la concentration massique est plus élevée. Aussi, avec la plus faible concentration, une durée d'opération plus importante est possible, correspondant à des valeurs d'énergie spécifique plus élevées, et produit finalement des particules extrêmement fines : Stenger et al. (2005b) ont obtenu des fragments d'alumine de taille moyenne égale à  $5 \text{ nm}$ , en travaillant avec une concentration massique de 10% et pour une énergie spécifique d'environ  $10^5 \text{ kJ/kg}$ . Ainsi, l'influence de la concentration massique est

dictée par deux processus contradictoires (Frances, 2004). Plus la concentration est faible, plus la possibilité de capture de particules lors de la collision de deux billes diminue et donc le broyage est moins efficace. Mais plus la concentration massique est élevée, plus la viscosité est importante, ce qui peut maintenir les particules dans la zone active entre deux billes, mais aussi ralentir les billes, et à l'extrême, interdire tout écoulement dans la chambre de broyage. A nouveau, on est confronté au problème du contrôle des propriétés physico-chimiques des suspensions au cours du broyage, comme nous l'avons décrit dans le paragraphe 1.3.

La vitesse de l'agitateur est enfin un paramètre très important. En général, la ci-

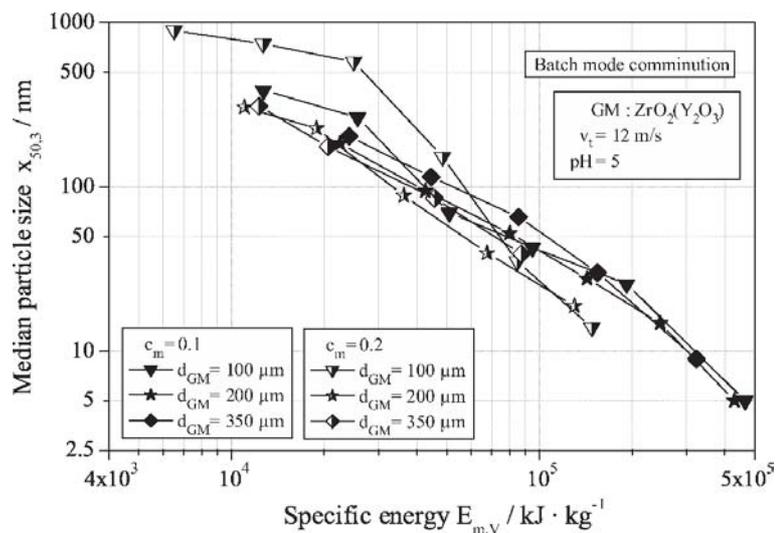


FIG. 1.6 – Influence de la concentration en particules sur le broyage de l'alumine d'après Stenger et al. (2005b).

nétiq ue de réduction de taille est d'autant plus rapide que la vitesse de rotation de l'agitateur est élevée (Frances, 2004). Toutefois, une vitesse de rotation plus élevée implique une énergie spécifique plus importante. Aussi, si on analyse l'évolution de la taille moyenne des particules au cours du broyage en fonction de l'énergie spécifique, avec différentes vitesses de rotation (voir par exemple la figure 1.7 relative au broyage de l'alumine), on observe à énergie spécifique donnée que la taille moyenne est d'autant plus faible que la vitesse d'agitation est faible, lorsque les billes de broyage ont un diamètre de 800 ou 1300  $\mu m$ . Il semble donc préférable de travailler à vitesse modérée, d'autant plus qu'une vitesse excessive entraîne une usure plus importante des billes et un échauffement de la suspension (BelFadhel et al. 1999). Par contre, lorsque l'on souhaite obtenir des fragments très fins, il est nécessaire de travailler avec des billes de très faible diamètre comme nous l'avons rappelé précédemment (fig. 1.5). Or dans ces conditions, une vitesse d'agitation trop faible ne permet pas d'apporter une énergie suffisante pour fragmenter les particules lors d'un choc unique. Plusieurs chocs sont alors nécessaires pour fragmenter les particules, ce qui se traduit pas des énergies dissipées plus fortes. Ainsi, dans le cas de l'alumine, on peut observer sur la figure 1.7 que la vitesse optimale est la plus élevée (15  $m/s$ ), mais pour des énergies spécifiques supérieures à  $3.10^4 kJ/kg$ , la tendance s'inverse légèrement, les meilleurs résultats s'obtenant pour des vitesses de plus en plus faibles. Les performances pour le broyage de dioxyde d'étain sont similaires :

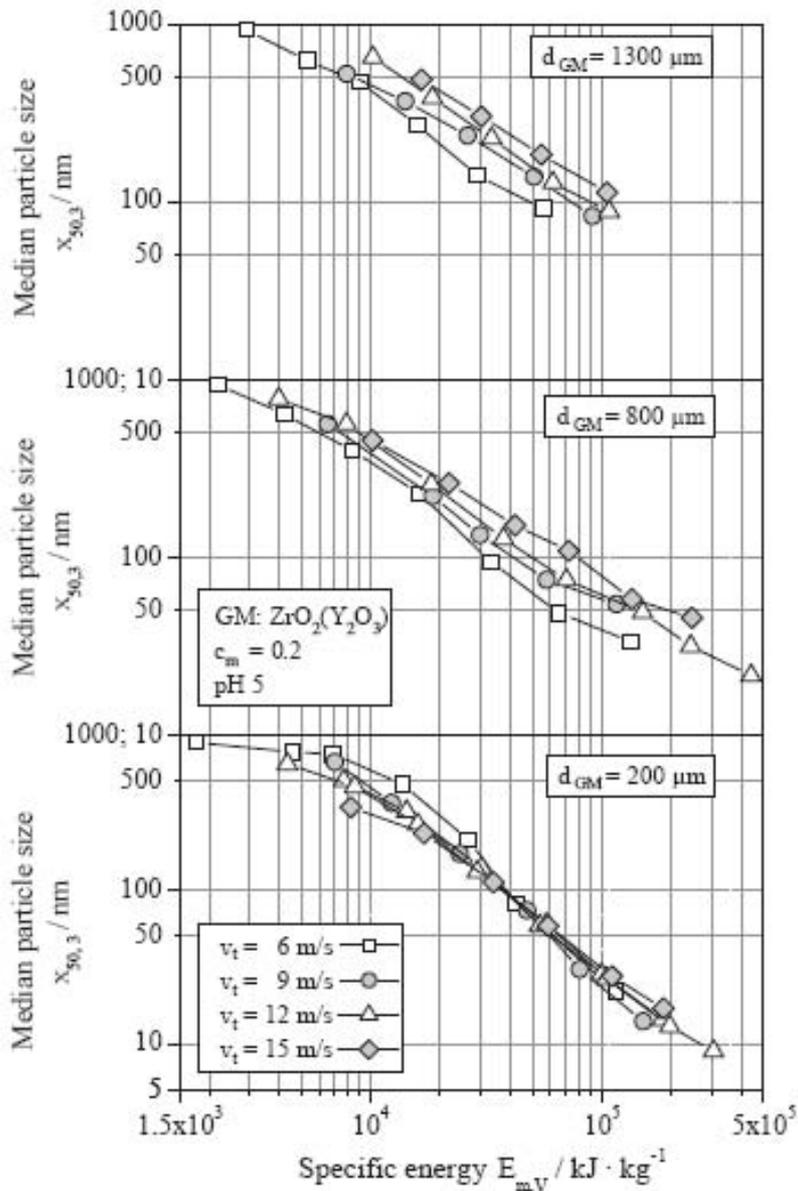


FIG. 1.7 – Influence de la vitesse de rotation de l'agitateur et de la taille des billes de broyage sur la taille des particules (Stenger et al., 2005b).

une vitesse en bout de pale de  $10 \text{ m/s}$ , un  $pH = 11$ , des billes de zirconium de diamètre  $400 \mu\text{m}$  et une concentration massique en particules de dioxyde d'étain de  $0.13$  permettent à Stenger et al. (2005a) d'obtenir un diamètre moyen final proche de  $10 \text{ nm}$ . Contrairement au cas de l'alumine, aucun changement de phase n'est observé. Cela montre à quel point chaque produit à broyer nécessite des conditions opératoires spécifiques.

## 1.6 Description de l'hydrodynamique dans la chambre de broyage

### L'approche numérique

Les simulations numériques ont été menées principalement pour expliquer l'influence de la géométrie du broyeur et de la vitesse de rotation de l'agitateur sur la structure de l'écoulement de la suspension, et par conséquent sur l'efficacité du broyage. A notre connaissance, aucune étude numérique ne s'est encore intéressée à l'étude du mécanisme de capture de particules au moment où deux billes de broyage s'impactent. Trois approches ont été développées : la simulation numérique directe d'un fluide équivalent, la méthode de simulation par éléments discrets (*Discret Element Method* ou DEM) et un modèle simplifié d'écoulement turbulent.

Les simulations numériques directes se basent sur la discrétisation des équations de Navier-Stokes. Du fait de la complexité du fluide réel composé d'un fluide porteur, des billes de broyages et des particules à broyer, seuls des écoulements de fluides équivalents monophasiques, newtoniens et incompressibles ont été étudiés. Les premiers résultats (Blecher et al., 1996 ; Blecher et Schwedes, 1996) ont concerné des écoulements laminaires. Theuerkauf et Schwedes (1999) et (2000) ont examiné des écoulements turbulents en fermant les équations de quantité de mouvement par le modèle  $k - \epsilon$ . Les équations utilisées par ces auteurs, dites équations de Reynolds, s'écrivent sous forme stationnaire et en coordonnées cartésiennes de la manière suivante :

$$\rho_f \bar{U}_i \frac{\partial \bar{U}_j}{\partial x_j} = -\frac{\partial \bar{P}}{\partial x_j} + \frac{\partial}{\partial x_i} \left( \mu_f \frac{\partial \bar{U}_j}{\partial x_j} - \rho_f u_i \bar{u}_j \right) + \rho_f g_i \quad (1.14)$$

où  $\bar{U}_i$  représentent les composantes du champ de vitesse moyen,  $\bar{P}$  la pression moyenne,  $x_j$  les coordonnées spatiales,  $u_i \bar{u}_j$  les moyennes du produit des fluctuations de vitesse encore appelées tensions de Reynolds,  $g$  l'accélération de la pesanteur,  $\mu_f$  et  $\rho_f$  la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide monophasique. Elles sont discrétisées par la méthode des volumes finis sur le domaine de calcul compris entre deux disques pleins, la paroi de la chambre de broyage et l'axe de l'agitateur (voir fig. 1.8).

Grâce à cette modélisation, la prédominance du mouvement de rotation par rapport au mouvement dans le plan radial-axial a clairement été mise en évidence. De plus, bien que les calculs surestiment de manière inégale la vitesse du fluide (à proximité de l'axe de l'agitateur notamment), Theuerkauf et Schwedes (1999) obtiennent des boucles de recirculation dans le plan radial-axial pour un nombre de Reynolds de 2000 (voir fig. 1.9) et de 16000 (voir fig. 1.10). Ce nombre de Reynolds est construit à partir de la vitesse tangentielle en bout de pale  $V_\theta(R_d)$ , du rayon du disque  $R_d$ , et des propriétés du fluide  $\mu_f$  et  $\rho_f$  tel que :

$$Re = \frac{\rho_f R_d V_\theta(R_d)}{\mu_f} \quad (1.15)$$

Ces boucles de recirculation, ou encore courants secondaires, ont été confirmées au niveau expérimental par *Velocimétrie par image de particules ou PIV* (Theuerkauf et Schwedes (1999) et Theuerkauf et Schwedes (2000)) et par les simulations de Lane (1999). Elles résultent de l'expulsion du fluide à la surface du disque par les effets centrifuges et du mouvement opposé induit au milieu de deux disques pour assurer la conservation de la masse. Le nombre de Reynolds n'est pas le seul

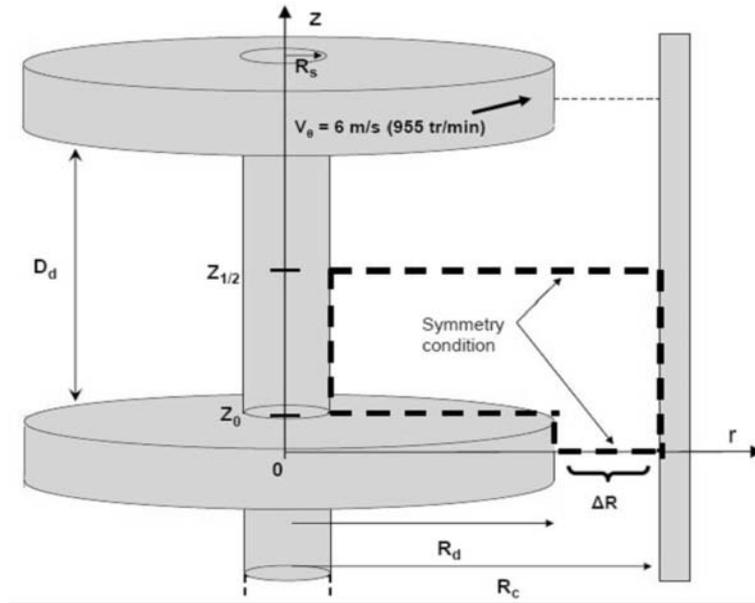


FIG. 1.8 – Domaine de calcul pour un broyeur à billes agité.

paramètre à contrôler leurs intensités. Il est en effet basé sur une seule dimension caractéristique ( $R_d$ ) et il est bien évident que l'écartement des disques  $D_d$  (voir figure 1.8) intervient également sur la structure de l'écoulement, tout particulièrement quand il est faible. Ainsi pour un espacement entre les disques inférieur à 15mm, les vortex ne se développent pas pour des vitesses tangentielles en bout de pale comprises entre 1 et 3.5 m/s ( $R_d = 25\text{mm}$  et  $\Delta R = 15\text{mm}$ ).

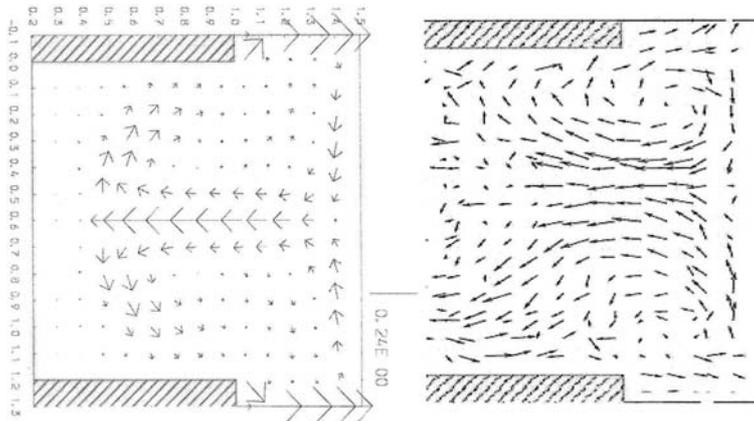


FIG. 1.9 – Boucles de recirculation obtenues numériquement à gauche et expérimentalement à droite par Theuerkauf et Schwedes (1999) pour  $Re = 2000$  ( $R_d = 25\text{mm}$  et  $V_\theta(R_d) = 2.6\text{m/s}$  soit  $\nu_f = 3.25 \cdot 10^{-5}\text{m}^2/\text{s}$ ).

Une zone morte autour de l'axe de l'agitateur apparaît à partir d'un nombre de Reynolds de 115 ( $V_\theta(R_d) = 0.15\text{m/s}$ ) et se développe à mesure que le centre du vortex se déplace vers la paroi de la cuve. Cette zone morte pourrait nuire au rendement du procédé en concentrant les fragments de particules qui sont moins

sensibles à la force centrifuge d'après Theuerkauf et Schwedes (1999).

La capacité de broyage de l'écoulement est due aux forts gradients de vitesse tangentielle en proche paroi de la cuve et à l'extrémité du disque (la vitesse y chute de 70% à  $Re = 8000$ ,  $V_\theta(R_d) = 2.6m/s$ ). C'est donc dans ces deux zones que l'on attend un nombre de chocs entre billes très important, synonyme d'une probabilité de piégeage des particules très élevée, d'autant que les gradients de vitesse axiale et de vitesse radiale y sont aussi les plus forts. En effet, elles sont le siège de la dissipation de 80 à 90% de l'énergie fournie par l'agitateur tout en ne représentant que 10% du volume total de la chambre de broyage. Les inhomogénéités induites par l'hydrodynamique sont donc potentiellement très limitantes. D'après Theuerkauf et Schwedes (2000), la vitesse tangentielle du fluide atteint seulement 30% de  $V_\theta(R_d)$  dans 80% du domaine à  $Re = 16000$ . Quant à la vitesse radiale, son maximum varie de 20% de  $V_\theta(R_d)$  lorsque  $Re = 8000$ , à 24% de  $V_\theta(R_d)$  lorsque  $Re = 16000$ . Parallèlement au calcul du champ de vitesse du fluide, le calcul de la trajectoire

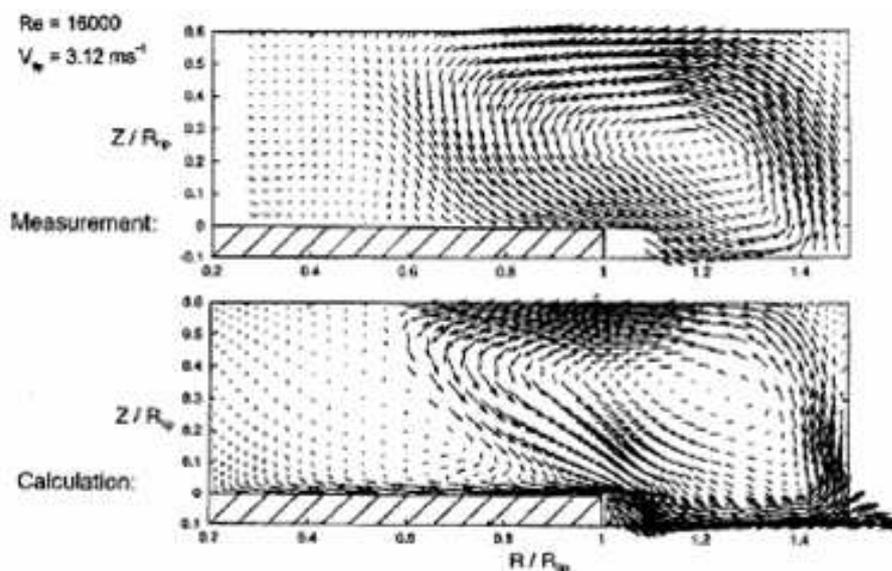


FIG. 1.10 – Boucles de recirculation obtenues numériquement (en bas) et expérimentalement (en haut) par Theuerkauf et Schwedes (2000) pour  $Re = 16000$  ( $R_d = 25mm$  et  $V_\theta(R_d) = 3.12m/s$  soit  $\nu = 4.875 \cdot 10^{-6}m^2/s$ ).

de billes isolées permet d'étudier sous quelles conditions les billes traverse les zones de forts gradients de vitesse dans lesquelles on suppose qu'ont lieu les collisions les plus efficaces, même si ces trajectoires ne tiennent pas compte de l'interaction avec d'autres billes. Ce type d'étude est présenté par Blecher et al. (1996) et Blecher et Schwedes (1996) en condition d'écoulement laminaire. Ils ont proposé de considérer un nombre adimensionnel  $M$  (pour "Motion Index") pour prédire si le mouvement d'une bille est contrôlé par la force de traînée ou par la force d'inertie.  $M$  s'écrit :

$$M = R_b^3 (\rho_b - \rho_f) v_\theta^2 (R_d) \frac{1}{R_d \mu_f^2} \quad (1.16)$$

D'après leur travaux, l'inertie domine la traînée au delà de  $M = 13.5$ . Ainsi, plus l'inertie de la bille est faible (petit diamètre ou faible masse volumique) plus elle suit

les lignes de courant et passe par les zones de forts gradients. Cela vient corroborer les analyses expérimentales qui ont démontré la nécessité d'utiliser des billes de 200 ou  $100\mu m$  pour obtenir des particules de quelques dizaines de nanomètres.

La seconde technique employée s'appuie sur une méthode plus récente qui a d'abord été développée pour l'étude des milieux granulaires secs : la DEM ou Discret Element Method. Elle consiste à modéliser les contacts entre les billes en mouvement, en chaque point de leur surface, par un ressort et un amortisseur dans la direction normale à la surface de la sphère et dans la direction tangentielle. Le ressort impose une répulsion en deçà d'une certaine distance tandis que l'amortisseur joue un rôle attracteur ou dissipateur. Sinott et al. (2006) et Cleary et al. (2006) l'ont appliquée en milieu sec à deux broyeurs verticaux dont l'agitateur est soit une hélice (tower mill), soit des barreaux portés par un axe ("pin mill"). Bien que la géométrie du broyeur diffère de celle d'un broyeur à billes agité et que nous nous intéressions au fonctionnement en voie humide, il est intéressant de noter leurs conclusions. Ces auteurs prédisent, à partir de simulations qui leur fournissent l'intensité de chaque choc au cours du temps, que les énergies liées au mouvement tangentiel sont les plus grandes (collisions créés par cisaillement) mais que les vitesses d'impact sont relativement faibles. Par conséquent le broyage des particules résulterait plus d'un mécanisme de cisaillement que d'impact.

La dernière approche a été développée par Eskin et al. (2005a et 2005b). Ces auteurs ne cherchent pas à décrire toutes les caractéristiques de l'écoulement réel, bien trop complexe. En effet, ils négligent les écoulements secondaires entre les disques du broyeur à billes agité devant l'écoulement turbulent tangentiel. Ils imposent en plus une variation linéaire de la vitesse tangentielle suivant le rayon. En considérant finalement que toute l'énergie fournie par l'agitateur est dissipée par viscosité turbulente et par les collisions entre billes, ils parviennent à estimer des vitesses relatives de collision entre billes, leurs fréquences de collision, leurs déformations, leurs localisations, la probabilité de capture des particules en fonction des propriétés des billes (masse volumique, diamètre), de la vitesse d'agitation et du rayon des disques. Par exemple, une bille en acier de  $200\mu m$  voit passer sa vitesse moyenne d'oscillation de 0.15 à presque  $0.5 m/s$  lorsque la vitesse d'agitation varie de 3000 à 9000 *tr/min*.

### Approche expérimentale

Nous avons vu quelques expériences qui ont permis de valider les écoulements d'un fluide seul. Or suivre le mouvement des billes s'avère indispensable. L'étude des trajectoires des billes peut se faire expérimentalement par *Vélocimétrie par suivi de particules* (ou *Particle Tracking Velocimetry en anglais*) à condition d'adapter le dispositif. Des billes opaques de 4mm de diamètre (Theuerkauf et Schwedes, 1999) ou de 3mm (Theuerkauf et Schwedes, 2000) mélangées à des billes transparentes de même diamètre ont été utilisées avec une chambre de broyage également transparente. Il faut noter que ce diamètre est relativement gros par rapport aux billes qui permettent la production de nanoparticules. Les auteurs ont pu vérifier que la vitesse tangentielle des billes proches du disque augmente avec le rayon, que cette vitesse croît avec le nombre de Reynolds de l'écoulement. De plus une rotation trop importante de l'agitateur peut conduire à une absence d'entraînement des billes par

le disque, surtout près de son extrémité.

Dans l'entrefer disque-paroi de 15mm, étant donné la taille des billes, seules trois billes peuvent avoir un mouvement circulaire. L'évolution de la vitesse tangentielle des billes est donc connue. La plus proche du disque tourne à 40% de  $V_\theta(R_d)$  et celle au centre à 20% lorsque  $V_\theta(R_d) = 0.6m/s$ . Si on suppose que la suspension a une viscosité proche de l'eau (le fluide utilisé par ces auteurs étant une huile de silicone dont on ne connaît pas la viscosité), cette vitesse correspond à un nombre de Reynolds des billes de 720 et 360 respectivement. Le doublement de la vitesse en bout de pale ( $V_\theta(R_d) = 1.3m/s$ ) diminue la vitesse relative des billes qui prend alors les valeurs suivantes : 35% près du disque, 15% pour celle du milieu et 5% pour la plus proche de la paroi de la cuve. La vitesse tangentielle absolue des billes à la surface du disque croît donc depuis la paroi de l'agitateur jusqu'à l'extrémité du disque mais de manière moins intense que la vitesse tangentielle du disque, puis diminue dans l'entrefer en perdant environ 30% de  $V_\theta(R_d)$  à l'entrée de l'entrefer, quelle que soit la vitesse en bout de pale. Le gradient radial de vitesse tangentielle est bien propice aux collisions. En ce qui concerne les vitesses tangentielles au milieu de l'espace inter-disque, là où se trouve la deuxième zone active près de la paroi de la cuve après celle qui entoure l'extrémité du disque, elles avoisinent les 10% de  $V_\theta(R_d)$  de manière assez uniforme.

Enfin, ces mêmes expériences reproduites pour des disques perforés par six trous circulaires ou bien pour la configuration d'un "pin mill" montrent une augmentation de ces vitesses tangentielles à cause de la circulation des billes à travers les trous.

### Approche théorique

Les informations précédentes, tant d'origine numérique qu'expérimentale, viennent conforter les prédictions de Kwade sur le mécanisme principalement responsable du broyage (Kwade, 1999). Kwade distingue trois mécanismes :

1. choc dans le plan radial-axial entre deux billes se dirigeant vers la paroi externe et qui se rattrapent avant d'atteindre l'extrémité du disque
2. écrasement par compression à la paroi de la cuve à cause de la force centrifuge
3. choc par cisaillement dans le plan orthoradial entre deux billes appartenant à des rayons de giration différents et ayant pour cette raison des vitesses tangentielles différentes

Kwade a estimé l'énergie qu'offrirait chacune de ces sources de fragmentation. Le mécanisme 1 développe une énergie potentielle spécifique  $E_{V,b}$  due à l'accélération  $r\omega_b^2$  de la bille depuis le rayon de l'agitateur  $R_s$  jusqu'au rayon du disque  $R_d$ .  $r$  est la position de la bille et  $\omega_b$  la fréquence de rotation où se trouve la bille.  $E_{V,b}$  s'écrit alors :

$$E_{V,b} = \frac{1}{V_p} \int_{R_s}^{R_d} V_b (\rho_b - \rho_f) r \omega_b^2 dr \quad (1.17)$$

$$= \frac{1}{2} \left[ 1 - \left( \frac{R_s}{R_d} \right)^2 \right] \left( \frac{R_b}{R_p} \right)^3 (\rho_b - \rho_f) v_b^2 \quad (1.18)$$

avec  $V_p$  le volume de la particule capturée,  $V_b$  le volume de la bille,  $\rho_b$  la masse volumique d'une bille,  $\rho_f$  la masse volumique du fluide et  $v_b$  la vitesse tangentielle

de la bille.

L'énergie se rapportant au mécanisme 2 peut s'exprimer à partir du rapport de la force centrifuge  $F_c$  sur la section  $A_p$  de la particule qui subit cette force telle que :

$$\frac{F_c}{A_p} = \frac{V_b (\rho_b - \rho_f) r \omega_b}{A_p} = \frac{4}{3} \left( \frac{R_b}{R_p} \right)^2 \frac{R_b}{R_d} (\rho_b - \rho_f) v_b^2 \quad (1.19)$$

Enfin, le calcul de l'énergie propre au mécanisme 3 utilise la différence d'énergie cinétique des deux billes qui s'entrechoquent  $\Delta E_c$  avec

$$\Delta E_c = \frac{1}{2} V_b \rho_b (v_{b,1}^2 - v_{b,2}^2) \quad (1.20)$$

puis suppose que le gradient de vitesse tangentielle de la bille équivaut à celui du fluide et suit une décroissance linéaire dans l'entrefer telle que

$$v_b = \frac{(R_c - l)}{R_c} v_{max} \quad (1.21)$$

où  $l = r - R_d$ ,  $R_c$  le rayon de la cuve, et  $v_{max}$  la vitesse maximale du fluide et de la bille à l'extrémité du disque. Si deux billes, positionnées en  $l_1$  et  $l_2$  ( $l_1 < l_2$ ), se percutent dans le plan orthoradial, alors les particules capturées reçoivent une énergie proportionnelle à l'énergie cinétique suivante :

$$\Delta E_{c,V} = \frac{1}{2} \left( \frac{R_b}{R_p} \right)^3 \rho_b v_{max} \left[ \left( \frac{R_c - l_1}{R_c} \right)^2 - \left( \frac{R_c - l_2}{R_c} \right)^2 \right] \quad (1.22)$$

Kwade applique ces expressions au cas du broyage de la calcite pour lequel Schönert (1988) fournit des énergies de fracturation expérimentales. Les valeurs utilisées sont les suivantes :  $R_d = 60mm$ ,  $R_s = 21mm$ ,  $\rho_b = 2894 kg/m^3$  (bille en verre),  $\rho = 1340 kg/m^3$  (suspension de calcite),  $v_{max} = 10 m/s$ ,  $l_1 = 1 mm$ ,  $l_2 = 1.2 mm$  (billes de  $200 \mu m$  de diamètre). Les résultats sont présentés sur la figure 1.11 où sont comparées les énergies de fracturation avec l'énergie développée par chacun des mécanismes. Il en ressort d'abord que le mécanisme 2 n'apparaît pas être suffisant pour fracturer des particules de calcite allant de 1 à  $100 \mu m$  avec un diamètre de bille de broyage variant de 200 à  $1500 \mu m$ , à moins que la pression exercée sur une particule ne soit pas le fait d'une bille mais d'un lit de billes. Auquel cas la fragmentation par compression peut quand même se produire.

Quant aux deux autres mécanismes ils présentent des énergies comparables et suffisantes. Mais leur impact respectif n'est pas le même : en effet, le choc par accélération dans le plan axial-radial (mécanisme 1) se produit moins souvent que le choc par cisaillement (mécanisme 3) dans le plan orthoradial du fait des rapports de vitesse dans les deux plans et du fait que le mécanisme 3 peut intervenir à chaque instant de la rotation d'une bille autour de l'axe d'agitation. Les chocs par cisaillement dans le plan orthoradial semblent donc principalement responsable du broyage dans le broyeur.

## 2 Etat de l'art sur le rapprochement de deux sphères

Comme le montre clairement la partie précédente, l'efficacité du broyage en voie humide se joue dans le mince film liquide qui sépare deux billes de broyage en

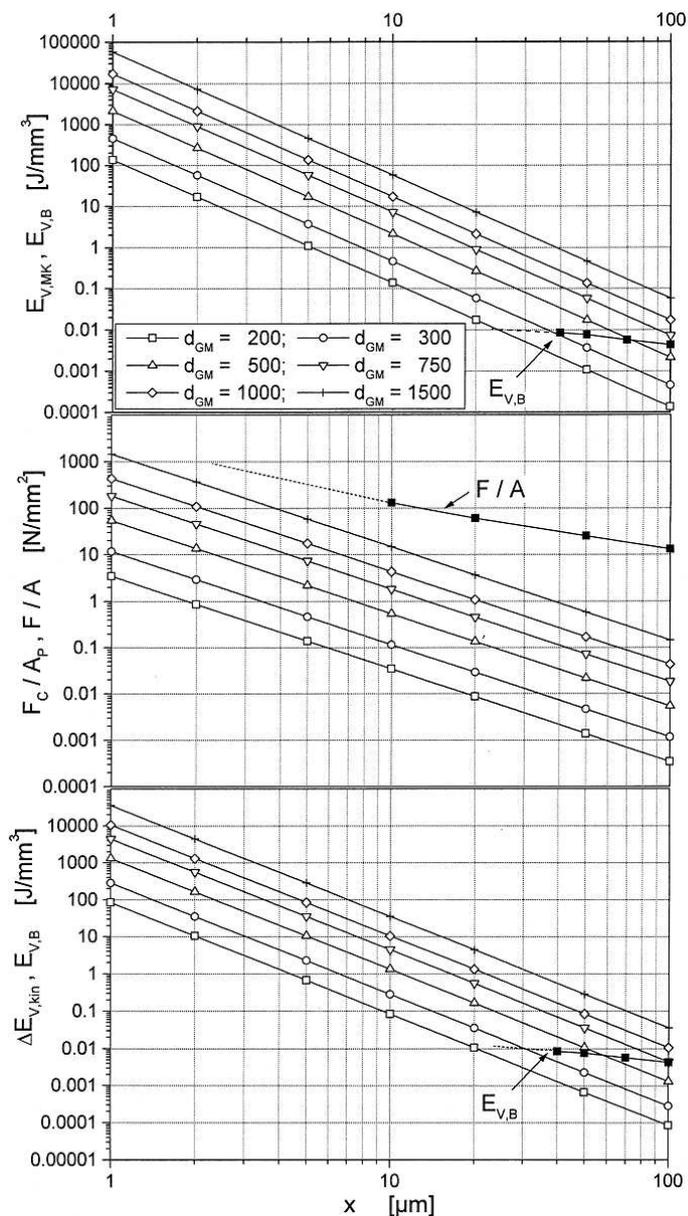


FIG. 1.11 – Confrontation des estimations théoriques avec des données expérimentales de l'énergie disponible lors d'un choc selon trois mécanismes : en haut, par accélération de l'une des billes dans le plan radial-axial ; au milieu, écrasement entre bille de section  $A$  et paroi dû à la force centrifuge  $F$  sur la paroi de la cuve dans le plan radial-axial ; en bas, choc par cisaillement dans le plan ortho-radial ( $r, \theta$ ) (Kwade, 1999).

mouvement relatif l'une par rapport à l'autre ou entre une bille et une paroi. Dans ce paragraphe nous examinons les principaux travaux qui se sont attachés à décrire l'écoulement de drainage, que ce soit entre deux sphères ou entre une sphère et une paroi, que le fluide soit newtonien ou non. Les résultats dont nous disposons ne sont valables qu'à condition que l'épaisseur du film liquide soit très inférieure au diamètre de la bille, hypothèse sans laquelle il est impossible d'aboutir à des prédictions analytiques du champ de vitesse et du champ de pression. Cette partie est organisée

comme suit : d'abord sont présentés les deux nombres adimensionnels qui décrivent de manière macroscopique une collision, puis nous abordons la modélisation de la force qui s'oppose au rapprochement des sphères pendant cette collision et enfin nous présentons comment cette force est prise en compte pour calculer la trajectoire des billes avant et après collision.

## 2.1 Caractérisation d'une collision par le nombre de Stokes et le coefficient de restitution

Toutes les études concernant le rapprochement de deux sphères s'accordent sur le fait que le critère le plus approprié pour analyser ce phénomène est le nombre de Stokes. C'est un nombre adimensionnel qui compare l'inertie de la bille au frottement exercé le fluide. Il s'exprime en fonction de la masse  $m_b$  de la bille, de la vitesse relative d'approche  $V_a$ , de la viscosité du fluide  $\mu_f$  et du rayon  $R_b$  de la sphère :

$$St = \frac{m_b V_a}{6\pi\mu_f R_b^2} \quad (1.23)$$

Il est lié au nombre de Reynolds  $Re$  de la sphère par le rapport de la masse volumique de la bille  $\rho_b$  et la masse volumique du fluide  $\rho_f$  :

$$St = \frac{2}{9} \frac{\rho_b V_a R_b}{\mu_f} = \frac{1}{9} \frac{\rho_b}{\rho_f} Re \quad (1.24)$$

Le nombre de Stokes peut s'interpréter comme un rapport entre le temps de relaxation visqueuse basé sur la traînée de Stokes  $m_b/(6\pi\mu_f R_b)$  et un temps d'advection caractéristique de la collision  $R_b/V_a$ . Mais le plus important pour notre étude, c'est qu'il prédit l'existence d'un rebond d'une bille totalement immergée, après contact avec un mur ou une autre bille, si sa valeur théorique dépasse 2.5 d'après les travaux de Davis et al. (1986) dans lesquels le contact est exclu, ou si sa valeur expérimentale dépasse 10 à 15 (Gondret et al., 1999; Zhang et al., 1999; Joseph et al., 2001; Gondret et al., 2002; Davis et al., 2002). Cette valeur critique  $St_c$  semble indépendante des propriétés élastiques (Joseph et al., 2001; Gondret et al., 2002) dans le cas d'une collision immergée, alors qu'elle augmente de manière inversement proportionnelle à l'élasticité d'une bille qui impacte un film liquide d'après Davis et al. (2002) (il faut fournir à la bille l'énergie pour rebondir qu'elle ne peut pas stocker sous forme élastique). Les travaux analytiques qui ont cherché à mettre en évidence l'influence d'une faible compressibilité du fluide sur le rebond (Barnocky et Davis, 1989; Kytömaa et Schmid, 1992), ne prévoient pas de rebond donc de nombre de Stokes critique sauf à considérer une compressibilité non linéaire.

Le nombre de Stokes permet enfin de mesurer l'influence de la force de lubrification. En effet, dans le cas d'une sphère impactant une plaque recouverte d'un film liquide, le nombre de Stokes critique augmente à mesure que la hauteur du film augmente. De même dans le cas d'une collision immergée, on observe qu'à un nombre de Stokes supérieur à 70 la phase de décélération de la bille due à la force de lubrification juste avant l'impact disparaît, et qu'au delà de 2000, le fluide n'a plus d'effet sur la collision d'après Cheung et al. (2001).

Le second nombre adimensionnel qui nous intéresse est le coefficient de restitution  $e$  :

$$e = \frac{v_r}{v_i} \quad (1.25)$$

où  $v_i$  est la vitesse de la bille avant le choc (vitesse incidente) et  $v_r$  la vitesse de la bille après le choc  $v_r$  (vitesse du rebond). Le coefficient de restitution permet de mesurer l'énergie qui a été perdue durant la collision. Si l'énergie de la bille est conservée, il vaut 1. On parle dans ce cas de collision parfaitement élastique : l'énergie cinétique de la bille est totalement transformée en énergie de déformation au moment du contact, énergie de déformation qui est ensuite à nouveau intégralement restituée en énergie cinétique lors du rebond. En pratique,  $e$  ne vaut jamais 1 du fait de la nature du support qui subit le rebond, des vibrations engendrées dans le support et dans la bille, et de la création de déformations plastiques au sein du matériau, auxquelles il faut ajouter le frottement visqueux si le choc se produit dans un liquide. Ainsi, plus la plaque sur laquelle rebondit une bille est épaisse, plus  $e$  est grand. En milieu sec, les valeurs expérimentales de  $e$  sont comprises entre 0.88 et 0.98 dans la mesure où les deux matériaux restent dans leur domaine élastique. Le nombre de Stokes et le coefficient de restitution sont évidemment liés : tous deux augmentent lorsque l'inertie de la bille est accrue. En conséquence, plus le nombre de Stokes  $St$  est grand, plus la valeur du coefficient de restitution d'une bille immergée  $e_h$  tend vers celle d'une bille en milieu sec  $e_s$ . Ces deux valeurs deviennent égales à partir d'un nombre de Stokes de 500 d'après Davis et al. (2002). Plus généralement, elles sont reliées de la manière suivante :

$$e_h = e_s \left( 1 - \frac{St_c}{St} \right) \quad (1.26)$$

si  $St > St_c$ .

Voyons maintenant comment modéliser la force que le fluide exerce sur les sphères et qui est responsable de la décroissance de la vitesse relative à l'approche de l'impact.

## 2.2 Elastohydrodynamique

L'élastohydrodynamique est la théorie qui étudie la dynamique du fluide comprimé entre deux sphères impactant et qui prend en compte la déformation de celles-ci durant la collision. Les fondements de cette théorie ont été posés par Davis et al. (1986). Au cours de leurs recherches sur l'amélioration de l'efficacité des filtres à particules, ils ont constaté que certaines particules rebondissaient sur la matrice de la membrane ou sur des particules déjà piégées. Cela les a conduit à étudier le rebond des billes sur des membranes enduites de colle et à modéliser un choc élémentaire entre deux billes. Nous en rappelons ici les grandes lignes. Puis, nous comparons l'expression des forces de lubrification, obtenue dans le cas d'un choc entre deux sphères immergées dans un fluide incompressible newtonien (théorie de Davis et al., 1986), ou dans un liquide obéissant à une loi de puissance, avec celle obtenue lors du rapprochement de deux plaques séparées par un fluide newtonien ou en loi de puissance. Quels que soient les types de chocs, la pression de disjonction est négligée.

### Expression de la force de lubrification dans un fluide newtonien incompressible

Commençons donc par la collision entre deux sphères immergées de rayon  $R_1$  et  $R_2$ , dont  $z_1$  et  $z_2$  sont les équations des surfaces respectives, et qui se déplacent l'une vers l'autre le long de leur ligne de centre avec une vitesse relative  $V_a$ . On

résout le problème en coordonnées cylindriques car l'écoulement est axisymétrique. L'écart minimal entre les deux sphères non déformées est appelé  $x(t)$  et l'écart entre les sphères déformées par la pression générée dans le fluide  $h(r, t)$  (voir fig. 1.12), où  $r$  est la coordonnée radiale nulle sur l'axe  $z$  qui passe par le centre des sphères et  $t$  la coordonnée temporelle.  $h(r, t)$  est alors modélisé en fonction de  $x(t)$ , de la déformation totale  $w(r, t)$  et du rayon réduit  $a = R_1 R_2 / (R_1 + R_2)$  pour les petites valeurs de  $r$  ( $r \ll R_1$  et  $r \ll R_2$ ) de la manière suivante :

$$h(r, t) = x(t) + \frac{r^2}{2a} + w(r, t) \quad (1.27)$$

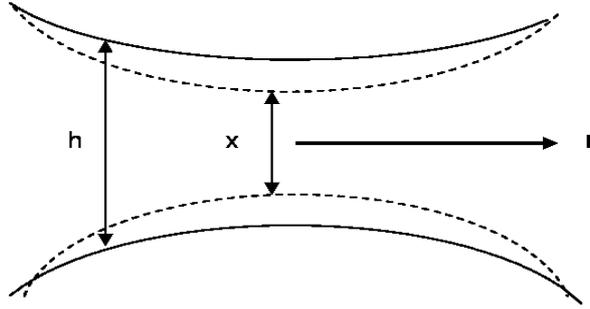


FIG. 1.12 – Représentation de l'entrefer  $x$  entre deux sphères non déformées et de l'entrefer  $h$  dans le cas de sphères déformables.

Remarquons que si  $R_1$  ou  $R_2$  est infini, on étudie le rapprochement entre une sphère et un plan. On suppose maintenant que  $w(r, t)$  est petit devant  $R_1$  ou  $R_2$  (hypothèse des petites déformations). Il existe donc une fonction de Green  $\phi$  solution des équations d'élasticité linéaire pour l'application d'un point force d'intensité 1 telle que :

$$w(r, t) = 4\theta \int_0^\infty f(y, t) \phi(r, y) dy \quad (1.28)$$

où  $f$  est la distribution surfacique de contrainte (ici la pression exercée par le fluide sur la surface des sphères),  $\theta$  un paramètre fonction des propriétés mécaniques des sphères (module de Young  $E_i$  et coefficient de poisson  $\nu_i$ ) tel que :

$$\theta = \frac{1 - \nu_1^2}{\pi E_1} + \frac{1 - \nu_2^2}{\pi E_2} \quad (1.29)$$

et  $\phi(r, y)$  une fonction telle que

$$\phi(r, y) = \frac{y}{y+r} K \left[ \frac{4ry}{(y+r)^2} \right] \quad (1.30)$$

où  $K$  est une intégrale elliptique. De plus, la durée de l'impact  $\tau$  étant bien plus longue que la période de vibrations des billes qui est proportionnelle au rapport du rayon de la sphère sur la célérité des ondes  $c$  dans le matériau, on néglige les ondes élastiques.  $\tau$  peut être estimé en milieu sec à partir de la théorie de Hertz :

$$\tau \propto \frac{a}{c^{4/5} V_0^{1/5}} \quad (1.31)$$

où  $V_0$  est la vitesse relative d'approche des deux sphères jusqu'à ce que la force de lubrification agisse.

Le mouvement du fluide est régi par les équations de continuité (eq. 1.32) et de quantité de mouvement projetées suivant les directions  $r$  (eq. 1.33) et  $z$  (eq. 1.34) dans lesquelles ont été annulés les termes en  $\theta$  et la gravité non prise en compte :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial (rv_r)}{\partial r} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (1.32)$$

$$\frac{\partial v_r}{\partial t} + v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_r}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial r} + \nu_f \left( \frac{\partial^2 v_r}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial r} + \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} - \frac{v_r}{r} \right) \quad (1.33)$$

$$\frac{\partial v_z}{\partial t} + v_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial z} + \nu_f \left( \frac{\partial^2 v_z}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_z}{\partial r} + \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} \right) \quad (1.34)$$

En considérant comme dans la théorie de la lubrification que l'espace entre les sphères est suffisamment petit ( $h \ll \min(R_1, R_2)$ ), ce qui revient à supposer que  $v_z \ll v_r$  et que  $\frac{\partial}{\partial r} \ll \frac{\partial}{\partial z}$ , les équations 1.33 et 1.34 se réduisent respectivement aux équations 1.35 et 1.36 suivantes :

$$\mu_f \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} = \frac{\partial P}{\partial r} \quad (1.35)$$

$$\frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (1.36)$$

Les équations 1.35 et 1.36, ainsi que les conditions aux limites sur les sphères ( $u_r(z = z_1) = 0$ ,  $u_z(z = z_1) = \frac{\partial h}{\partial t}$ ,  $u_r(z = z_2) = 0$ ,  $u_z(z = z_2) = 0$ ) conduisent au profil de vitesse radiale  $v_r$  :

$$v_r(r, z) = \frac{1}{2\mu_f} \frac{dP}{dr} (z - z_1)(z - z_2) \quad (1.37)$$

Finalement, en intégrant sur  $z$  l'équation de continuité 1.32 entre les deux surfaces après y avoir introduit l'expression de  $v_r$ , on obtient l'équation de Reynolds classique :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \frac{1}{12\mu_f r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ rh^3 \frac{dP}{dr} \right] \quad (1.38)$$

Le système d'équations constitué de l'équation de Reynolds et des deux équations suivantes :

$$\frac{dx}{dt} = -V_a(t) \quad (1.39)$$

$$m \frac{dV_a}{dt} = -F(t) = \int \sigma \cdot \vec{n} dS = 2\pi \int_0^\infty f(r, t) r dr \quad (1.40)$$

où  $F(t)$  représente la force totale exercée par le fluide sur les sphères et  $m$  la masse de la sphère en mouvement, ne peut être résolu analytiquement qu'avec des méthodes asymptotiques et seulement dans le cas où la déformation  $w$  est très petite devant l'entrefer  $x$ . La force de masse ajoutée est ici négligée. Ceci n'est vrai que dans un gaz. Dans ces conditions,  $h = x + \frac{r^2}{2a}$  et l'équation 1.38 donnent l'expression de la pression  $P(r, t)$  :

$$P(r, t) = \frac{3\mu_f a V_a}{\left(x + \frac{r^2}{2a}\right)^2} \quad (1.41)$$

qui, une fois intégrée sur la surface de l'une des sphères, fournit la force de lubrification  $F$  :

$$F(t) = 6\pi\mu_f a^2 \frac{V_a}{x} \quad (1.42)$$

On obtient ainsi une force de répulsion qui freine le rapprochement des sphères et augmente à mesure que l'entrefer diminue, jusqu'à diverger au moment du contact. Même si en pratique, elle ne diverge pas, elle peut atteindre plusieurs centaines d'atmosphères d'après Tabor (1949) et déformer fortement les sphères (ce qui pourrait être peut-être une source d'usure pour les billes de broyage). En combinant les équations 1.39 et 1.40 on peut déduire une relation entre la vitesse d'approche  $V_a$  et l'entrefer  $x$  :

$$\frac{V_a}{V_0} = 1 - \frac{1}{St} \ln \frac{x_0}{x} \quad (1.43)$$

où  $V_0$  et  $x_0$  sont respectivement la vitesse relative et l'entrefer au moment où la force de lubrification devient significative,  $St$  le nombre de Stokes ( $St = \frac{mV_0}{6\pi\mu a^2}$  ici) et la distance minimale d'approche :

$$\frac{x}{x_0} = \exp(-St) \quad (1.44)$$

A ce stade, la déformation s'obtient facilement et s'écrit :

$$w(r, t) = 12\mu_f \theta V_a \left(\frac{a}{x}\right)^{3/2} I\left(\frac{r}{\sqrt{ax}}\right) \quad (1.45)$$

avec

$$I(\xi) = \int_0^\infty \frac{\phi(\xi, \eta)}{1 + 0.5\eta^2} d\eta$$

Davis et al (1986) introduisent en plus un paramètre sans dimension  $\epsilon$  pour mesurer la déformabilité des sphères ( $\epsilon$  doit rester petit devant 1) tel que :

$$\epsilon = \frac{4\theta\mu_f V_0 a^{3/2}}{x_0^{5/2}} \quad (1.46)$$

En faisant varier les propriétés physiques des billes, ils concluent qu'à partir d'un nombre de Stokes de 5 la déformation des sphères n'est plus négligeable et qu'au delà, une loi de comportement du matériau est nécessaire. On peut voir pour  $\epsilon = 0.01$  et  $St = 5$  l'évolution temporelle du profil radial de la déformation sur la figure 1.13, l'évolution temporelle du profil radial de la pression sur la figure 1.14 et l'évolution temporelle de la force de lubrification sur la figure 1.15. Il est intéressant de noter d'après la figure 1.15 que le maximum de  $F$  ne correspond pas tout à fait à l'annulation de la vitesse relative entre les sphères et son changement de signe qui montre qu'elle devient attractive et s'oppose à l'éloignement de la sphère après le rebond. Ce rebond cause d'ailleurs une dépression brutale dans l'entrefer (voir fig. 1.14) qui génère un phénomène de cavitation si la pression descend en dessous de la pression de vapeur saturante.

Ainsi Davis et al. (1986) ont établi une théorie qui prévoit pour des sphères lisses impactant dans un fluide incompressible que l'augmentation du nombre de Stokes (donc de la vitesse d'impact) favorise la déformation et donc le rebond. Ce rebond apparaît pour un nombre de Stokes critique de 2.5. Cette théorie prédit également

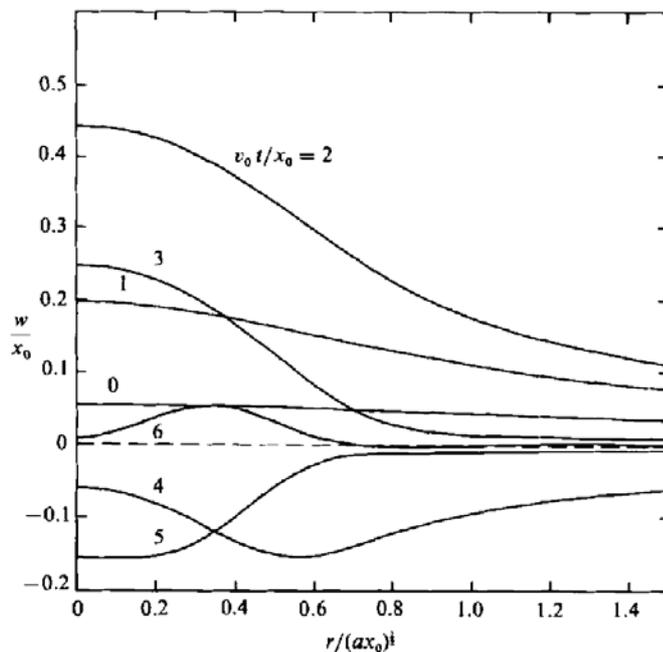


FIG. 1.13 – Evolution temporelle de la déformation  $w$  adimensionnée par l'entrefer  $x_0$  où commence à s'exercer la force de lubrification en fonction du rayon  $r$  adimensionné par le rayon réduit des sphères  $a$  et  $x_0$  pour  $\epsilon = 0.01$  et  $St = 5$  (Davis et al., 1986).

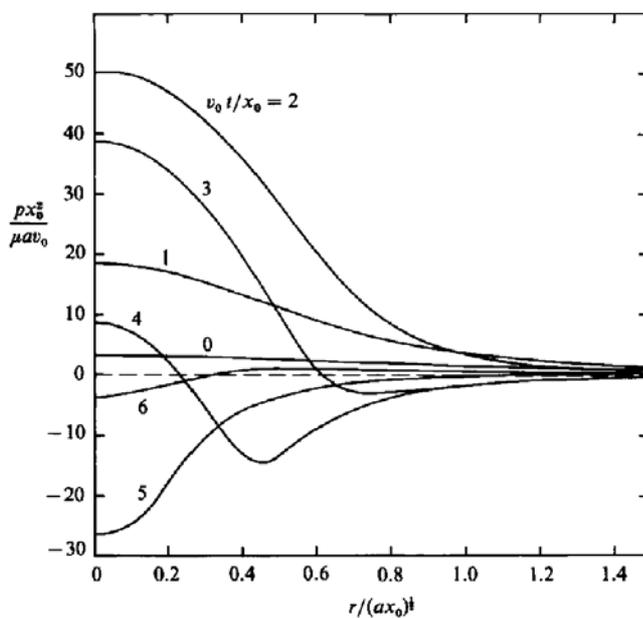


FIG. 1.14 – Evolution temporelle de la pression  $P$  adimensionnée par l'entrefer  $x_0$  et la vitesse relative  $V_0$  où commence à s'exercer la force de lubrification, la viscosité du fluide  $\mu$  et le rayon réduit des sphères  $a$  en fonction du rayon  $r$  adimensionné par le rayon réduit des sphères  $a$  et  $x_0$  pour  $\epsilon = 0.01$  et  $St = 5$  (Davis et al., 1986).

que l'entrefer minimum  $h_{min}$ , approximativement entre  $1/4$  et  $1/3$  d'une échelle élas-

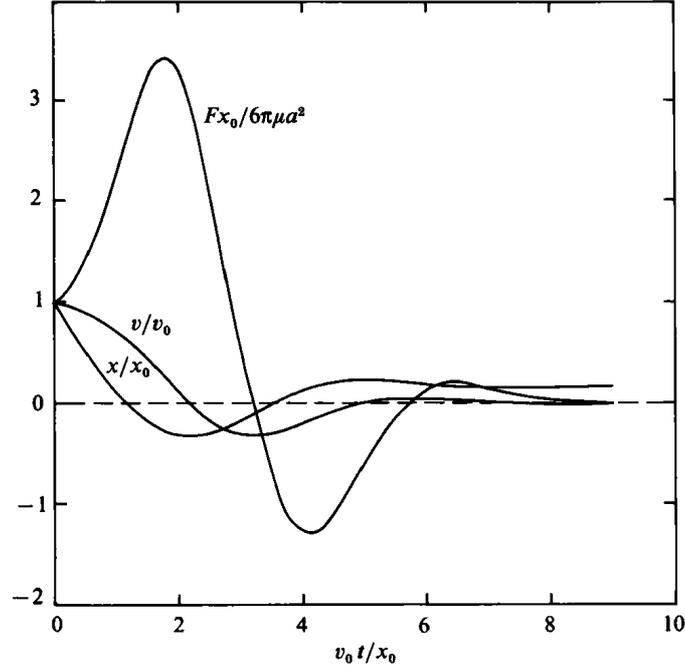


FIG. 1.15 – Evolution temporelle de la force de lubrification  $F$  adimensionnée par la traînée de Stokes en fonction du temps  $t$  adimensionné par l'entrefer  $x_0$  et la vitesse relative  $V_0$  où commence à s'exercer la force de lubrification pour  $\epsilon = 0.01$  et  $St = 5$  (Davis et al., 1986).

tique définie par  $x_1 = (4\mu V_0 R^{3/2}/\pi E^*)^{2/5}$  augmente quand le nombre de Stokes croît. Mais la force de lubrification diverge lorsque les sphères sont en contact, ce qui est contredit par l'expérience. Cela est dû en partie au fait qu'en réalité, le contact entre les sphères a lieu entre les plus grandes rugosités présentes à la surface de chacune d'elles. Ce contact, au delà d'opposer une résistance au mouvement de rapprochement, s'accompagne d'interactions de type London-Van der Waals d'après Barnocky et Davis (1989). Smart et Leighton (1989) et Joseph et al. (2001) confirment que  $h_{min}$  est de l'ordre de grandeur des rugosités. Il en résulte que la dissipation d'énergie mécanique se fait aussi par la déformation de ces aspérités, déformation qui peut modifier la trajectoire des billes. Cette hypothèse a servi de base pour une démarche analytique menée par Jenkins et Koenders (2005). Ces auteurs ont simplement considéré la présence de rugosités à la surface de chacune des sphères, rugosités traduites théoriquement par une couche poreuse d'épaisseur  $\delta$ , dont la surface est décrite par une fonction  $f(r)$ , dans laquelle la vitesse du fluide est modélisée classiquement par :

$$\frac{v_z}{\varepsilon} = -u = -\frac{k}{\mu_f \varepsilon} \frac{\partial P}{\partial z} \quad (1.47)$$

$$v_r = -\frac{k}{\mu_f} \frac{\partial P}{\partial r} \quad (1.48)$$

où  $k$  est une perméabilité,  $\varepsilon$  la porosité. Dans la couche de fluide intermédiaire entre les deux couches poreuses, le champ de vitesse est calculé à partir des hypothèses de lubrification et conduit à une expression similaire à l'équation 1.37 mais qui

respecte une condition de glissement et non plus d'adhérence à la surface des couches poreuses. En introduisant  $\sigma$  l'écart-type de la distribution gaussienne des aspérités,  $p$  un paramètre d'ajustement de l'ordre de 1,  $\alpha$  un paramètre d'environ 0.1,  $\Delta = \sigma / (p\sqrt{2})$ ,  $y = k^{1/2} / (\alpha\Delta)$ ,  $R$  le rayon des sphères,  $\bar{z} = z/h$  Jenkins et Koenders (2005) obtiennent une force de lubrification du type :

$$F = \frac{6\pi\mu_f\varepsilon u R^2}{h} \int_1^\infty \frac{\bar{z} - 1}{\bar{z}^3 + 3\frac{y\sigma}{ph\sqrt{2}}\bar{z}^2 + \frac{3}{2\sqrt{2}}\frac{\alpha^2 y^2 \sigma^3}{ph^3}} d\bar{z} \quad (1.49)$$

qui ne diverge pas quand  $\sigma/h$  tend vers 0. De même, dans le cas où deux disques plats se rapprochent,  $F$  s'écrit toujours d'après Jenkins et Koenders (2005) :

$$F = \frac{3\pi\mu_f\varepsilon u R^4}{8 \left( h^3 + 3\frac{k^{1/2}}{\alpha} h^2 + 3\delta k \right)} \quad (1.50)$$

On dispose donc d'outils théoriques qui modélisent la force de lubrification d'une manière réaliste.

### Influence des fortes variations de pression sur la viscosité

Quelle que soit la nature du fluide, on peut observer des variations de viscosité lorsque la pression augmente. Négligeable pour des variations de pression modérées, ce phénomène peut devenir important pour de fortes pressions. Il est donc logique d'examiner son influence lors des instants précédants l'impact. Barnocky et Davis (1989) ont repris les travaux de Davis et al. (1986) en y intégrant une loi de variation de la viscosité en fonction de la pression  $P$ , loi proposée par Chu et Cameron (1962) :

$$\mu = \mu_0 (1 + \eta P)^{16} \quad (1.51)$$

où  $\mu_0$  est la viscosité à pression ambiante et  $\eta$  un coefficient de viscosité typiquement égal à  $10^{-4} atm^{-1}$ . La figure 1.16 expose l'évolution théorique de la viscosité au cours du rapprochement frontal des deux sphères pour  $\eta = 0.001$  et un nombre de Stokes de 3.5 égal au nombre de Stokes critique dans ce cas. Au temps  $t = 1.1x_0/V_0$ , la viscosité augmente d'un facteur 300 par rapport à sa valeur initiale, ce qui tend à suggérer que le fluide se comporte un peu plus comme un solide. Cette élévation de la viscosité va de pair avec une augmentation du nombre de Stokes. Cependant l'élévation de la température qui accompagne une collision et qui doit faire baisser la viscosité n'est pas prise en compte. Or d'après Joseph et Hunt (2004), cette hausse de température est évaluée entre 10 à 15°C lors de la collision de deux billes en acier de 1.27 cm de diamètre immergée dans du glycérol. Joseph (2003) propose une expression analytique de la chaleur  $Q$  dégagée par dissipation visqueuse et de la variation de température  $\Delta\theta$  lors d'une collision :

$$Q = \frac{1}{2} m_b v_{a,n}^2 (e_s^2 - e_h^2) \quad (1.52)$$

$$\Delta\theta = \frac{Q}{C_p \rho \pi a^2 h_{min}} \quad (1.53)$$

avec  $V_{a,n}$  la composante normale de  $V_a$ ,  $C_p$  la capacité calorifique du fluide,  $e_s$  et  $e_h$  les coefficients de restitution en milieu sec et humide.

De plus, la théorie de Barnocky et Davis (1989) prédit un effet de la variation de viscosité pour un entrefer de l'ordre de  $700 \text{ nm}$  pour des billes en acier de diamètre  $0.5 \text{ mm}$ , dans un fluide de viscosité  $0.001 \text{ Pa.s}$ , de coefficient de viscosité  $10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$ , qui s'impactent à  $V_a = 1 \text{ m/s}$ . A titre de comparaison, pour ces mêmes valeurs, les effets élastiques sont théoriquement sensibles à un entrefer  $x_1 = 18.2 \text{ nm}$ . Bien qu'il soit difficile de valider ce type de prédiction, on peut effectivement supposer une hausse importante de la viscosité immédiatement avant le contact.

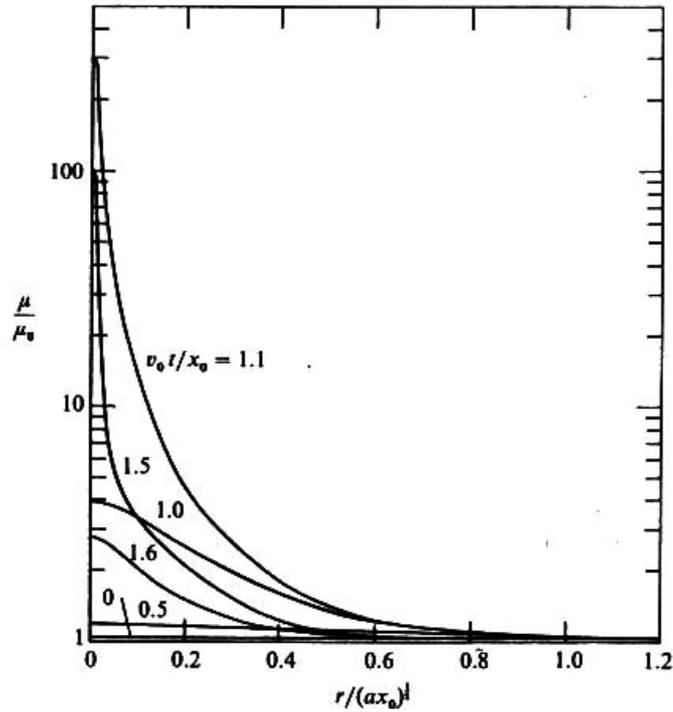


FIG. 1.16 – Evolution temporelle de la viscosité adimensionnée par sa valeur à pression ambiante en fonction du rayon  $r$  adimensionné par l'entrefer  $x_0$  et la vitesse relative  $V_0$  où commence à s'exercer la force de lubrification pour  $\eta = 0.001$  et  $St = 3.5$  (Barnocky et Davis, 1989).

### Expression de la force de lubrification dans un fluide non-newtonien

On a vu que la viscosité évolue tout au long du procédé de broyage et qu'en outre, le comportement de la suspension peut devenir non-newtonien. Il est donc important d'étudier son influence sur la phénoménologie du drainage qui contrôle le piègeage des particules. Le comportement rhéofluidifiant observé expérimentalement sur les suspensions (voire rhéoépaississant pour les suspensions concentrées) peut être décrit par une expression en loi de puissance :

$$\tau_{i,j} = m \left( \sqrt{2\dot{\gamma}_{i,j}\dot{\gamma}_{i,j}} \right)^{n-1} \dot{\gamma}_{i,j} \quad (1.54)$$

où  $\tau_{i,j}$  est le tenseur des contraintes,  $m$  la consistance du fluide,  $n$  l'indice du fluide ( $n = 1$  pour un fluide newtonien) et  $\dot{\gamma}_{i,j}$  le tenseur des vitesses de déformation.

et al. (2001), en reprenant les hypothèses de lubrification précédentes pour le choc entre deux sphères lisses, parviennent à calculer le profil de la vitesse radiale :

$$u_r = \frac{n}{n+1} \left( \frac{1}{m} \frac{\partial P}{\partial r} \right)^{1/n} \left[ \left( z - \frac{z_2 - z_1}{2} \right)^{(n+1)/n} - \left( \frac{h}{2} \right)^{(n+1)/n} \right] \quad (1.55)$$

puis le profil de pression :

$$P(r) = 2m \left( \frac{2n+1}{n} \right)^n V_a^n \int_r^B \frac{r^n}{\left( x + \frac{r^2}{2a} \right)^{2n+1}} dr \quad (1.56)$$

où  $B$  est la coordonnée radiale pour laquelle la perturbation de pression s'annule. En introduisant  $n = 1$ , on retrouve le même profil de pression que celui explicité par Davis et al. (1986) (eq. 1.41). De l'expression du profil de la pression  $P$ , on déduit que plus l'indice du fluide est élevé, plus la hausse de pression générée dans l'entrefer est amortie par le fluide. Cependant, la plage de variation du maximum de la pression est étroite : en  $r = 0$ , la pression est seulement deux fois plus faible pour  $n = 2$  que pour  $n = 0$  d'après les simulations de Lian et al. (2001). De plus, quand  $n = 2$ , la pression atteint sa valeur à l'infini pour des  $r$  bien plus faibles que quand  $n = 0$ . Un indice  $n = 2$  est très rare en pratique mais il ne sert ici qu'à étudier numériquement l'évolution de la pression. Théoriquement donc, au niveau de la zone de contact lors du rapprochement de deux sphères, un champ de pression dans un fluide en loi de puissance est relativement similaire au champ de pression dans un fluide newtonien. Théoriquement seulement puisque, si le caractère non newtonien est dû à une forte concentration en particules solides, les champs de pression peuvent être très différents, au moins dans le cas du rapprochement de deux disques. En effet, la force de lubrification qui s'écrit pour un fluide newtonien comprimé entre deux disques de rayon  $R_d$  espacés de  $h$  d'après Lee et Laad (2002) :

$$F = \frac{3\pi\mu V_a R_d}{2} \left( \frac{R_d}{h} \right)^3 \quad (1.57)$$

devient pour un fluide en loi de puissance d'après Bird et al. (1987) :

$$F = 2\pi \left( \frac{2n+1}{n} \right)^n \frac{1}{n+3} \frac{m}{2^{(n-1)/2}} \frac{V_a^n}{h^{2n+1}} R_d^{n+3} \quad (1.58)$$

Comme l'ont montré Delhayé et al. (2000) et Collomb et al. (2004), la consistance  $m$  et l'indice du fluide  $n$  varient en fonction de l'entrefer. De plus, cette force de lubrification est une fonction croissante de la vitesse d'approche lorsque le fluide porteur newtonien de la suspension est très visqueux. Mais lorsque celui-ci est peu visqueux, pour des vitesses d'approche et/ou des entrefers faibles,  $F$  est une fonction décroissante de  $V_a$  parce qu'apparaît une séparation de phase qui concentre les particules au centre de l'entrefer. Ce phénomène se produit quand le nombre de Peclet  $Pe$  suivant est de l'ordre de 1 :

$$Pe = \frac{\mu_f V_a^{1-n} h^{n+1}}{mk} \quad (1.59)$$

où  $k$  est la perméabilité de Darcy qui dépend du diamètre des particules et  $\mu_f$  la viscosité du fluide porteur. On en déduit une vitesse d'approche critique  $V_c$ , fonction croissante de la concentration en particules, pour laquelle la ségrégation se produit :

$$V_c = \left( \frac{mk}{\mu_f h^{n+1}} \right)^{1/(1-n)} \quad (1.60)$$

Cette dernière configuration de fluide comprimé (ou squeeze film en anglais) vient conclure une partie qui avait pour objectif de présenter les principaux résultats théoriques sur le rapprochement de deux sphères qui permettent de comprendre l'écoulement entre deux billes de broyage se rapprochant. A notre connaissance, il n'existe aucune simulation numérique traitant du drainage entre deux sphères. Les études connues portent sur la sédimentation d'une sphère vers un mur (Cate et al., 2002; Thompson et al., 2006), la sédimentation d'une sphère vers une sphère fixe (Zhang et al., 1999), deux sphères sédimentant ensemble (Singh et al. 2003) ou sur la collision d'un double pendule (Hsu et Capart, 2007). Enfin pour conclure, nous pouvons mentionner les travaux de Kim et Karrila (1991) qui synthétisent l'écoulement de drainage entre deux sphères dans différentes configurations géométriques et mécaniques.

### 2.3 Bilan de force sur une bille qui impacte une paroi ou une sphère

Après avoir décrit de manière globale une collision à l'aide du coefficient de restitution et du nombre de Stokes, puis la force de lubrification qui est responsable de la perte d'énergie au moment de l'impact, nous allons rappeler dans ce paragraphe les différentes forces qui s'exercent sur une bille immergée, avant et après rebond sur une plaque ou une autre sphère.

Une bille immergée de rayon  $R_b$ , de masse volumique  $\rho_b$ , qui se déplace avec une vitesse  $V_b$  en direction d'un mur ou d'une autre sphère est soumise à :

- la flottabilité  $F_B$

$$F_B = \frac{4}{3}\pi R_b^3 (\rho_b - \rho_f) g \quad (1.61)$$

où  $g$  représente la gravité

- la traînée  $F_D$  :

$$F_D = -6\pi\mu_f R_b V_b \phi \quad (1.62)$$

où  $\phi = 1 + 0.15Re_b^{0.687}$  est un facteur correctif de la traînée de Stokes valable pour des nombres de Reynolds de la bille  $R_b$  inférieurs à 800 (il peut aussi y avoir une correction liée à la distance à la paroi)

- une force d'inertie  $F_{AM}$  liée à la masse ajoutée de fluide qui fait corps avec la bille dans son mouvement :

$$F_{AM} = -\frac{4}{3}\pi R_b^3 \frac{1}{2}\rho_f \frac{dV_b}{dt} \psi \quad (1.63)$$

où  $\psi = 1 + 3R_b/8(R_b + h)$  est un facteur de correction valable à une distance  $h$  du mur mais négligé par Gondret et al. (2002) chez qui il ne vaut pas plus de 11/8

- une force d'histoire  $F_H$  qui résulte de la succession d'accélération subies par le fluide de vitesse  $U$  et qui s'écrit sous forme générale :

$$F_H = 6\pi\mu_f R_b \int_{t_0}^t K(t - \tau) \frac{dU}{d\tau} \quad (1.64)$$

Pour Zhang et al. (1999) qui s'intéressent à un choc entre deux billes, le noyau  $K$  s'exprime de la manière suivante :

$$K(t - \tau) = \left[ \left[ \frac{\pi(t - \tau)\nu}{R_b^2} \right]^{1/4} + \left[ \frac{\pi}{2} \frac{(\bar{U} + U)^3}{R_b \nu f_H^3(Re)} (t - \tau)^2 \right]^{1/2} \right]^{-2} \quad (1.65)$$

avec  $f_H(Re) = 0.7 + 0.105Re$  si  $Re = 2\bar{U}R_b/\nu_f$  où  $\nu_f$  est la viscosité cinématique du fluide,  $\bar{U}$  la vitesse de l'écoulement moyen (nulle ici). Pour Gondret et al. (2002) qui s'intéressent à un choc bille-paroi, la force d'histoire s'écrit :

$$F_H = -6\pi\mu R_b V_r \frac{3}{2} \left[ \frac{\phi_r + Re_{br} \dot{\phi}_r}{1 + e} \right] \frac{\phi_i}{t} \beta \quad (1.66)$$

où  $V_r$  est la vitesse de la bille après rebond,  $\phi_r$  le facteur correctif de la traînée basé sur le nombre de Reynolds de la bille après rebond,  $\dot{\phi}_r$  sa dérivée temporelle,  $\phi_i$  le facteur correctif de la traînée basé sur le nombre de Reynolds de la bille avant rebond,  $t$  le temps ( $F_H$  tend bien vers 0 quand  $t$  tend vers l'infini) et  $\beta$  un coefficient de calage avec les données expérimentales. La figure 1.17 met en évidence l'importance de la prise en compte de chacune de ces forces pour pouvoir expliquer les résultats expérimentaux (la force d'histoire semble beaucoup moins influente que les autres).

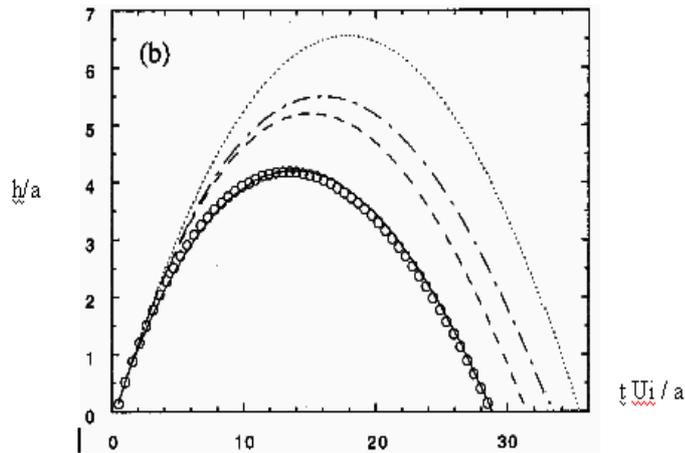


FIG. 1.17 – Trajectoires de rebond pour une bille en acier de 6mm de diamètre dans une huile de silicone RV20 ( $Re_b = 106$ ) en fonction du nombre de forces prises en compte d'après Gondret et al. (2002) : des pointillés au trait plein respectivement  $F_B$ ,  $F_B + F_D$ ,  $F_B + F_D + F_{AM}$ ,  $F_B + F_D + F_{AM} + F_H$ , les ronds représentant les points expérimentaux.

Aux forces précédentes, il convient d'ajouter la force de compression de la sphère  $F_C$  :

$$F_C = \frac{4E_b}{3(1-\nu_c^2)}\sqrt{R_b}h^{3/2} \quad (1.67)$$

où  $E_b$  est le module de Young de la bille et  $\nu_c$  le coefficient de Poisson et la force de lubrification qui remplace la force de traînée au moment de l'impact et dont différentes formulations ont été données au paragraphe 2.2. Dans le cas d'un rapprochement entre deux sphères, Zhang et al. (1999) utilisent pour la force de lubrification l'expression établie pour un rapprochement entre une sphère et une plaque (c'est pour cela qu'elle diffère des formules précédentes liées à des configurations disque-disque ou sphère-sphère) :

$$F_L = \frac{9}{32} \frac{m_{AM}R_b^3}{(R_b + h/2)^4} V_b^2 \quad (1.68)$$

où  $m_{AM}$  est la masse ajoutée de fluide et  $h$  l'entrefer, Toutes ces forces permettent de prédire la trajectoire d'une bille après un rebond, de clairement distinguer les termes de dissipation dominants pour estimer une énergie transmissible à des particules en mouvement relatif par rapport aux billes, mais aussi de prédire la trajectoire de ces particules pendant une collision.

### 3 Conclusion

La production de nanoparticules qui a récemment suscité un vif intérêt dans l'industrie peut s'effectuer par fragmentation de particules microniques. Le technologie des broyeurs à billes agités permet la production de nanoparticules en suspension concentrée. Toutefois, l'obtention de nanoparticules s'avère souvent difficile du fait de l'effort énergétique important qu'il faut fournir mais également en raison de différents facteurs limitants d'ordre mécanique, physico-chimique et hydrodynamique. L'étude de l'influence des propriétés mécaniques de rigidité et d'élasticité sur la propagation de fissures et la création de fragments a fait l'objet de différents travaux, dont ceux de Schönert (1988) qui servent de référence en la matière. Le contrôle des propriétés physico-chimiques de la suspension est très important car il gouverne la réduction de taille des particules et permet l'obtention de suspensions stables. Enfin, l'hydrodynamique est un autre facteur limitant qui a été peu étudié dans la littérature et jamais spécifiquement.

Dans cette Thèse, nous cherchons à analyser l'influence de l'hydrodynamique sur le mécanisme de fragmentation dans un broyeur à billes agité. L'hydrodynamique concerne deux échelles : celle du broyeur, qui par sa géométrie particulière induit un écoulement complexe, et celle de la collision de billes car la fragmentation des particules en suspension résulte de leur écrasement lors de la collision des billes de broyage. L'efficacité du procédé de broyage peut s'exprimer en fonction de trois grandeurs (Kwade et Schwedes, 2002) : le nombre de collisions  $SN$  (stress number), l'énergie reçue par une particule piégée entre deux billes de broyage  $SI$  (stress intensity) et l'énergie spécifique  $E_s$  qui représente l'énergie totale servant à fracturer les particules. Différentes approches, numérique, expérimentale et théorique ont été développées dans la littérature pour caractériser l'hydrodynamique globale de la chambre de broyage d'un broyeur à billes agité. Les simulations numériques ont

essentiellement été menées pour expliquer l'influence de la géométrie du broyeur et de la vitesse de rotation de l'agitateur sur la structure de l'écoulement de la suspension et donc sur l'efficacité du procédé. Aucune étude numérique ne s'est intéressée à l'étude du mécanisme de capture de particules lors de la collision de billes de broyage. Les études expérimentales, conduites par PIV, ont permis de valider les écoulements en assimilant le milieu à un fluide monophasique et à estimer les vitesses des billes dans l'espace entre les disques d'agitation et dans l'entrefer entre les disques et la paroi de la chambre. Enfin, Kwade (1999) a exprimé théoriquement et comparé les énergies disponibles pour fragmenter les particules lors des collisions entre billes selon différents mécanismes. Il semblerait que les collisions entre billes dans le plan parallèle aux disques soient principalement responsables de la fragmentation des particules.

La deuxième partie de ce chapitre a porté sur l'analyse de l'hydrodynamique dans le film liquide lors du rapprochement de deux sphères. En effet, cet espace constitue la zone active entre deux billes de broyage dans laquelle les particules sont contraintes. Les études de la littérature sur ce point caractérisent la collision entre deux sphères par le nombre de Stokes et le coefficient de restitution. Ces travaux font apparaître un nombre de Stokes critique au delà duquel la bille rebondit après la collision. Par ailleurs, il existe dans la littérature différentes formulations de la force de lubrification, c'est à dire la force exercée par le fluide sur les billes lors de leur rapprochement relatif, selon la typologie de l'impact (contact sphère-sphère ou plan-plan ou sphère-plan) et selon les propriétés rhéologiques du film liquide entre les deux surfaces (fluide newtonien incompressible ou fluide en loi de puissance). Enfin nous avons terminé ce chapitre en donnant les expressions des forces qui s'exercent sur une bille qui impacte une paroi ou une autre bille. La prise en compte de ces forces permet de décrire les trajectoires de rebond de la bille après impact.

# Chapitre 2

## Modélisation d'un broyeur à billes agité : hydrodynamique et caractéristiques des collisions

**Résumé** Le coeur de ce chapitre consiste en une publication soumise à Chemical Engineering Science en cours de correction. On y présente une étude numérique de l'hydrodynamique globale dans le broyeur. L'écoulement simulé est celui d'un fluide équivalent modélisant le mélange d'une suspension de particules à broyer et des billes de broyage. A partir des champs de vitesse, on peut évaluer les caractéristiques locales de la collision entre deux billes de broyage.

### 1 Objectifs de l'étude

Le besoin en nanoparticules croissant de manière exponentielle, de nombreuses méthodes sont apparues pour les produire (voir chap. 1 section 1.1). Parmi elles, le broyeur à billes agité est un des plus efficaces, surtout grâce à sa capacité à traiter des suspensions denses de nanoparticules. Cependant, l'obtention de ces nanoparticules nécessite des temps de résidence relativement longs dans la chambre de broyage (64 heures parfois), soit en une seule passe, soit en plusieurs.

Les expériences effectuées depuis plusieurs années ont montré que les particules à broyer atteignent une distribution de taille limite au cours du processus de fragmentation. Cette distribution est mal prédite, par des modèles de bilan de population par exemple, parce que le mécanisme de fracturation n'est pas clairement identifié. On a vu au chapitre précédent que les facteurs limitants sont de trois types : mécanique, physicochimique et hydrodynamique. Le premier de ces facteurs a été exploré par Bernotat et Schönert (1988). La plus petite taille de fragment théorique dépend de la structure et du module d'Young du matériau. Plus précisément, elle est liée à la distance séparant deux lignes de fracture, soit entre 1 et 10 nm pour des matériaux fragiles ou 1 et 10  $\mu m$  pour des matériaux plastiques. En pratique, cette taille limite ne peut être atteinte qu'en ayant recours à des additifs pour contrôler la rhéologie de la suspension et empêcher les interactions attractives de provoquer l'agglomération des fragments (Bernhardt et al., 1999 ; Mende et al., 2003 ; Garcia et al., 2004 ; Stenger et al., 2005a). Cette limitation physicochimique survient lorsque la taille des particules devient inférieure à 1  $\mu m$ . Quant au facteur hydrodynamique,

il a peu été étudié (voir chap. 1 section 1.6).

On s'intéresse dans ce chapitre à l'étude de l'hydrodynamique globale dans la chambre de broyage. L'hydrodynamique locale, entre deux billes de broyage qui se rapprochent, fait l'objet des chapitres 3 et 4. Le but est ici d'estimer les vitesses de collision en fonction de la vitesse d'agitation, du débit axial (dans le cas de passes multiples), et surtout des propriétés rhéologiques de la suspension. En effet, seule l'hydrodynamique de fluides newtoniens a été analysée jusqu'ici dans la littérature. Blecher et al. (1996) y ont ajouté le calcul de trajectoires de billes de broyage de différents diamètres, isolées, afin de voir si elles suivent les lignes de courant ou non. Ils ont déduit que cela dépendait d'un nombre adimensionnel, le *Motion Index*, qui est le rapport de la force centrifuge sur la force de traînée (voir section 1.6, eq. 1.16). Mais le fait de ne pas considérer d'interactions entre billes limitent fortement la portée de ces résultats.

Au lieu de considérer un fluide diphasique, Lane (1999) est le premier, et le seul à notre connaissance, à avoir simulé un fluide équivalent, de viscosité uniforme 1 *Pa.s*. Il s'est ensuite servi du taux de dissipation visqueuse pour estimer une intensité locale de broyage.

Dans ce chapitre, le travail s'appuie sur la simulation numérique directe des équations de Navier-Stokes dans un domaine représentatif de la chambre de broyage, et reprend le principe de fluide équivalent. Mais le choix de la valeur de la viscosité s'est basé sur des données physiques relatives à des suspensions couramment rencontrés en nanobroyage. La viscosité effective est modélisée par la loi de Krieger et Dougherty, laquelle permet d'exprimer la dépendance de la viscosité à la concentration en billes, sachant que la suspension de particules à broyer est supposée constituer une seule phase porteuse. De plus, comme la plupart des suspensions concentrées présentent des comportements non-newtoniens, nous avons analysé dans le broyeur l'écoulement de fluides équivalents rhéofluidifiants et rhéoépaississants. Enfin, nous avons estimé des vitesses de collisions entre billes de broyage à partir des champs locaux de vitesse du fluide. Il a donc été possible de distinguer les chocs frontaux des chocs créés par cisaillement, et de mesurer leurs intensités respectives en fonction des propriétés du fluide.

Le texte de la publication comprend ainsi trois grandes parties : une première qui explique les différentes étapes de la modélisation de l'écoulement, puis une deuxième qui présente les résultats concernant l'hydrodynamique dans le broyeur, et enfin une troisième qui détermine les caractéristiques des collisions entre billes de broyage en fonction des conditions d'écoulement dans le broyeur.

## 2 Texte de la publication

Voici le texte qui a été soumis à Chemical Engineering Science et qui en cours de correction :

### Abstract

*Producing nanoparticles in dense suspensions can be achieved in a stirred media mill. However the mechanisms of fragmentation in the mill are still not fully understood and the process remains laborious because of the large amount of supplied energy. We focus on the numerical analysis of the global hydrodynamics in the mill. Based on the flow simulations we determine the parameters which control the efficiency of the collisions between grinding beads (impact velocities and orientation of the collisions). The suspension flow is modelled with effective physical properties. We solve directly the Navier-Stokes equations for the equivalent fluid assuming that the flow is two-dimensional and steady. Depending on the Reynolds number and the Non-Newtonian behaviour of the fluid, we found that the flow is composed of several toroidal vortices. The most energetic collisions are driven by the strong shear experienced by the suspension within the gap between the disc tip and the wall chamber.*

### Keywords

Simulation, hydrodynamics, particle processing, wet milling, suspension, non-Newtonian fluids.

## 3 Introduction

The need of nanoparticles has raised during the past few years. They enhance for example lifetime of paints, strength of materials, efficiency of pharmaceuticals or lubricants. Stirred media mills have proved to be an efficient way to produce nanoparticles, especially for poorly water soluble compounds (Mende et al., 2003; Merisko-Liversidge et al., 2003). Practically, the product must have a long residence time within the grinding chamber or be processed through several passes in a circulating mode in order to produce nanosize fragments. Many experiments have revealed that the particle size achieves a steady distribution during the fragmentation process. More particularly the mechanism of size reduction is not well understood and thus the limit fineness or the minimum achievable size is not well predicted. Limitations of the process may be of three types : mechanical, physicochemical or hydrodynamical. Depending on the material strength and structure, Bernotat and Schönert (1988) showed that the theoretical limit fineness related to the length of the fracture zone may vary from (1-10 nm) for brittle minerals to (1-10  $\mu m$ ) for plastics. In practice, such a minimum size is difficult to reach without the use of grinding aids or choosing optimum physicochemical conditions able to prevent screen attractive interparticle interactions (Bernhardt et al., 1999; Mende et al., 2003; Garcia et al., 2004; Stenger et al., 2005a). Thus, physicochemical limitations raise because of the emergence of fragments below 1  $\mu m$  inducing interparticle forces leading to the aggregation of

fine particles. The third possible limitation is due to the process itself. Indeed when two grinding beads collide, the squeezed fluid between the two surfaces of contact slows down their approaching motion due to lubrication. The dynamics of the fluid drainage depends on the fluid viscosity and the impact parameters. Therefore most of the available energy of the impact is dissipated in the fluid. Also, the fluid which flows out the gap transports particles away. Only particles remaining in this active volume may be crushed. Experiments have shown that the particle size, the solid concentration of the suspension and the physicochemical interactions between particle surfaces have a great influence during the size reduction process. However the role of each of these parameters regarding the impact velocity and the diameter of the grinding beads is unknown.

This study focuses on the hydrodynamics inside the grinding chamber. Its main purpose is to estimate collision velocities between grinding beads as a function of the operating milling conditions (stirrer speed, flow rate, rheological properties of the suspension). Previous studies on this topic have been done for Newtonian fluids. For example, Blecher *et al.* (1996) have simulated the flow in the mill and the trajectories of isolated particles whose diameter varied from  $250 \mu\text{m}$  to  $1 \text{ mm}$ . They concluded that beads may follow or not the flow according to a Motion Index which represents the ratio of the centrifugal force on the experienced drag force by the beads. Instead of a two-phase flow model, Lane (1999) preferred a simple approach based on the simulation of an equivalent fluid with the constant viscosity  $1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ . As an indicator, he chose the viscous energy dissipation rate to estimate the local intensity of grinding.

The present paper investigates numerically the hydrodynamics within the mill, simulating the suspension flow by direct numerical solution of the Navier-Stokes equations for an equivalent fluid. The effective viscosity is modelled by a Krieger Dougherty law where the viscosity only depends on the particulate concentration. Since most of dense suspensions exhibit a non-Newtonian behaviour, results of simulations with shear-thinning or shear-thickening fluids are also discussed. Finally, collision velocities are estimated from the flow fields for frontal collisions and collisions induced by shear stress. Then, the available energy to break particles can be quantified according to the suspension properties.

## 4 Modelling approach

### 4.1 Mill design

The Fig. 2.1 shows the design of a stirred bead mill. For example, such a mill was for example used by Garcia *et al.*, 2004 or Frances and Anne-Archard, 2004. In this type of mill (Fig. 2.1), the apparent volume of grinding is approximately filled up to 80% with monosized beads of size of few mm (from  $100 \mu\text{m}$  to few mm diameter). This corresponds to an actual grinding media fraction of 50.4% according to a random close packing of 63% for the beads. The remaining of the volume contains a suspension of particles to be ground. The carrying fluid is often an aqueous solution with grinding aids. The beads and the suspension are strongly stirred by a central rotating agitator typically at a speed ranging from 1000 to 6000 rpm. The particle fragmentation results from the capture of particles inside

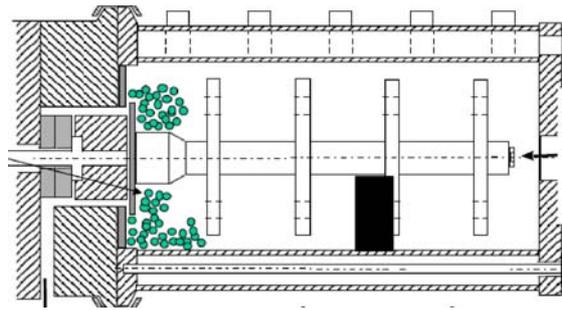


FIG. 2.1 – Sketch of a stirred media mill and definition of the simulation domain (black patch).

TAB. 2.1 – Actual dimensions of the mill and non-dimensional length scales ( $\Delta R$  being the gap between the disc tip and the chamber wall).

Shaft radius $R_s$	21 mm	$1.4\Delta R$
Disc radius $R_d$	60 mm	$4\Delta R$
Inner chamber radius $R_c$	75 mm	$5\Delta R$
Gap between discs $D_d$	43 mm	$2.8\Delta R$
Disc thickness $T_d$	9 mm	$0.6\Delta R$
Chamber length $L_c$	380 mm	$25.3\Delta R$

zones of strong occurring stress when two grinding beads collide (frontal collisions in straining regions or oblique collisions induced by a local shear). The stirrer is composed of four perforated discs mounted on a driven shaft. The suspension flows continuously into the chamber and a rotating gap as separation device at the exit of the mill forces the grinding beads to stay inside the mill. A double jacket where cooling water flows allow the control of the temperature increase due to the size reduction process. However, in order to compare the results of our simulations with those previously obtained by Blecher *et al.* (1996) the geometrical dimensions of the mill reported in the Table 2.1 were used. To simplify the simulations the influence of holes in the disks has been neglected. The most important length scales are the shaft radius, the disc radius and the inner chamber radius because they determine the flow in the mill.

## 4.2 Numerical method

The computations reported in this paper have been carried out with the numerical code JADIM presented in details in numerous references (Magnaudet *et al.*, 1995; Legendre and Magnaudet, 1998; Legendre *et al.*, 2003). Its ability to simulate cylindrical Couette flows has been recently presented in Climent *et al.* (2007). The code JADIM solves the three-dimensional unsteady Navier-Stokes equations written in velocity-pressure variables in a general system of orthogonal curvilinear coordinates. For the present problem, these equations are :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (2.1)$$

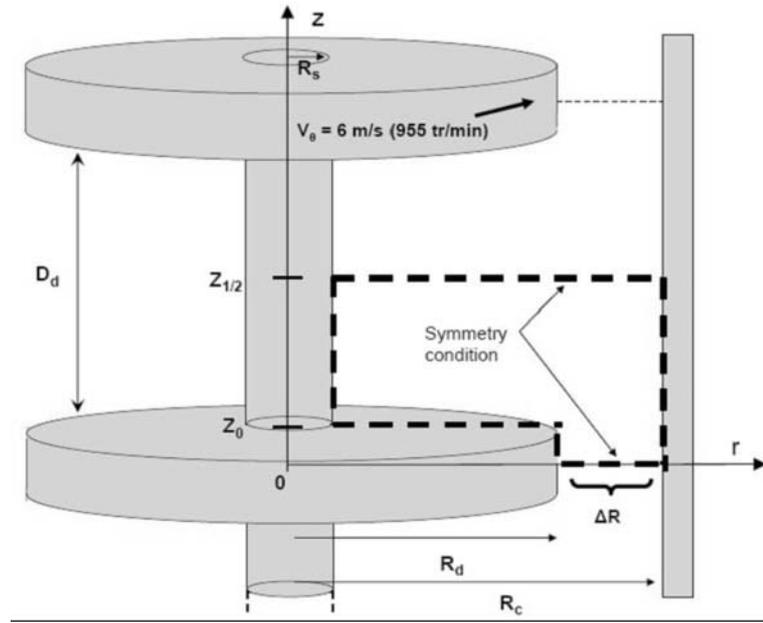


FIG. 2.2 – Sketch of the simulation domain and its boundary conditions.

$$\rho_{eff} \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla p + \nabla \cdot (\mu_{eff} (\nabla \mathbf{v} + \nabla^t \mathbf{v})) \quad (2.2)$$

where  $\rho_{eff}$  is the effective fluid density,  $\mathbf{v}$  the fluid velocity,  $p$  the pressure,  $\mu_{eff}$  the effective fluid viscosity. The spatial discretisation is based on a staggered mesh and the equations are integrated in space using a finite volume method with second-order accuracy, all spatial derivatives being approximated using second-order schemes. The temporal evolution is achieved through a Runge-Kutta-Crank-Nicholson algorithm, which is second-order accurate in time. Finally, incompressibility is satisfied at the end of each time step by solving a Poisson equation for an auxiliary potential. The axisymmetric grid is Cartesian and is made of  $118 \times 62$  grid points along the radial and axial directions, respectively. We have done some preliminary tests to verify that the results are independent of the number of nodes used to discretize the domain.

Accounting for symmetries in the mill, the flow can be simulated in the domain (marked by a black patch in Fig. 2.1) in axisymmetric framework of reference :  $r$  is the radial coordinate,  $z$  the axial coordinate and  $\theta$  the tangential coordinate. The gap between the disc tip and the chamber wall is called  $\Delta R$  and is selected to scale all the length scales of the geometry. This simulation domain illustrated in fig. 2.2 is bounded by the mill wall on the right ( $r/\Delta R = 5$ ), the shaft wall on the left ( $r/\Delta R = 1.4$ ) and two planes of symmetry (on the top  $z/\Delta R = 1.73$ , at the bottom  $z/\Delta R = 0$ ). The grid is refined near the wall in order to capture the velocity gradients for the largest considered Reynolds number. Typically, the grid spacing is  $8.7 \cdot 10^{-3} < \Delta z/\Delta R < 4 \cdot 10^{-2}$  and  $9.3 \cdot 10^{-3} < \Delta r/\Delta R < 3.9 \cdot 10^{-2}$  along the radial and axial directions, respectively. Distinct boundary conditions are applied on the frontiers of the computational domain : no-slip conditions are imposed on the walls and symmetry conditions are imposed on the others boundaries. The wall condition consists in imposing the velocity of rotation of the inner wall while zero velocity is imposed on the outer non rotating cylinder. A tangential velocity was imposed on the stirrer wall to reproduce the rotation motion. Typically, a velocity of  $6 \text{ m/s}$

corresponds to a rotation frequency of 955 rpm. Simulations are initialized by a composite solution based on a solid body rotation ( $r \leq R_d$ ) and a pure Couette flow ( $r \geq R_d$ ). We are only interested in the stationary flow patterns as milling operations are generally operated out over long times. To study distinct Reynolds number configurations, the fluid viscosity is gradually decreased. For a given viscosity, the simulation is initialized by a previous solution and the flow evolves during a transient time before converging to a new steady state. In view of this study, additional tests have been performed. Two basic flows of non-Newtonian fluids have been computed for conditions closed to the present study : a non-Newtonian Poiseuille flow and a Non-Newtonian Couette flow. For the Poiseuille flow the numerical results were compared to the exact analytic solution and a very good agreement was achieved for both Newtonian and non-Newtonian fluids. The maximum relative errors  $(u_{numerical} - u_{analytical})/u_{max}$  are  $5.5 \cdot 10^{-4}$  and 0.002, respectively. Similar tests have been performed for the Couette Flow. The radial profile of the azimuthal velocity  $v_\theta$  is reported in figure 2.3 for a Newtonian fluid and for a non-Newtonian fluid ( $m = 0.1$  and  $n = 0.8$ ). See definitions of  $m$  and  $n$  in the next section. The simulations have been done under conditions similar to the ones which were used for the mill simulations. The dimension of the outer non rotating cylinder is defined by  $R_c/\Delta R = 5$  (radius 75 mm) while the inner rotating cylinder radius is  $R_s/\Delta R = 1.4$  (radius 21 mm). Here  $\Delta R = R_c - R_s$  is the gap between the two cylinders. The Reynolds number based on the inner cylinder diameter is  $Re = 73$  corresponding to the rotation frequency  $\omega$  of  $100 \text{ rad.s}^{-1}$  or 15.9 rounds per second. At this moderate Reynolds number no instability of flow is expected. The numerical simulations are compared with the analytic velocity profile :

$$v_\theta(r) = \omega \frac{R_s^{2/n}}{R_s^{2/n} - R_c^{2/n}} r \left( 1 - \left( \frac{R_c}{r} \right)^{2/n} \right) \quad (2.3)$$

where  $n$  is the fluid index defined by eq (2.6). A very good agreement is again achieved between the numerical simulations and the equation (2.3) as shown by figure 2.3. The maximum relative errors  $(v_\theta^{numerical} - v_\theta^{analytical})/v_\theta(R_d)$  are  $4 \cdot 10^{-5}$  and 0.02 for Newtonian and non-Newtonian fluids, respectively.

### 4.3 Suspension modelling

The actual flowing phase in a stirred media mill is complex because it is a polydisperse suspension composed of the carrying fluid, the particles to be crushed and the grinding beads. The fluid phase carries grinding beads but a strong dissipation of energy occurs through lubrication effects during bead collision and particle breakage. Feed particles become smaller and smaller and modify the suspension viscosity which controls the collision intensities between beads. Nevertheless the size ratio between grinding beads and particles is always high. It ranges from 10 or more to roughly 1000. The particle suspension can therefore be considered as a homogeneous media for the grinding beads.

Another quantity of interest to characterize the flowing phase is the mean distance between grinding beads  $\delta$ . It is estimated by the relation (Shook and Rocco, 1991) :

$$\delta = \left[ \left( \frac{\phi_m}{\phi} \right)^{1/3} - 1 \right] d_{GM} \quad (2.4)$$

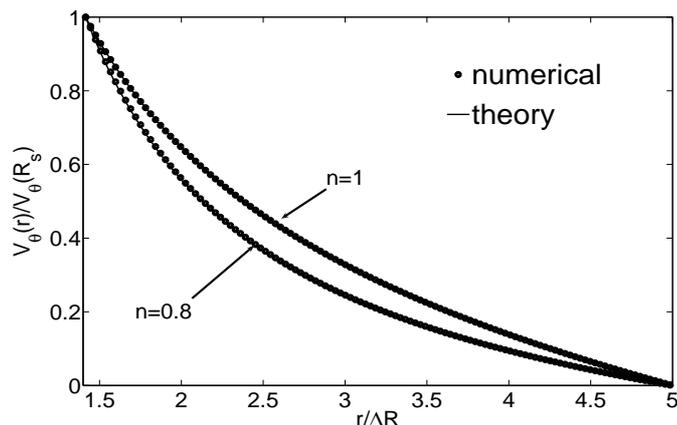


FIG. 2.3 – Radial profile of the tangential velocity in a cylindrical Couette flow for Newtonian and non-Newtonian fluids at  $Re = 73$  ( $n=1$  and  $n=0.8$ ). *solid line* : analytical solution (eq. 2.3),  $\bullet$  : numerical simulations.

where  $\phi$  and  $\phi_m$  are respectively the volume fraction and the random close packing fraction (63%) and  $d_{GM}$  is the diameter of grinding beads. For the usual volume fraction  $\phi = 50.4\%$ , this leads to  $\delta/d_{GM} \sim 8\%$ .  $\delta$  can be regarded as half the free average spacing for a grinding bead. No information seems to exist about the spatial grinding media distribution in the mill. Nevertheless this low value of  $\delta$  is not likely to induce strong inhomogeneities. So an equivalent one-fluid model can reasonably be used to avoid the complexity of a multiphase flow approach without losing the global specific characteristics of the fluid. Lane (1999) proposed similar numerical simulations for a viscosity of  $1 Pa.s$ . In our simulations, the viscosity of the equivalent fluid is estimated from experimental data of particle suspension and from the Krieger-Dougherty model for spheres :

$$\mu_{eff} = \mu_{susp} \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-\frac{5}{2}\phi_m} \quad (2.5)$$

where  $\mu_{susp}$  is the viscosity of the particle suspension considered as the carrying fluid for the grinding beads. Values of  $\mu_{susp}$  can be extracted from a previous experimental study (Frances and Anne-Archard, 2004) in which the rheological behaviour of a ground suspension of calcium carbonate  $CaCO_3$  ( $2700 kg/m^3$ ) was characterized. For sufficient grinding aids concentration and for volumetric concentration varying 8% to 27% (mass fraction between 20% and 50% corresponding to a bulk density of the suspension  $\rho_{susp}$  varying from  $1340 kg/m^3$  to  $1850 kg/m^3$ ), the behaviour reveals to be virtually Newtonian to slightly shear-thinning. Rheological properties change rapidly when the additives concentration is decreasing and one can observe highly shear-thinning behaviour with low consistency index or even a viscoplastic behaviour. We restricted our study to usual behaviour encountered in grinding processes, that is to say with usual additives concentrations. Considering the density of each material (particles and grinding media), the kinematic viscosity  $\nu_{eff} = \mu_{eff}/\rho_{eff}$  ranges from  $10^{-3}$  to  $3.310^{-4} m^2/s$  which is consistent with experimental observations.

Shear-thinning behaviour observed in the experiments is fitted using a power-law model for the equivalent fluid :

$$\tau = m\dot{\gamma}^n \quad (2.6)$$

where  $\tau$  and  $\dot{\gamma}$  are respectively the shear stress and the shear rate,  $m$  the consistency and  $n$  the fluid index.  $\dot{\gamma}$  is calculated from the components of the strain tensor  $S$  :

$$\dot{\gamma} = \sqrt{2tr(S^2)} \quad (2.7)$$

where the strain tensor  $S$  is defined by :

$$S = 1/2(\nabla\mathbf{v} + \nabla^t\mathbf{v}) \quad (2.8)$$

As shear-thickening behaviour may also be observed in concentrated suspensions under high shear rate (Barnes et al., 1989), numerical simulations with values of  $n$ -index greater than 1 will be also be discussed.

#### 4.4 Reynolds number definition

The flow regime is characterized by the Reynolds number. Depending on hydrodynamics features under interest, different Reynolds number definitions can be selected. The very widely used definition for mixing systems is based on the rotation frequency  $N$  and on the agitator diameter  $D$  (Nagata, 1975). In Newtonian cases, its expression is :

$$Re = \rho_{eff} \frac{ND^2}{\mu_{eff}} \quad (2.9)$$

where  $\rho_{eff}$  is the effective suspension density and  $\mu_{eff}$  the effective suspension viscosity. Considering non Newtonian fluids, a generalized Reynolds number is defined in order to take no constant viscosity of the fluid into account through the fluid index  $n$  and the consistency index  $m$  :

$$Re_g = K_s^{1-n} \rho_{eff} \frac{N^{2-n} D^2}{m} \quad (2.10)$$

This extension of the Reynolds number is based on power consumption considerations using the broadly accepted Metzner-Otto concept (Chhabra, 2003). This postulates that the effective shear rate of the flow is proportional to the rotation frequency through a coefficient  $K_s$ . It was shown in the experiments that  $K_s$  is only a function of the impeller-vessel configuration, at least as long as the index behaviour  $n$  of the fluid is not too small. Although  $K_s$  values are proposed in literature for various mixing systems, there is no systematic study available for mills. So we use the analytic expression obtained for Taylor-Couette flow in concentric cylinders with a radius ratio  $s$  equal to  $R_d/R_c$  :

$$K_S = 4\pi n^{n/(1-n)} \left( \frac{(1 - s^{2/n})^n}{1 - s^2} \right)^{1/(1-n)} \quad (2.11)$$

TAB. 2.2 – Characteristics of the fluids.

Fluid type	Rheological properties	Re
Newtonian	$\nu_{eff} = 1.10^{-3} m^2 s^{-1}$	229
	$\nu_{eff} = 5.10^{-4} m^2 s^{-1}$	458
	$\nu_{eff} = 3, 5.10^{-4} m^2 s^{-1}$	654
Shear-thinning	$m/\rho_{eff} = 1.10^{-3} m^2 s^{n-2}$ and $n = 0.9$	422
	$m/\rho_{eff} = 5.10^{-4} m^2 s^{n-2}$ and $n = 0.9$	845
Shear-thickening	$m/\rho_{eff} = 3, 5.10^{-4} m^2 s^{n-2}$ and $n = 1.2$	67

## 5 Spatial structure of the flow field

We used direct numerical simulations of the Navier-Stokes equations to analyze the flow behaviour in the mill. Depending on the nature of surface interactions between particles and between the grinding beads, the suspension may behave as a Newtonian or a non-Newtonian fluid. We started to study the evolution of the flow patterns within the chamber for a Newtonian fluid as the reference case. As the Reynolds number is the only non-dimensional parameter governing the flow dynamics, the disc rotation rate or the viscosity may be equivalently varied for a fixed geometry. The rotation frequency has been maintained constant throughout the study, imposing a constant tangential velocity of the disc  $V_\theta(r = R_d)$  and we varied the viscosity of the suspension to study different Reynolds numbers. The effect of the overall non-Newtonian hydrodynamics has been investigated assuming a power law rheological behaviour (shear-thinning or shear-thickening). Velocity fields and contour levels of energy dissipation are presented in the visualization plane (r,z). The correspondence of the numerical parameters with the physical operating conditions has been summarized in table 2.2.

### 5.1 Hydrodynamics in the Newtonian cases

#### Flow patterns

At very low Reynolds number, the flow is purely azimuthal. Beyond a critical value of the Reynolds number, secondary flows in the axial-radial plane (r,z) appear. Secondary flows in the (r,z) plane and viscous energy dissipation rate are presented in figures 2.4, 2.5 and 2.6 for Reynolds number equal to 229, 458 and 654 respectively. The fluid rotation between the disc tip and the fixed wall of the mill generates an instability driven by the centrifugal force. This configuration is strictly similar to the Couette-Taylor instability occurring in the gap between two cylinders (the inner cylinder is rotating while the outer one stays at rest). As the instability sets in, a single toroidal vortex develops in the mill (see the streamlines plotted in Fig. 2.4a).

Further increase of the Reynolds number modifies drastically the flow structure (Figs 2.5a and 2.6a). Two contra-rotating vortices fill the whole mill chamber. One strong vortex is located in the gap between the rotating disc tip and the fixed outer cylinder. The largest vortex (less energetic) fills the remaining area of the simulated

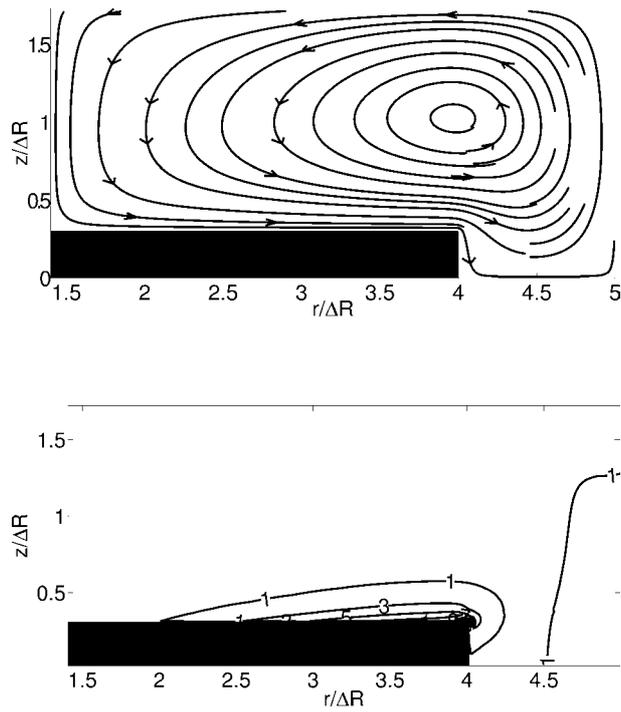


FIG. 2.4 – Streamlines on the top (2.4a) and contour levels of the non-dimensional viscous energy dissipation rate on the bottom (2.4b) for a Newtonian fluid,  $Re = 229$ .

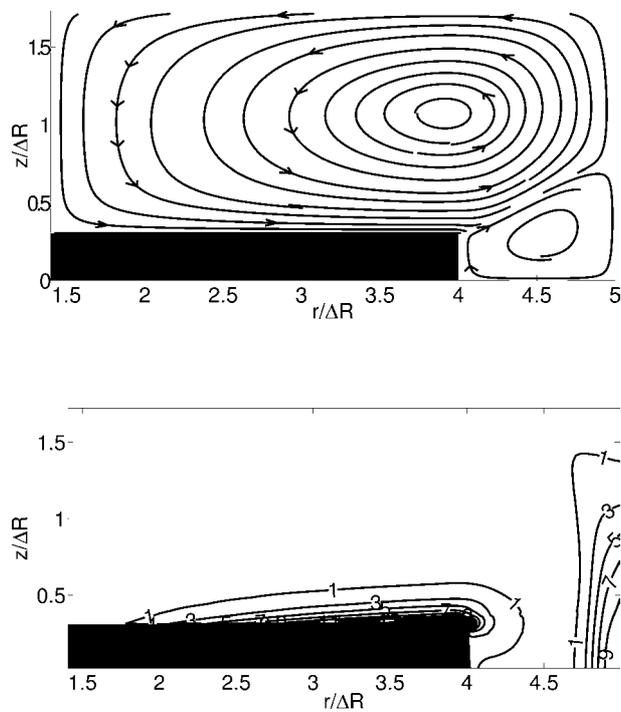


FIG. 2.5 – Streamlines on the top (2.5a) and contour levels of the non-dimensional viscous energy dissipation rate on the bottom (2.5b) for a Newtonian fluid,  $Re = 458$ .

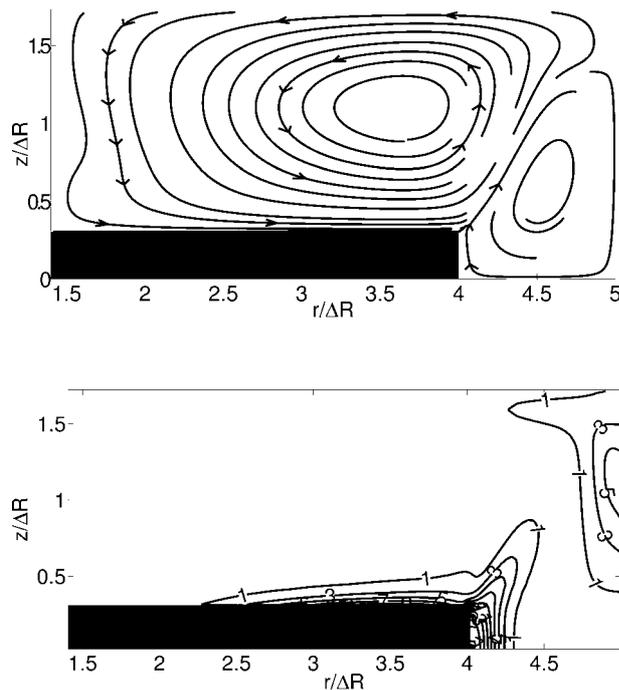


FIG. 2.6 – Streamlines on the top (2.6a) and contour levels of the non-dimensional viscous energy dissipation rate on the bottom (2.6b) for a Newtonian fluid,  $Re = 654$ .

domain. When the Reynolds number increases from 458 to 654, the small vortex expands. The strength of these secondary flows is an increasing function of the Reynolds number. The maximum intensity of the flow in the  $(r,z)$  plane is ranging between 20% and 25% of the tangential velocity of the disk tip. It is well known that further increase of the Reynolds number in the Taylor-Couette apparatus leads to an unsteady behaviour of the vortices (azimuthal wavy oscillation) but we did not observe this transition in our configuration. This second transition of the flow is unlikely to occur in the context of stirred media milling because the effective suspension viscosity is generally high and limits the Reynolds number to moderate values.

Similar stationary toroidal vortices have been already observed by several authors. Theuerkauf and Schwedes (1999) presented a comparison between simulations and experiments where the presence of secondary flows was clearly identified. These challenging measurements were made possible by using an equivalent transparent fluid. The numerical study of the turbulent flow was done by means of a  $k - \epsilon$  model. Their results were extended to a Reynolds number of 16000 in Theuerkauf and Schwedes (2000). But in all their results, a single vortex was observed in the  $(r,z)$  plane. Among papers devoted to the study of the hydrodynamics in the mill, only the study of Lane (1999) (simulations with open holes in the discs) has revealed the presence of several vortices as we observe for Reynolds numbers 458 and 654 (Fig. 2.5a and 2.6a). As mentioned by Theuerkauf and Schwedes (1999), the flow is controlled by the fluid behaviour between two discs. The mill geometries which slightly differ ( $\Delta R/R_c = 0.33$  and  $D_d/R_c = 0.8$  in their case) may explain the discrepancies between both results. Nevertheless, they found only one vortex in

their simulations whatever the Reynolds number. This is more likely due to the high effective viscosity induced by the  $k - \epsilon$  model. The effective viscosity in a Reynolds averaged model corresponds to the contributions of the molecular viscosity (around  $4.8 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  in their case) and the turbulent viscosity (probably one or two orders of magnitude larger than the physical viscosity). As a consequence their flow pattern for a Reynolds number of 16000 is similar to the flow pattern we obtained for a Reynolds number of 229.

Although the secondary toroidal flows are not very energetic, they play a major role in the grinding process. If the flow was purely azimuthal whatever the Reynolds number, the motion of the suspension would remain on closed pathlines around the shaft. The secondary flows force the suspension to follow complex trajectories all the way through the entire volume of the grinding chamber as mentioned by Blecher *et al.* (1995). The milling efficiency is enhanced by applying a net axial flow through the mill. It is known that the axial flow rate decreases the residence time distribution of particles in the mill according to Weller *et al.* (2000). Simulations were carried out to study the effects of a mean axial flow on the hydrodynamics. For that purpose the flow rate was varied from zero to 100 liters per hour (1.7 liter per minute) which is a typical operating condition for laboratory stirred media mills. Those simulations were performed out with a refined mesh and by imposing periodic boundary conditions between  $z = z_{1/2}$  and  $z = -z_{1/2}$  supplemented by an appropriate mean pressure gradient in the axial direction (See Fig. 2.2). No noticeable modification of the flow structure and velocity profiles were observed. It can be explained by the very low mean axial velocity even in the smallest sections of the mill corresponding to the gap between the disc tip and the chamber wall. The mean axial velocity corresponding to 100 L/h is less than 0.1% of  $V_\theta(r = R_d)$ . Therefore, only results with zero axial flow will be discussed in the remaining of the paper. The enhanced efficiency observed experimentally with this axial mean flow is probably related to the mixing of the suspension, especially close to the exit of the mill.

In figure 2.7, we compare the radial profiles of the non-dimensional tangential velocity  $V_\theta/V_\theta(r = R_d)$  in the vicinity of the disc ( $z = z_0$ ) and along the symmetry plane between two discs ( $z = z_{1/2}$ ), see the sketch in fig. 2.2 for the definition of  $z_0$  and  $z_{1/2}$ . The slope of the velocity distribution is modified when the ratio between inertia and viscous effects is increasing. Steep gradients of velocity are expected in the regions close to rotating walls as the boundary layer is becoming thinner. This effect is particularly obvious within the gap between the disc  $r/\Delta R = 4$  and the fixed wall  $r/\Delta R = 5$ . When the Reynolds increases from 229 to 654, the shape of the profile is conserved but the radial gradient of the tangential velocity is steeper in the vicinity of the disc whatever the plane. In the plane  $z = z_{1/2}$ , we observe the progressive motion of the fluid between the discs until an experienced region a solid body rotation flow (between  $r/\Delta R = 1.4$  and  $r/\Delta R = 2$ ) appears close to the shaft when the Reynolds number is increased from  $Re = 458$  to  $Re = 654$ . From  $r/\Delta R = 2$  to  $r/\Delta R = 4$  the tangential velocity is approximately constant but higher for  $Re = 654$  than for  $Re = 458$  and decreases toward zero on the fixed wall ( $r/\Delta R = 5$ ). Based on these observations, it is obvious that the radial gradient of the tangential velocity in the gap between the disc tip and the fixed chamber wall is very strong and is likely to be the dominant contribution to the viscous energy

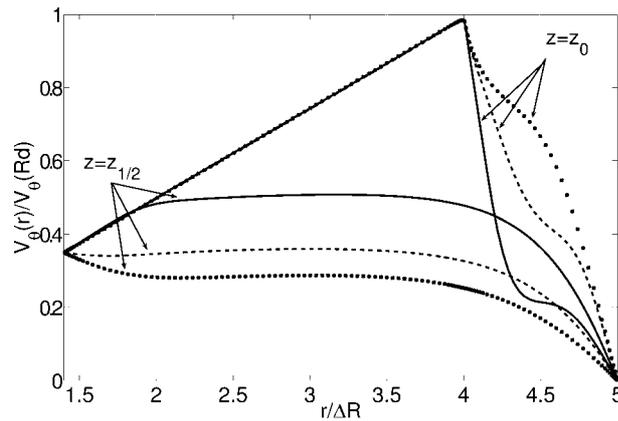


FIG. 2.7 – Radial profile of the tangential velocity at the surface of the disc ( $z = z_0$ ) and at the symmetry axis between two discs ( $z = z_{1/2}$ ) for  $Re = 654$  (continuous line),  $Re = 458$  (dashed line) and  $Re = 229$  (dotted line).

dissipation.

### Spatial distribution of the energy dissipation

The local rate of energy dissipation by viscous friction is a spatial indicator of the comminution efficiency (Blecher and Schwedes, 1996). Energy supplied to the stirrer is dissipated in regions of high shear forcing to collisions between grinding beads and particles. In these regions of the flow, collisions are expected to be very energetic and consequently the comminution to be the most efficient. In cylindrical coordinates the energy dissipation rate  $P = 2\mu(S : S)$  is written as follows :

$$\frac{P}{\mu_{eff}} = 2 \left( \frac{\partial V_r}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{V_r}{r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial V_z}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial V_\theta}{\partial r} - \frac{V_\theta}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial V_z}{\partial r} + \frac{\partial V_r}{\partial z} \right)^2 + \left( \frac{\partial V_\theta}{\partial z} \right)^2 \quad (2.12)$$

In a pure shear flow,  $P$  is related to the shear rate by the relation  $P = \mu_{eff} \dot{\gamma}^2$ . Note that for generalized Newtonian fluids (see definition in Eq. 2.6) Eq. 2.12 is still valid as long as the viscosity  $\mu_{eff}$  is evaluated from the local shear rate. The energy dissipation rate is scaled by  $P_{ref} = \mu_{eff} \dot{\gamma}_{ref}^2$  where  $\dot{\gamma}_{ref} = V_\theta(R_d)/\Delta R$  and we define  $P^* = P/P_{ref}$ . The figures 2.4b, 2.5b and 2.6b show the contours of  $P^*$  while the Reynolds number is increased. For the lower Reynolds number, the region of high dissipation rate is confined close to the disc where the gradient of the tangential velocity in the  $z$ -direction ( $\partial V_\theta/\partial z$ ) dominates the other components of the strain rate tensor. When the Reynolds number is increased, the enhancement of the second toroidal vortex is accompanied by a strong gradient in the  $r$ -direction ( $\partial V_\theta/\partial r$ ) between the disc and the fixed outer wall of the mill. This contribution becomes dominant by  $Re=654$ . In Fig. 2.4b, 2.5b and 2.6b isolines of  $P^*$  are closely related to contour levels of the shear rate. Typically, for the Newtonian fluids considered in our study, a shear rate of  $1000 \text{ s}^{-1}$  corresponds to a  $P^* = 6.25$ . High energy dissipation rates (corresponding to  $P^* > 1$ ) occur in two narrow areas : near the disc surface and along the chamber wall. Both regions become thinner as the Reynolds number increases. This contraction of high energy dissipation areas was first highlighted

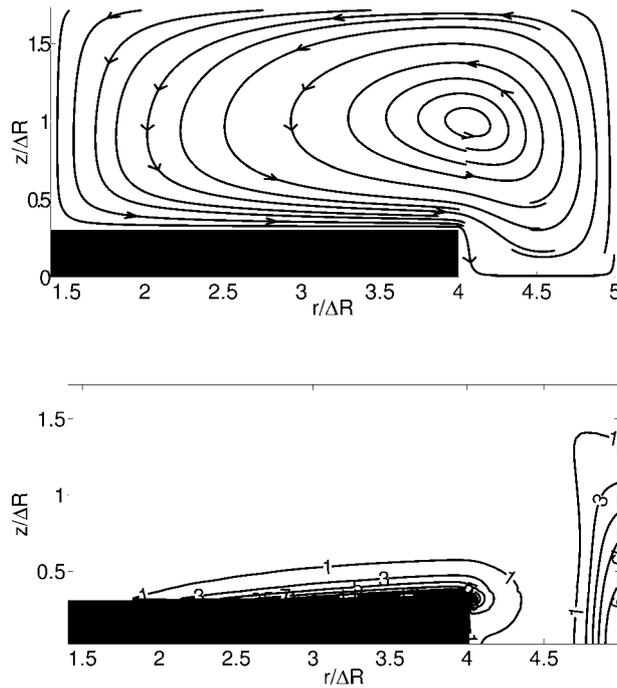


FIG. 2.8 – Streamlines on the top (2.8a) and contour levels of the non-dimensional viscous energy dissipation rate on the bottom (2.8b) for a shear-thinning fluid,  $Re = 422$ .

by Blecher et al. (1995). Together with this reduction of areas, the maximum of viscous energy dissipation strongly increases between  $Re = 229$  and  $Re = 458$  ( $P_{max}^* = 35$  for  $Re = 229$  and  $P_{max}^* = 80$  for  $Re = 458$ ), but decreases at  $Re = 654$  ( $P_{max}^* = 28$ ). Finally, we observe that the area close to the chamber wall moves toward the symmetry axis while the area near the disc moves toward the disc tip. This has to be related to the modification of the flow structure with increasing  $Re$ .

## 5.2 Hydrodynamics of non-Newtonian fluids

During the grinding process, comminution of feed particles may lead to dramatic modifications of the suspension. If a size reduction occurs, surface interactions between particles or between particles and beads will strongly evolve. Fluid behaviour becomes more and more shear-thinning, and as volume fractions are high, shear-thickening behaviour may also appear. Then it was of particular interest to analyse effects of such non-Newtonian characteristics. The consistency  $m$  and the fluid index  $n$  characterize the non-Newtonian behaviour of the fluid (cf. eq. 2.6. When  $n < 1$  the fluid has a shear-thinning behaviour and the effective viscosity  $\mu_{eff} = m\dot{\gamma}^{n-1}$  is a decreasing function of the shear rate. If  $n > 1$  is, the fluid will be shearthickening.

### Shear-thinning fluid

We selected the value  $n = 0.9$  and varied the pseudo-consistency from  $m/\rho_{eff} = 1.10^{-3} m^2 s^{n-2}$  to  $m/\rho_{eff} = 5.10^{-4} m^2 s^{n-2}$  corresponding to the figures 2.8 and 2.9 where the generalized Reynolds number is respectively equal to 422 and 845.

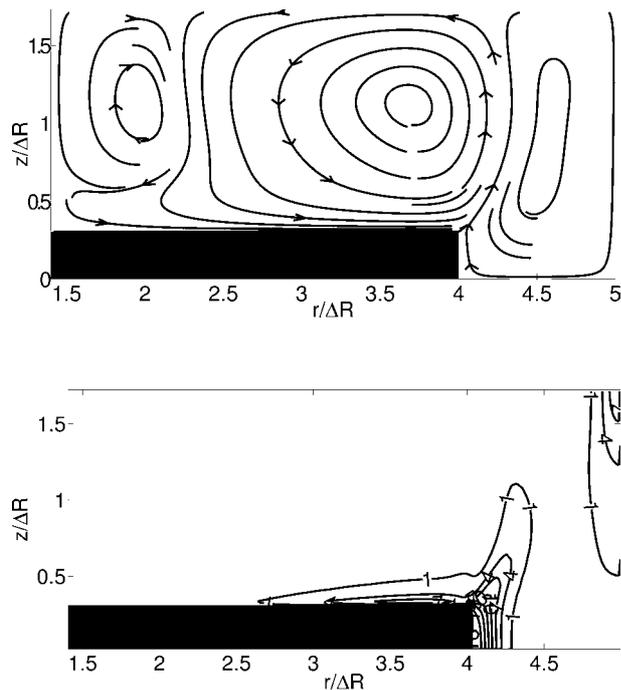


FIG. 2.9 – Streamlines on the top (2.9a) and contour levels of the non-dimensional viscous energy dissipation rate on the bottom (2.9b) for a shear-thinning fluid,  $Re = 845$ .

Even though the fluid index has been slightly varied from the Newtonian behaviour, the flow patterns are significantly modified especially the secondary flows. Indeed, the configuration corresponding to  $Re = 422$  leading to streamlines in Fig. 2.8 is similar to the Newtonian flow pattern observed for  $\nu_{eff} = 1.10^{-3} m^2.s^{-1}$ . The strength of the secondary flow ranges within the same order of the magnitude (20 to 25% of the maximum azimuthal velocity). But, the simulations corresponding to  $m/\rho_{eff} = 5.10^{-4} m^2.s^{n-2}$  and  $n = 0.9$  lead to the formation of a third vortex in the  $(r, z)$  plane. This new vortex has a very low rotation intensity typically less than 2% of the reference velocity scale. This evolution may be related to an increase of the generalized Reynolds number. The local reduction of the effective viscosity in regions of high shear rate induces a centrifugal forcing. As inertia is gradually increased, secondary flows are able to develop.

As shown in fig. 2.4b and 2.8b, the areas of high viscous dissipation rate (from  $P^* = 1$  to its maximum value) have shrunk when the Newtonian fluid of effective viscosity  $\nu_{eff} = 1.10^{-3} m^2.s^{-1}$  has been substituted by a shear-thinning fluid ( $m/\rho_{eff} = 1.10^{-3} m^2.s^{n-2}$  and  $n = 0.9$ ). In the same time,  $P_{max}^*$  has increased : for  $Re = 422$ ,  $P_{max}^* = 56$  instead of 35 for the newtonian case. Thus, the areas of high energy dissipation are more spread. Similarly, areas of high viscous dissipation rate have shrunk when the Newtonian fluid of effective viscosity  $\nu_{eff} = 5.10^{-4} m^2.s^{-1}$  has been substituted by a shear-thinning fluid described by  $m/\rho_{eff} = 5.10^{-4} m^2.s^{n-2}$  and  $n = 0.9$ . But in this case,  $P_{max}^*$  decreases ( $P_{max}^* = 22$  instead of 80 for the corresponding newtonian case).

Again, we tested the influence of a net axial flow rate of  $85 L/h$  on the structure and intensity of secondary flows and maximal viscous dissipation rate contours. We

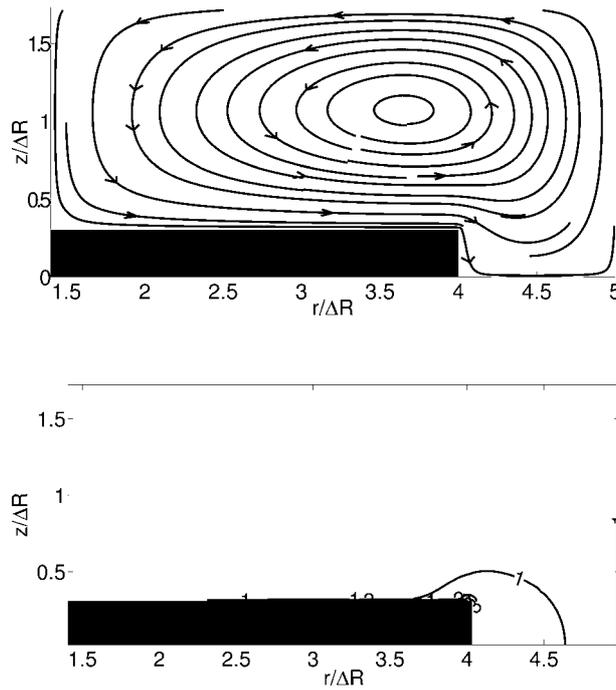


FIG. 2.10 – Streamlines on the top (2.10a) and contour levels of the viscous energy dissipation rate on the bottom (2.10b) for a shear-thickening fluid,  $Re = 67$ .

found that the modifications were only minor.

### Shear-thickening fluid

This behaviour is encountered in very high concentrated suspensions experiencing high shear rates (Barnes, 1989). The results of the simulation (Fig. 2.10) with a shear-thickening fluid (consistency  $m/\rho_{eff} = 1.10^{-3} m^2 s^{n-2}$  and  $n = 1.2$ ) are compared to the Newtonian behaviour corresponding to a viscosity  $\nu_{eff} = 1 \cdot 10^{-3}$  (Fig. 2.4). The shape of the streamlines are almost similar but the maximum velocity in the  $(r, z)$  plane is twice lower. Again, this can be interpreted in terms of the reduction of the generalized Reynolds number (67 for the shear-thickening fluid and 229 for the Newtonian fluid). Consequently, the regions of high shear rate are drastically reduced to a small area along the disc tip. Any influence of the flow rate is noticeable.

## 6 Determination of collision characteristics

Based on simulations of the global dynamics of the effective fluid in the mill chamber, we propose an analysis of the local flow experienced by grinding beads. We aim at providing a quantitative prediction of collisions intensity of the beads which is the energy available for comminution of the feed particles. Indeed, the purpose of this section is to estimate the kinetic energy, the geometric configuration and the range of non-dimensional parameters characterizing the impact of two neighbouring beads embedded in the suspension.

## 6.1 Different types of collision

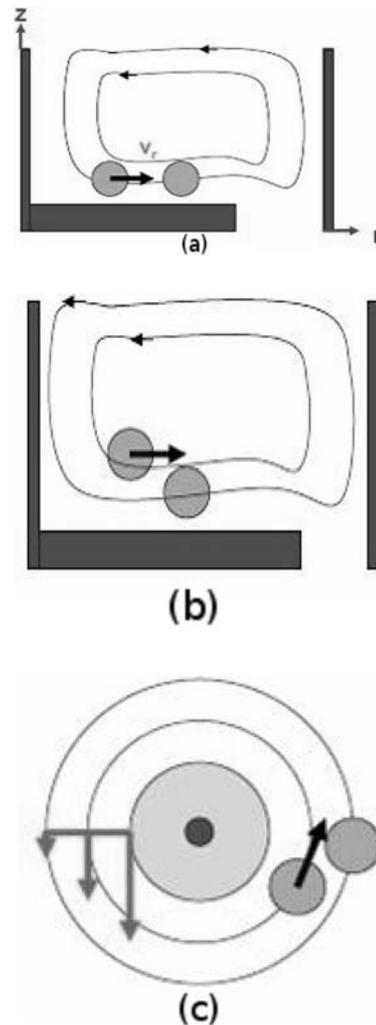


FIG. 2.11 – Sketches of a frontal collision between two beads following the same streamline (2.11a), an oblique collision between two beads following different streamlines in the  $(r, z)$  plane (2.11b) and an oblique collision between two beads having circular trajectories in the  $(r, \theta)$  plane (2.11c).

The comminution of the feed particles in a stirred media mill may be inferred to two distinct mechanical phenomena. The particles are either squeezed between two colliding grinding beads or between a bead and a wall. Centrifugal force of the suspension is related to the tangential mean flow induced by the high speed rotating shaft and discs. Particles and beads in the vicinity of the outer wall of the mill chamber ( $r/\Delta R = 5$ ) are experiencing a high pressure. This contribution to the process can be evaluated by analyzing the magnitude of the pressure at the wall for the equivalent fluid. However, Kwade (1999) found that this particular mechanism was not dominant. So we will consider only the second mechanism which is induced by bead-bead collisions. Two types of collision between grinding beads can be distinguished. The first configuration of impact is called frontal collision : the relative velocity of the beads and the beads center line are aligned. This configuration

is encountered when the beads are moving along the same streamline but with different velocities (fig. 2.11a). In all the other cases, collisions can be called oblique collisions because of the inducing by local shearing of the flow. The beads follow in distinct parallel streamlines (fig. 2.11b and 2.11c). In the  $(r,z)$  plane, the presence of secondary flows is forcing oblique and frontal collisions. The intensity and the orientation of the impact are related to the local flow properties. These collisions may occur simultaneously within the mill in the  $(r,z)$  plane and in the  $(r,\theta)$  plane. Due to the fluid rotation in the azimuthal direction only oblique collisions are expected in the  $(r,\theta)$  plane (fig. 2.11c).

## 6.2 Impact parameters

For determining the physical characteristics of beads impact within the mill, we need to estimate the relative velocity when the contact occurs. Based on the simulations of the effective fluid flow which models the overall dynamics of the suspension, the prediction of collision properties is related to the rate of deformation of the fluid flow. Indeed, any flow field can be split into two distinct contributions : strain deformation and solid body rotation, respectively symmetric and antisymmetric parts of the velocity gradient tensor  $\nabla\mathbf{v}$ . Obviously, pure rotation of the fluid is unable to provoke any bead collisions. Therefore, the relative velocity is only a consequence of a local rate of deformation. This velocity gradient may be multiplied by the typical distance corresponding to the contact of two beads, i.e the bead diameter. It means that collision velocities between grinding beads in the mill are supposed to be modelled by relative velocities between spheres moving under the flow of the equivalent fluid. The magnitude of the velocity gradients can be obtained using the flow fields of the previous section and by calculating the eigenvalues of the strain rate tensor  $S$  (defined by eq. 2.8). The eigenvalues of the three-dimensional deformation rate tensor multiplied by the bead diameter give a measure of the local relative velocities. The local rotation of the flow is given by the rotation rate tensor  $\Omega$  defined by

$$\Omega = \frac{1}{2} (\nabla\mathbf{v} - \nabla^t\mathbf{v}) \quad (2.13)$$

The type of collisions, frontal or oblique is related to the flow kinematics ( $S$  and  $\Omega$ ). Indeed, if the magnitudes of the deformation and rotation rate are similar it means that the collisions will be shear-induced. Shear flow is a particular combination of rotation and deformation rates with equal magnitude. On the contrary, if the magnitude of the eigenvalues of the deformation tensor dominate, collisions will be frontal.

The physics of liquid-solid suspensions is complex and the collision of solid particles embedded in a viscous fluids is a central mechanism in the comminution process. Particles are trapped in the active volume between two grinding beads experiencing an impact. The available kinetic energy for breaking fine particles is depending on the hydrodynamic regime of the collision. This can be mainly characterized by two non-dimensional numbers, namely the collisional Reynolds  $Re_{coll}$  and Stokes  $St_{coll}$  numbers. The Reynolds number is based on the viscosity of the particle suspension  $\mu_{susp}$ , the density of the particle suspension  $\rho_{susp}$ , the relative velocity

$\Delta U$  between two grinding beads separated by the bead diameter  $D_{GM}$ .

$$Re_{coll} = \frac{D_{GM}\rho_{susp}\Delta U}{\mu_{susp}} \quad (2.14)$$

This will help to identify if the relative motion between the spheres is dominated by viscous or fluid inertia effects. The Stokes number compares two time scales : the viscous relaxation time of the bead and the characteristic time based on the collision velocity  $R_{GM}/\Delta U$ . The viscous relaxation time can be approximated using Stokes drag by  $m_{GM}/3\pi\mu_{susp}D_{GM}$  where  $m_{GM}$  is the mass of a grinding bead. Therefore, after rearrangement, the Stokes number is :

$$St_{coll} = \frac{D_{GM}\rho_{GM}\Delta U}{9\mu_{susp}} \quad (2.15)$$

In general, the value of the impact Stokes number may vary from few hundreds in gas-solid suspension leading to elastic collisions (often termed as dry collisions) to less than unity for collisions of beads in viscous liquids. The critical Stokes number characterizing the occurrence of a rebound is in the range of 10-15 according to Gondret et al. (2002) and Legendre et al. (2006). Below this critical value the fluid dissipates all the kinetic energy of the relative motion and the beads do not bounce. Therefore, in the context of grinding in a stirred media mill, we expect collisional Stokes numbers significantly larger than the critical value for rebound meaning that if the collisions occur, energy will be still available for breakage of the feed particles.

### 6.3 Maximum relative velocity and stress intensity in Newtonian fluids

The first stage of the analysis consists in estimating the maximum impact velocity in the whole domain without distinction of the type of collisions (frontal or oblique collisions). This will give the order of magnitude of the kinetic energy available for the comminution process. The maximum of the relative velocities  $\Delta U$  does not follow a constant evolution with the Reynolds number due to the complex nature of the flow. We obtained approximately 5% of the velocity at the disc tip  $V_{\theta}(r = R_d)$  for Newtonian flows, corresponding roughly to  $0.3m/s$  when the Reynolds numbers ranges between 229 and 654. These values agree with the relative velocities found experimentally in Mende (2005) which range from 0.2 to 5 m/s. Similarly, the kinetic energy of all collisions has the same trend and reaches a maximum of  $3.2 \cdot 10^{-6}J$  (calculated with  $\rho_{eff}$ ). This value may appear very low but actually more than 75% of the domain corresponds to impact velocities lower than 1% of  $V_{\theta}(R_d)$ .

Kwade et al. (1996) proposed to scale the intensity of collisions by the reference stress intensity  $SI_{ref}$  defined as

$$SI_{ref} = \rho_{GM}d_{GM}^3V_{\theta}^2(r = R_d) \quad (2.16)$$

$SI_{ref}$  is proportional to the maximum kinetic energy of the beads. It provides a scaling for the maximum energy available in the comminution process. Multiplied by a stress number  $SN$  which evaluates the number of efficient collisions (corresponding at least to the capture of one particle), we can estimate the energy available for

breaking particles, called specific energy  $E_s$ . According to Kwade and Schwedes (1997), Stenger et al. (2005b), the stress intensity  $SI$  determines the size of the product particles for a given  $E_s$ . Indeed a decrease of  $SI$ , related to a smaller bead diameter for example, induces an increase of the contact number and then an increase of  $SN$  (and vice versa).  $SI$  and  $SN$  control the process performance. Optimal values of  $SN$  and  $SI$  exist : too many collisions at low energy are unable to break particles and also few contacts at high energy are poorly efficient.

Based on the determination of  $\Delta U$ , it is now possible to evaluate the stress intensity number  $SI$  defined below in which the disc tip velocity has been replaced by the maximum relative velocity between two neighbouring beads :

$$SI = \rho_{GM} d_{GM}^3 \Delta U^2 \quad (2.17)$$

In the figures 2.12a, 2.12b and 2.12c we show the contours of stress intensity levels

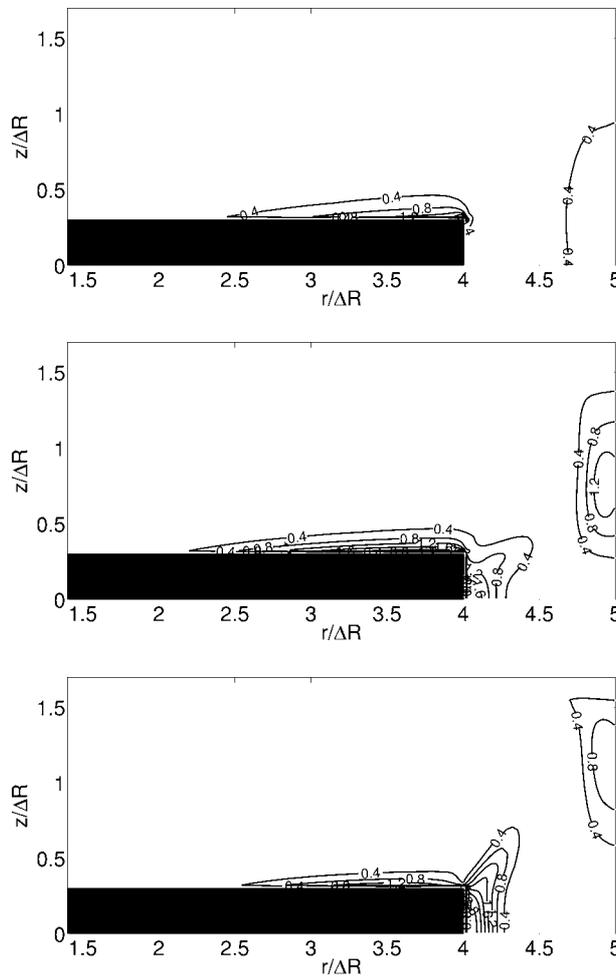


FIG. 2.12 – Contour levels of  $10^3 SI/SI_{ref}$  for a Newtonian fluid, for  $Re = 229$  (2.12a),  $Re = 458$  (2.12b),  $Re = 654$  (2.12c) from top to bottom.

scaled by the reference stress intensity  $SI_{ref}$  given by 2.16. For clarity,  $SI/SI_{ref}$  values have been multiplied by a constant factor  $10^3$  as their maximum values ranges between  $2.2 \cdot 10^{-3}$  and  $3.1 \cdot 10^{-3}$ . Typically,  $SI/SI_{ref} = 9 \cdot 10^{-4}$  corresponds to a shear

rate of  $1000s^{-1}$ . Consequently,  $SI_{ref}$  is 3 orders of magnitude larger than the effective stress intensity involved in the collision. Two main areas of high intensity appear again near the disc and along the chamber wall where velocity gradients are the most intense. It is also correlated to the spatial distribution of the viscous dissipation rate because collisions are mainly related to the presence of shear flows. Indeed the first area, limited by the 0.4-isoline for example, expands and moves toward the disc tip when the Reynolds number increases from 229 to 458. Between Reynolds numbers 458 and 654, this zone shrinks and moves toward the symmetry axis between the two discs close to the disc tip while the maximum value increases revealing that localized collisions are very intense for a Reynolds number equal to 654. On the contrary, the second area which moves toward the symmetry axis between two discs reduces as the Reynolds number increases (the maximum of the scaled stress intensity reaches a maximum for  $Re=458$ ). Finally, the maximum relative velocity in the  $(r,z)$  plane is measured in the simulation based on the eigenvalues of the deformation tensor  $S$ . The maximum values range from 3% to 3.5% of the tangential velocity at the disc tip  $V_{\theta}(r = R_d)$ . Therefore, secondary flows may play an important role in the comminution process. Also, they allow particles to move through areas of high shear rate in the gap between the chamber wall and the disc tip where particles are milled due to strong gradients of the tangential velocity.

## 6.4 Maximum relative velocity and stress intensity in non-Newtonian fluids

### Shear-thinning fluids

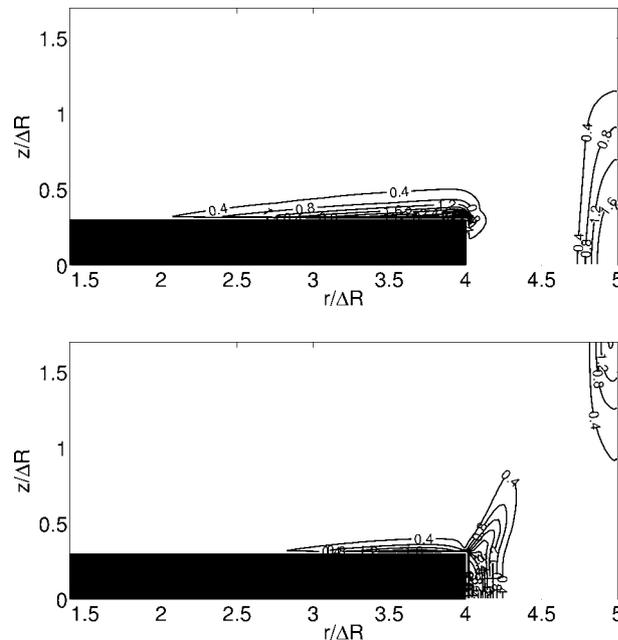


FIG. 2.13 – Contour levels of  $10^3 SI/SI_{ref}$  for a shear thinning fluid, for  $Re = 422$  on the top (2.13a),  $Re = 845$  (2.13b) on the bottom.

sented on figures 2.13a ( $Re = 422$ ) and 2.13b ( $Re = 845$ ). Similarly to Newtonian fluids, the area of intense stress intensity near the disc develops at the disc tip and reduces along the disc wall when the Reynolds number is increased from 422 to 845. The area of high  $SI/SI_{ref}$  at the chamber wall moves from the gap between the chamber wall and the disc tip to the symmetry axis between the two discs. We observe that the ratio  $SI/SI_{ref}$  is higher in both simulations than for the Newtonian cases (maximum value  $7 \cdot 10^{-3}$  for  $Re = 422$  and  $4.1 \cdot 10^{-3}$  for  $Re = 845$ ). Therefore, collisions are expected to be more intense around the disc. Maximum relative velocities range between 8.35% ( $0.5m/s$ ) and 6.44% ( $0.39m/s$ ) of  $V_{\theta}(r = R_d)$  respectively whereas they reach 5.52% and 3.14% of  $V_{\theta}(r = R_d)$  if we restrict the analysis to the  $(r,z)$  plane. Compared to the simulations with a Newtonian fluid, secondary flows are less efficient in the comminution process when the Reynolds number is increased. The ratio between the total energy available for breakage and its related value solely to the secondary flows varies from 4 to 9 when the Reynolds number evolves between 422 and 845. Finally, it is interesting to note that the increase of the Reynolds number makes both areas of high stress intensity smaller. Indeed, relative velocities are lower than 1% of  $V_{\theta}(r = R_d)$  in 75% (for  $Re = 422$ ) and 83% (for  $Re = 845$ ) of the simulation domain.

### Shear-thickening fluid

Contour levels of  $10^3 SI/SI_{ref}$  for a shear-thickening fluid are reported in figure 2.14 corresponding to  $Re = 67$ . The maximum values ( $10^3 SI/SI_{ref} > 0.1$ ) are confined in a very narrow area between the disc tip and the chamber wall. The maximum of  $SI/SI_{ref}$  reaches  $0.87 \cdot 10^{-3}$  which is much smaller than those obtained for the other fluids. Indeed the maximum relative velocity is only 2.96% of  $V_{\theta}(r = R_d)$  ( $0.18m/s$ ) and 1.72% when we restrict the analysis to the  $(r,z)$  plane. That can be explained by the high viscosity of the equivalent suspension. Consequently, the energy of collision in the mill is weak ( $1 \cdot 10^{-6}J$ ). The ratio comparing the total available energy to the corresponding energy with the secondary flows in the  $(r,z)$  plane is now 9.3.

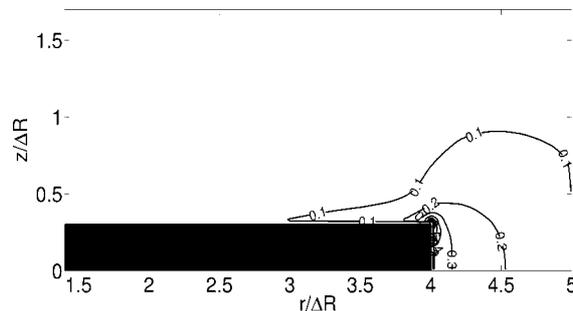


FIG. 2.14 – Contour levels of  $10^3 SI/SI_{ref}$  for a shear thickening fluid,  $Re = 67$ .

## 6.5 Prediction of colliding conditions

We stressed in section 6.2 that  $St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  help describing the hydrodynamic interactions of two grinding beads colliding. Both non-dimensional numbers depend

TAB. 2.3 – Characteristic  $St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  deduced from the simulations.

Fluid type	$Re$	$\Delta U$ (m/s)	$\mu_{susp}$ (Pa.s)	$St_{coll}$	$Re_{coll}$
Newtonian	229	0.31	0.274	0.30	0.6
	458	0.28	0.137	0.55	1.1
	654	0.34	0.096	0.95	2
Shear-thinning	422	0.50	0.173	0.77	1.8
	845	0.39	0.086	1.21	2.7
Shear-thickening	67	0.18	0.688	0.07	0.05

mainly on the relative velocities of the beads  $\Delta U$  (described in the previous section) and on the dynamic suspension viscosity  $\mu_{susp}$ .  $\mu_{susp}$  must be distinguished from the effective suspension viscosity  $\mu_{eff}$ . Indeed, the collision between two beads occurs in a suspension of particles. The colliding beads are experiencing the effect of an effective surrounding media composed only with the carrying fluid and the particles (viscosity  $\mu_{susp}$ , see section 4.3). Therefore we can estimate maximum  $St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  for beads of  $400\mu m$  diameter ( $6000 kg/m^3$  for  $ZrO_2$  beads) based on the value of  $\mu_{susp}$ . In table 2.3, we report the values of  $St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  corresponding to each flow configuration characterized by  $Re$  (eq. 2.9) and fluid nature.

$St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  are lower than the values measured for inertial particles experiencing actual rebounds.  $St_{coll}$  is below the critical value meaning that, if a collision occurs, the energy available for this collision will be mainly dissipated in the fluid during the near field hydrodynamic interactions. Moreover, based on the  $Re_{coll}$  values, fluid inertia and viscosity effects are of the same order. Probably, a higher rotation rate of the shaft would increase the values of  $St_{coll}$  and  $Re_{coll}$  for the same bead diameter.

Based on these results, we can assume that particles breakage is not forced by binary bead-bead collision but more likely by collective compression and friction. Indeed,  $St_{coll}$  being lower than the critical value of rebound, beads are experiencing long time enduring contacts favorable to attrition of the particles. Working at high concentration and high rotation frequency is advantageous while centrifugal force will induce the presence of high pressure zones in the flow.

## 7 Conclusion

The global hydrodynamics in a stirred media mill have been investigated by means of numerical simulations. The characteristic Reynolds number and the fluid nature (Newtonian or power law fluids) have been largely varied. We showed the existence of secondary flows constituted by several vortices of different sizes. These flows originate from a centrifugal instability due to the rotation of the discs. The effect of a weak axial flow is negligible on the flow structure compared to the strong rotation of the discs. We observed an increase of the viscous dissipation rate with the generalized Reynolds number (varying from 67 to 845). Although secondary flows and the mean axial flow are much less energetic than the tangential flow, they are very useful to mix the suspension. The particles of the suspension move through

all the zones of high shear rates where they are broken by the contacts of grinding beads induced by strong velocity gradients. The main contribution of this study is an original method to estimate impact velocities from the velocity fields. This information is a keystone in understanding the mechanisms occurring during the collision of two grinding beads. We modelled the suspension as a non-Newtonian fluid and investigated the evolution of the velocity gradients. Maximum relative velocities are obtained by computing the eigenvalues of the deformation rate tensor. Therefore, we determined effective impact parameters. Based on this analysis, we showed that collisions induced by the strong shear in the disc plane  $(r,\theta)$  are the most intense and as a consequence the most efficient for the fragmentation of suspended particles since the plane  $(r,z)$  contains a low part of the total energy of collision and frontal collisions can not occur in the plane  $(r,\theta)$  because of purely azimuthal flow. Nevertheless, the corresponding maximum velocities reach approximately 10% of the tangential velocity at the disc tip. Finally, based on these estimations of impact velocities, the physical nature of the collision between two grinding beads have been analyzed. The simulations predict the existence of low impact Stokes number showing no bead-bead rebounds. So, the milling of particles must be the result of compression and attrition generated by the friction of layers of grinding beads.

## 8 Acknowledgments

We are very grateful for the support of the National Research Agency under the program ACI-Nanobroyage, the local support of the cooperative structure of joint research FERMAT and the regional high-performance computing center CALMIP.

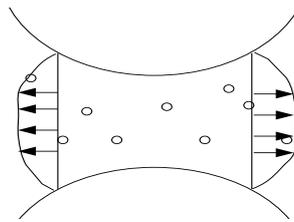
## 9 Bilan

L'hydrodynamique globale dans un broyeur à billes agité a été étudiée par le biais de la simulation numérique. Des écoulements de fluides newtoniens ont été comparés à des écoulements de fluides rhéoépaississants ou de fluides rhéofluidifiants, pour une même vitesse de rotation. Nous avons montré pour chaque cas l'existence de courants secondaires formés d'un ou plusieurs vortex. Ces courants secondaires sont créés par l'effet centrifuge généré par la rotation des disques de l'agitateur. Ils ne sont pas sensibles à l'ajout d'un débit axial du fait de la prédominance du mouvement tangentiel. Chaque type d'écoulement ayant été caractérisé par un nombre de Reynolds généralisé de 67 à 845, nous avons observé une augmentation du taux de dissipation visqueuse avec une augmentation de ce nombre de Reynolds. Bien que les courants secondaires et le flot dû au débit axial soient moins énergétiques que l'écoulement tangentiel, ils participent activement au mélange de la suspension. Ils permettent en effet aux particules à broyer d'être transportées vers des zones de forte vitesse de cisaillement, où elles sont broyées par des billes de broyage mises en mouvement par d'intenses gradients de vitesse.

La principale contribution de cette étude est l'utilisation d'une méthode originale pour estimer des vitesses de collisions à partir des champs de vitesse. Cette information est capitale pour identifier les mécanismes qui interviennent lors d'une collision entre deux billes de broyage. Les vitesses relatives maximales ont été calculées à partir des valeurs propres du tenseur des taux de déformation. Grâce à cette analyse, nous avons montré que les collisions créées par cisaillement, dans le plan du disque  $(r, \theta)$ , sont les plus intenses, et donc les plus propices à la fragmentation des particules, confortant ainsi les prédictions de Kwade (1999) et rejoignant les conclusions de Sinott et al. (2006) et Cleary et al. (2006) (voir chapitre 1, section 1.6). Nous avons aussi trouvé que ces vitesses de collision ne dépassaient pas 10% de la vitesse tangentielle en bout de pale. La connaissance de cet ordre de grandeur nous a permis de caractériser une collision entre deux billes de broyage, au travers des nombres de Reynolds et de Stokes de collision. Le nombre de Reynolds de collision nous indique que l'écoulement autour des billes est faiblement inertiel. Le nombre de Stokes de collision prédit une absence de rebond après contact. Cela signifie que le broyage des particules résulte de mécanismes de compression et d'attrition engendrés par la friction entre couches de billes de broyage.

# Chapitre 3

## Etude expérimentale du rapprochement de deux billes de broyage : moyens et méthodes



**Introduction** L'objectif de ce chapitre est de présenter l'approche expérimentale qui a été mise en oeuvre pour étudier les instants précédant une collision entre deux billes de broyage. Les vitesses d'approche ont été estimées à partir de l'analyse locale de l'hydrodynamique d'un fluide équivalent dans la chambre de broyage (cf. chapitre 2). Après une présentation du principe de mesure retenu, nous décrirons le banc expérimental et les moyens de mesure utilisés, PIV et ombroscopie, puis le post-traitement des données qui a été effectué. Nous terminerons par la présentation d'une expérience complémentaire qui nous a permis de reproduire la capture de particules de différents diamètres dans la zone active entre deux billes de broyage.

### 1 Objectifs et méthodologie

Le premier chapitre qui donne quelques éléments sur les broyeurs à billes agités et le second qui étudie l'influence des propriétés d'un fluide équivalent sur l'intensité des chocs dans le broyeur ont mis en lumière le manque de connaissances des mécanismes locaux responsables du broyage des particules. A ce jour, le broyeur à billes agité reste quelque peu une boîte noire. Seules des études paramétriques à l'échelle du broyeur ont été menées, conduisant à la construction de nombres tels que SI (Stress Intensity) et SN (Stress Number) (Chap I Paragraphe 1.1.4) qui sont issus de grandeurs globales comme la vitesse en bout de pale. Ainsi le produit

SI\*SN évalue l'énergie disponible pour fragmenter les particules en suspension. Or la connaissance des paramètres physiques et physico-chimiques qui contrôlent l'efficacité d'une collision entre deux billes de broyage, donc qui contrôlent le nombre de particules broyées lors d'un impact, peut en retour permettre d'optimiser ceux qui gouvernent le fonctionnement global du broyeur. Du fait de la taille réelle des billes de broyage et de leur concentration dans le broyeur, il est impossible de mesurer in situ ces paramètres. Seul un modèle expérimental, isolant deux billes de broyage et réalisé à une échelle supérieure à 1, permet d'accéder à une analyse fine du drainage du fluide induit par leur rapprochement et donc d'analyser le mouvement de particules en suspension en fonction de la vitesse d'approche, de la nature du fluide, ou encore de l'angle d'impact de ces billes. En effet, si la micro-PIV s'est développée ces dernières années, les problèmes qu'elle pose nous auraient conduit à des mesures très peu précises (positionnement et guidage de la sphère, mouvement Brownien des traceurs...). Le choix d'une expérimentation à une échelle plus grande, tout en respectant les conditions de similitude, s'est imposé.

Il est bien évident que cette approche ne prend pas en compte les phénomènes liés à la très petite taille des particules dans le procédé réel. En fin de procédé, c'est-à-dire lorsqu'on est proche de la taille limite observée (de l'ordre de  $100\text{ nm}$  à  $1\mu\text{m}$ ), les forces interparticulaires ont alors un rôle non négligeable. Nous prenons malgré tout en compte cet aspect de façon macroscopique en utilisant des fluides dont le comportement rhéologique est semblable à celui observé expérimentalement dans le procédé réel. En effet, les suspensions concentrées peuvent avoir un comportement newtonien ou rhéofluidifiant (voire même localement rhéoépaississant) et il n'est pas rare que leur comportement évolue au cours du procédé de broyage. A titre d'exemple dans le cas du carbonate de calcium, il a été observé que la suspension ayant initialement un comportement newtonien, adopte au cours du processus de réduction de taille un comportement rhéofluidifiant car les forces interparticulaires jouent un rôle de plus en plus important dans la suspension (Frances et Anne-Archard, 2004). Cette approche répond donc à notre objectif qui est d'analyser l'influence de l'hydrodynamique sur les limitations du procédé. Elle reste par ailleurs valable en début de procédé, période au cours de laquelle les particules à broyer ont encore des tailles suffisantes (variables suivant les matériaux mais bien supérieures au  $\mu\text{m}$ ) pour que les forces interparticulaires ne jouent pas un rôle significatif.

C'est donc le principe d'une expérimentation à plus grande échelle qui a été retenu pour cette approche expérimentale dont l'objectif est d'analyser l'hydrodynamique du fluide interstitiel lors du rapprochement de deux billes de broyage. Pour cela, nous avons utilisé une méthode de vélocimétrie par images de particules pour avoir accès au champ de vitesse dans le fluide entre les billes, et donc au transport des particules à broyer.

Un schéma de principe du dispositif expérimental est présenté sur la figure 3.1. Il est constitué d'une cuve dans laquelle sont plongées les deux sphères. La sphère inférieure est immobile tandis que la sphère supérieure est approchée, de façon frontale ou avec un décalage, à vitesse imposée (voir figure 3.2). Cette expérimentation est inspirée d'un travail de Thèse effectué à l'Institut für Partikeltechnik au sein du T.U. Braunschweig (Mende, 2005). Lors d'un séjour de trois semaines dans ce laboratoire (partenariat franco-allemand Procope), nous avons eu l'occasion de discuter

des différentes techniques de mesure qui avaient été mises en oeuvre dans ce travail.

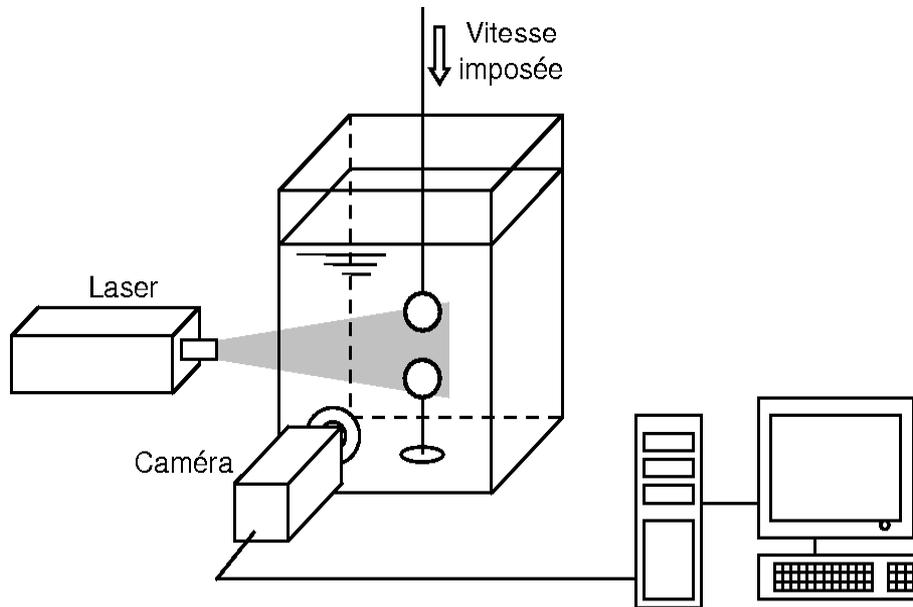


FIG. 3.1 – Schéma de principe du banc expérimental.

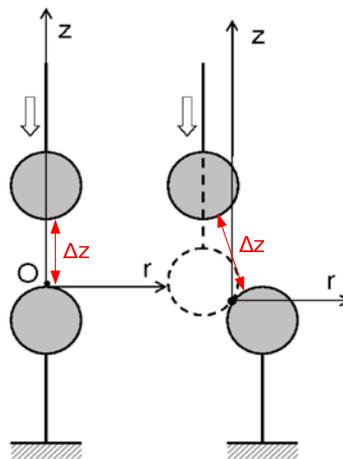


FIG. 3.2 – Approches frontale et décalée, système d'axes choisi.

Dans la suite de ce chapitre nous allons présenter de façon plus détaillée l'installation expérimentale, son dimensionnement et son fonctionnement, ainsi que les différents moyens de mesure que nous avons mis en oeuvre : les mesures de vitesse dans un plan vertical par PIV, l'ombroscopie qui nous a permis de déterminer de façon précise la position de la sphère mobile à un instant donné de la séquence de mesure et enfin une expérience complémentaire qui a consisté à réaliser un suivi de particules déposées sur la sphère fixe lorsque la sphère mobile s'approche.

## 2 Le modèle expérimental

Le principe d'une expérience consiste à effectuer une descente de la sphère mobile à vitesse imposée et à réaliser durant ce temps des mesures du champ de vitesse à l'aide d'une chaîne de mesure PIV à haute fréquence. Il suffit ensuite d'extraire deux images correspondant à un temps inter-image adéquat et à l'écartement des sphères souhaité pour obtenir un champ de vitesse. C'est la succession de ces champs de vitesse que nous avons par la suite utilisée pour reconstituer des trajectoires de particules. Les trois dispositifs à contrôler et à synchroniser lors d'une séquence sont le dispositif assurant le mouvement de la sphère (Charlyrobot), le laser et la caméra vidéo. Ces séquences doivent être également synchronisées avec les images d'ombroscopie, réalisées en différé, qui nous permettent de déterminer avec précision l'emplacement de la sphère mobile à un instant donné.

### 2.1 Dimensionnement

Deux arguments majeurs ont conduit à choisir le diamètre des sphères, qui conditionne tout le modèle expérimental. En premier lieu, ce dimensionnement a été basé sur une similitude en nombre de Reynolds. En effet les phénomènes hydrodynamiques en jeu lors de la collision entre deux billes dans le broyeur ne sont identiques à ceux mis en jeu dans notre modèle expérimental que si les nombres de Reynolds de collision sont égaux. On doit donc vérifier l'égalité suivante :

$$\frac{D_b \Delta U}{\nu_{susp\ reelle}} = \frac{D_{sphere} V_a}{\nu_{susp\ choisie}} \quad (3.1)$$

où  $D_b$  est le diamètre des billes de broyage,  $\Delta U$  la vitesse relative maximale d'approche de deux billes de broyage, qui a été estimée à partir de l'analyse locale de l'hydrodynamique dans le broyeur (0.5m/s, cf. *chapitre 2*),  $\nu_{susp\ reelle}$  la viscosité cinématique équivalente d'une suspension de particules à broyer,  $D_{sphere}$  le diamètre des sphères de l'expérience,  $V_a$  la vitesse d'approche des sphères dans le modèle expérimental,  $\nu_{susp\ choisie}$  la viscosité cinématique du fluide employé dans le modèle expérimental. Différentes contraintes telles que la gamme de viscosité des fluides utilisés, ou les vitesses d'approche réalisables pour les sphères, guident les choix effectués sur les dimensions. Le diamètre des sphères est donc le paramètre sur lequel il est le plus facile de jouer pour respecter l'égalité précédente.

Le deuxième facteur intervenant dans le choix du diamètre des sphères est le rapport d'environ 1000 qui existe entre le diamètre d'une bille de broyage et celui d'une particule à broyer en fin de procédé. En outre, nous avons choisi que les particules de traceur utilisées pour mettre en oeuvre la vélocimétrie par images de particules jouent le rôle des particules à broyer du procédé. Notre choix s'est porté sur des traceurs PIV comportant de la rhodamine encapsulée afin d'améliorer la qualité des mesures. Or ces particules sont généralement disponibles en diamètre  $20\mu m$ .

L'ensemble de ces considérations nous a conduit à utiliser des sphères d'un diamètre d'environ 60 mm. En pratique, deux types de sphères ont été utilisés : diamètres 56 et 60 mm.

La sphère mobile est déplacée verticalement par une plateforme de translation de haute précision (1/400mm). Cette plateforme de translation, de marque CharlyRobot, délivre une vitesse d'approche allant de 1mm/s à 80mm/s. Pour vérifier

que la sphère descendait systématiquement à la distance imposée et pour contrôler la vitesse de consigne, chaque série de descente de la sphère supérieure a été accompagnée d'une prise d'images par ombroscopie (cf. section 3.3). Ceci nous a permis de déterminer jusqu'à quelle position la vitesse de consigne est respectée. En effet, le CharlyRobot ne s'arrête pas instantanément : lorsque la vitesse d'approche est élevée, on observe une phase de décélération. La figure 3.3 montre l'évolution de l'entrefer en fonction du temps à une vitesse de  $5\text{mm/s}$  pour laquelle la phase de décélération est négligeable. A une vitesse de  $29.5\text{mm/s}$ , la variation de vitesse apparaît à partir d'une distance entre sphères d'environ  $1.8\text{mm}$  (fig. 3.4). Lors des séquences de mesure, le CharlyRobot est arrêté juste avant que les sphères ne viennent au contact, afin de ne pas les abîmer. En pratique, la distance entre les sphères lors de l'arrêt est d'environ  $150$  à  $300\ \mu\text{m}$ .

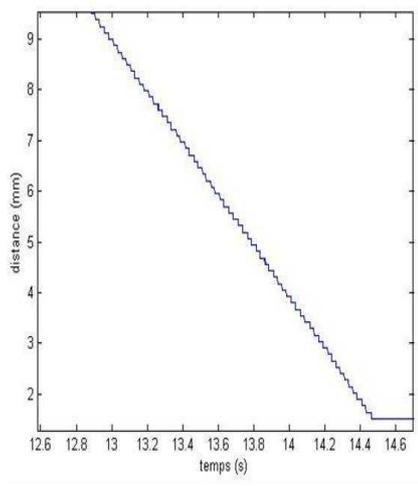


FIG. 3.3 – Evolution temporelle de la distance inter-sphères pour une vitesse de  $5\text{mm/s}$ .

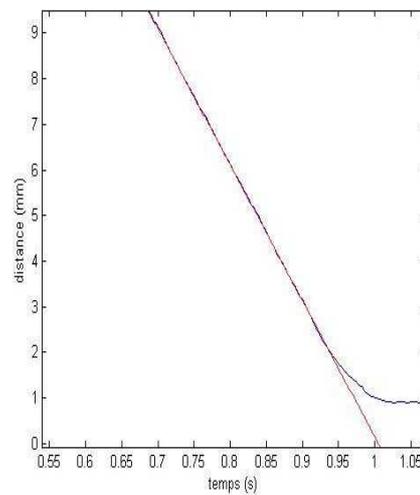


FIG. 3.4 – Evolution temporelle de la distance inter-sphères pour une vitesse de  $29.5\text{mm/s}$ .

Une fois le diamètre des sphères choisi, la cuve a été dimensionnée de telle sorte que la proximité des parois influe le moins possible sur le drainage du liquide tout en assurant une bonne qualité aux images prises par la caméra. En effet, plus l'épaisseur de fluide à traverser depuis le phénomène à observer jusqu'au capteur de la caméra est grande, plus l'image est bruitée. De même, la lumière qui éclaire la zone d'intérêt ne doit pas être trop diffusée. Là encore un compromis raisonnable s'est établi autour de 3 rayons de sphère de part et d'autre des deux sphères lorsqu'elles sont situées sur l'axe central de la cuve. Pour confirmer ce choix, une étude préliminaire sur un champ d'observation large ( $13\text{ cm}$  de côté) a été menée afin de vérifier le développement de l'écoulement autour des sphères de diamètre  $56\text{ mm}$ . Un exemple d'écoulement est visible sur la figure 3.5 pour un nombre de Reynolds de drainage de 29 (nombre de Reynolds défini au paragraphe 4.4). Le profil radial de la composante radiale  $V_r$  de la vitesse, qui est la plus sensible à l'influence des parois, entre les abscisses  $r = 0$  et  $r = 2.5R$ , est présenté sur la figure 3.6 à la côte  $z = 0.04R$ . Ce graphe atteste que la configuration ne nuit pas au drainage puisque  $V_r$  atteint 0 pour  $r = 2.5R$  environ alors que les parois se trouvent à  $r = 4R$  de part et d'autre des sphères.

La cuve en verre de section carrée  $24 \times 24\text{cm}$  fait  $60\text{ cm}$  de hauteur. Au centre

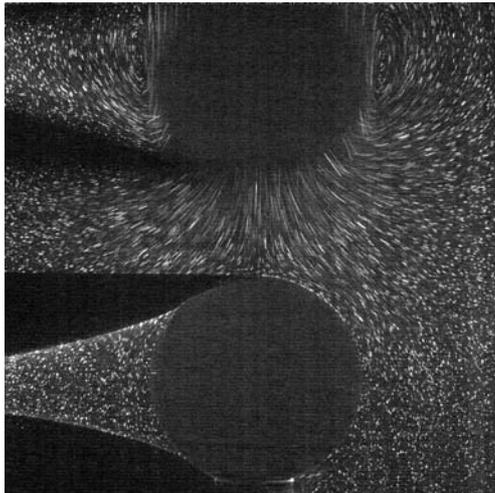


FIG. 3.5 – Visualisation de l'écoulement autour des sphères, dans l'eau, pour  $Re = 29$ .

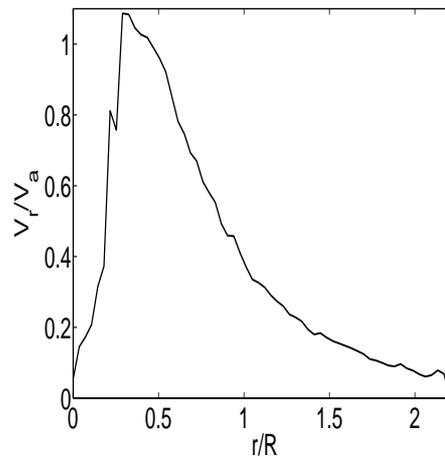


FIG. 3.6 – Profil de la vitesse radiale à  $z = 0.04R$  dans l'eau pour  $\Delta z = R/10$  et  $Re = 29$  ( $r = 0$  au sommet de la sphère inférieure).

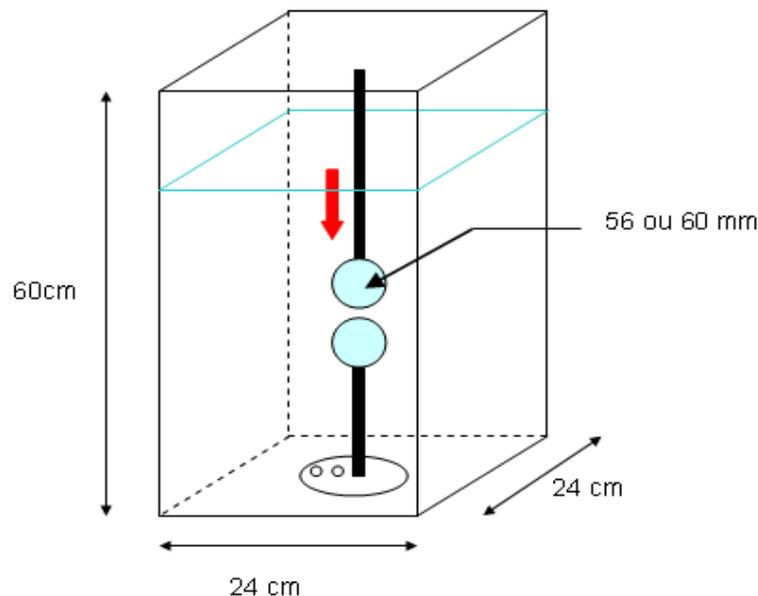


FIG. 3.7 – Dimensions de la cuve pour l'étude du rapprochement des deux sphères.

de sa base se trouve un socle muni de plusieurs pas de vis alignés dans lesquels se fixe une tige verticale portant la sphère immobile. Celle-ci se trouve à 15cm du fond de la cuve (voir fig. 3.7). Les trous dans le socle autorisent le décalage de la sphère afin d'étudier des collisions frontales et décalées. Le décalage entre les diamètres verticaux de chacune des sphères, varie entre  $R/2$  et  $2R$ . Ce dernier cas correspond à la reproduction d'un choc purement tangentiel (voir fig. 3.2).

## 2.2 Nature des sphères utilisées

La nappe laser doit traverser les sphères. Celles-ci doivent être aussi transparentes que possible afin d'absorber un minimum d'énergie et ainsi, ne pas s'échauffer. En effet, un échauffement trop important générerait un mouvement de convection naturelle qui perturberait le phénomène étudié. Lors de premiers tests avec des boules en résine, on a effectivement constaté que les vitesses de convection à la surface de la sphère fixe étaient de l'ordre de grandeur des vitesses d'approche, ce qui n'était pas acceptable. Dans le cas d'une approche frontale, on a alors utilisé des sphères pleines en cristal de diamètre 56 mm et d'indice de réfraction 1.5 alors que celui de l'eau est 1.33. Les sphères se transforment alors en lentilles convergentes. Des zones d'ombre sont ainsi créées derrière les sphères (voir fig. 3.8). Les particules de traceur PIV n'y recevant pas de lumière, la mesure du champ de vitesse dans ces zones est rendu impossible. Ceci est sans conséquence pour un choc frontal puisque la moitié droite de l'image suffit pour décrire le champ de vitesse sur la totalité de la prise de vue, l'écoulement étant axisymétrique. Il n'en est pas de même pour un choc oblique qui reproduit une situation de choc par cisaillement. Dans ce cas, l'une des possibilités consisterait à réaliser deux séquences de mesure, l'une avec le laser incliné vers le bas et l'autre avec le laser vers le haut. Ces deux séquences permettraient alors d'obtenir l'intégralité du champ recherché. Toutefois cela double la quantité de travail pour une même configuration.

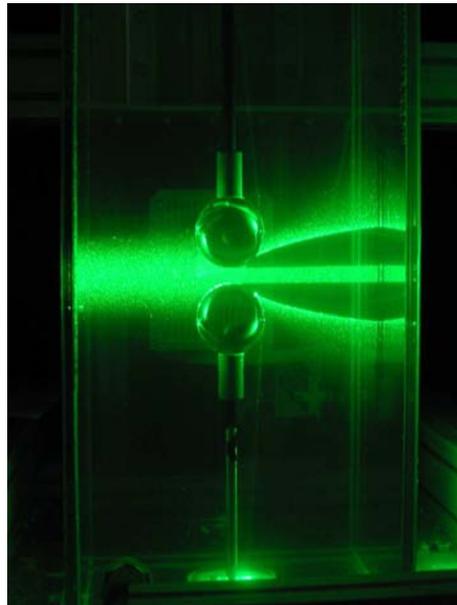


FIG. 3.8 – Visualisation des zones d'ombre derrière des sphères en cristal traversées par la nappe laser.

Nous avons choisi une autre approche consistant à utiliser des sphères creuses en polystyrène (PS) transparent qui étaient remplies avec le même fluide que la cuve. Ces sphères ont un diamètre de 60mm et sont constituées de deux demi-sphères s'emboîtant l'une dans l'autre. Seule cette zone de raccord devient une source d'absorption de la lumière laser (voir la figure 3.9), ce qui autorise des mesures de part et d'autre du point de contact, contrairement au cas des sphères en cristal. Une

orientation unique du laser, soit vers le haut soit vers le bas en fonction du décalage que l'on veut imposer entre les sphères (à savoir  $R/2$ ,  $R$ ,  $3/2R$  et  $2R$ ) et donc de la zone d'intérêt qu'il faut préserver, a suffit (voir la figure 3.10). Ce choix nous permet en outre de ne faire qu'une seule acquisition pour avoir l'intégralité du champ que l'on souhaite investiguer.



FIG. 3.9 – Visualisation du passage de la nappe laser à travers les sphères en polystyrène transparent.

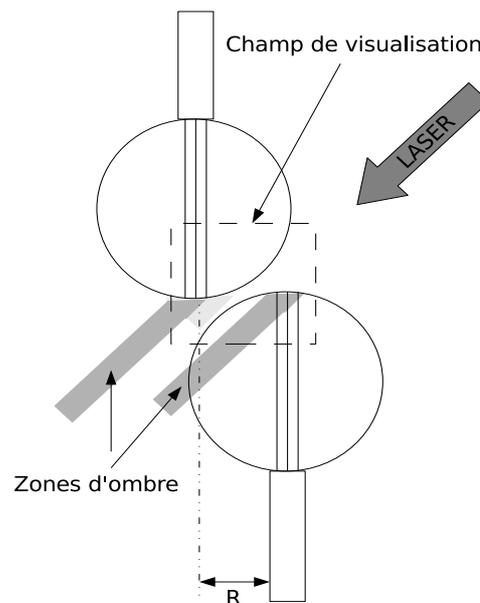


FIG. 3.10 – Schématisation des zones d'ombre en gris foncé, dues à la présence du pas de vis des hémisphères en plastique

La première campagne de mesures a été consacrée aux rapprochements frontaux et réalisée avec les sphères en cristal. Les sphères en polystyrène ont été utilisées pour l'étude des chocs décalés lors de la deuxième campagne de mesures.

### 2.3 Choix des suspensions

Nous détaillons dans ce paragraphe deux aspects concernant les fluides utilisés. D'une part, la préparation des suspensions eau-particules de traceur est importante pour obtenir une bonne qualité de mesure avec les particules choisies. D'autre part, la préparation et la caractérisation de solutions de fluides rhéofluidifiants doit permettre de reproduire les comportements rhéologiques observés expérimentalement sur des suspensions de particules en cours de broyage (Frances et Anne-Archard, 2004).

La suspension constitue un élément essentiel dans le dispositif. En effet, de sa transparence dépend la qualité du signal lumineux reçu par le capteur de la caméra. D'une concentration la plus homogène et la plus grande possible en particules de traceur fluorescent dépend la qualité de la mesure du champ de vitesse. Il faut donc trouver un compromis adéquat entre un nombre élevé de particules qui assure une très bonne résolution spatiale du traitement PIV et un nombre plus modéré pour que la caméra ne reçoive pas un signal diffus.

L'un des objectifs à remplir lors du choix des traceurs PIV est qu'ils suivent parfaitement le fluide porteur et restent uniformément répartis. Nous verrons que notre choix s'est porté sur des particules comportant de la rhodamine encapsulée dans des billes de 1 à  $20\mu\text{m}$  en polyméthylmétacrylate (PMMA, densité 1.19) ou polystyrène (PS, densité 1.05).

Le caractère homogène de la suspension est assuré en évitant la sédimentation et l'agglomération des particules. Ajuster la densité de la suspension s'est donc avéré indispensable afin qu'elles ne décantent pas, en particulier au cours des 15 à 30 minutes d'attente entre chaque séquence de mesure. Non seulement cela assure une quantité constante de particules en suspension mais cela élimine aussi une vitesse de sédimentation qui peut biaiser la mesure du champ de vitesse. La manière la plus simple d'ajuster la densité du fluide est d'utiliser du chlorure de sodium. Une densité telle que celle du PMMA correspond à la saturation de l'eau en sel. Ceci nous a donc conduit à utiliser des particules de Rhodamine/Polystyrène qui sont moins denses. Différents tests nous ont ensuite conduit à la valeur de 80g/L de NaCl pour équilibrer les densités fluide-particules. Le polystyrène présente par contre l'inconvénient de s'agglomérer facilement. Pour éviter cela, nous avons ajouté à la suspension un tensio-actif, du Triton X100 ( $C_8H_{15}C_6H_4(OC_2H_4)_9OH$ ) à une concentration de 0.1g/L. En outre, la cuve a été réalisée en verre pour que les particules n'y adhèrent pas. Par mesure de précaution, chaque nouvelle journée de manipulation commençait par une heure d'agitation pour ré-homogénéiser la suspension et casser d'éventuels agrégats de particules. A l'inverse, après chaque séquence de mesure la suspension était laissée au repos 15 minutes, temps au bout duquel le calcul PIV a montré que le champ de vitesse résiduel était négligeable devant les vitesses de drainage du fluide.

Le comportement des suspensions concentrées (dans un broyeur eau et particules à fragmenter) étant très souvent rhéofluidifiant, comme dans le cas du carbonate de

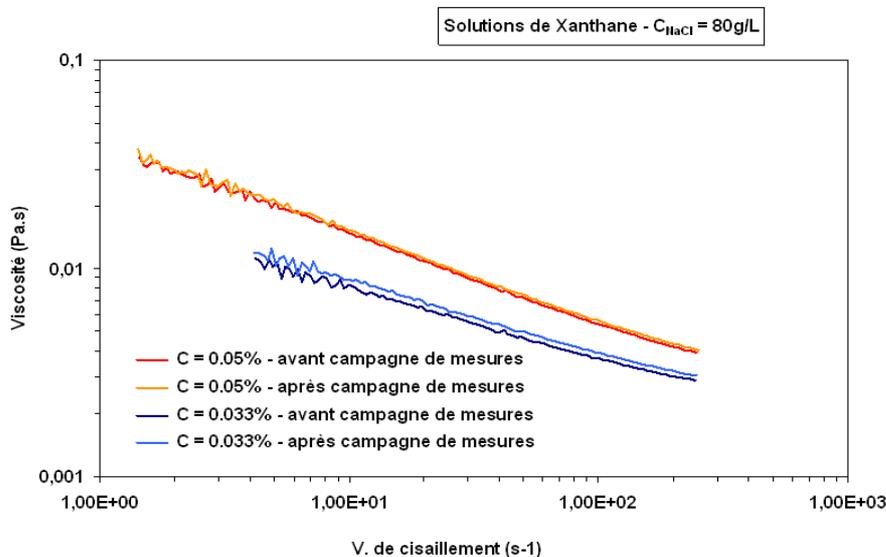


FIG. 3.11 – Rhéogrammes des deux solutions de Xanthane étudiées.

calcium (Frances et Anne-Archard, 2004), l'un des objectifs de l'approche expérimentale était également d'analyser l'influence du comportement rhéofluidifiant sur l'écoulement entre les sphères qui se rapprochent. Une solution de Xanthane possède des propriétés rhéofluidifiantes. Le Xanthane est un polymère de grand poids moléculaire, couramment utilisé comme épaississant dans l'industrie agroalimentaire et qui présente l'avantage d'être très stable. Deux solutions de Xanthane (Satiaxane CX910, DEGUSSA Texturant Systems) à des concentrations de 0.05% et 0.033% ont été testées pour étudier l'influence de ce caractère rhéofluidifiant. Les suspensions avaient ainsi les propriétés suivantes : une consistance  $m = 0.0395 \text{ Pa.s}^n$  et un indice  $n = 0.583$  pour la première, une consistance  $m = 0.0164 \text{ Pa.s}^n$  et un indice  $n = 0.68$  pour la seconde. Les rhéogrammes de caractérisation sont présentés sur la figure 3.11.

Il est important de noter que le respect de la similitude est effectué dans le cas des solutions de Xanthane avec un nombre de Reynolds généralisé similaire à celui qui est employé pour caractériser l'écoulement d'un fluide en loi puissance dans une conduite (encore appelé nombre de Reynolds de Metzner-Reed) :

$$Re = 8^{1-n} \left( \frac{4n}{3n+1} \right)^n \rho \frac{\Delta U^{2-n} D_b^n}{m} \quad (3.2)$$

où  $\Delta U$  est la vitesse relative entre les billes et  $D_b$  le diamètre de celles-ci. Les mesures se déroulant sur plusieurs semaines, l'eau qui est à la base de toutes les suspensions utilisées est traitée avec un anti-algues (azide de sodium  $NaN_3$  à raison de 100 ppm). On a cependant observé une déstabilisation des suspensions induite par une agglomération des particules de rhodamine et en conséquence par l'apparition d'agrégats qui se formaient en quelques heures seulement et qui sédimentaient alors rapidement. Ce phénomène a été attribué au vieillissement des suspensions mères de particules PS/Rhodamine.

Enfin, pour donner un ordre de grandeur des quantités de rhodamine utilisées, les petits champs qui sont les plus sensibles à l'ensemencement puisque le facteur d'agrandissement est plus important, ont nécessité 1.5g de suspension à 30% de particules de rhodamine pour 30 litres de solution, quelle que soit la nature du fluide utilisé.

### 3 Mesures par PIV et ombroscopie

#### 3.1 La vélocimétrie par image de particules

Cette méthode consiste à mesurer dans un plan de l'écoulement le déplacement de particules-traceurs éclairées par une nappe laser entre deux images séparées par un temps donné. Leurs vitesses sont calculables dès lors que l'on sait reconnaître un groupe de particules d'une photographie à l'autre et que la calibration est connue (rapport entre la longueur réelle et le nombre de pixels correspondant sur l'image). L'installation expérimentale et la vue schématique de l'ensemble de la chaîne de mesure sont représentées sur les figures 3.12 à 3.14.

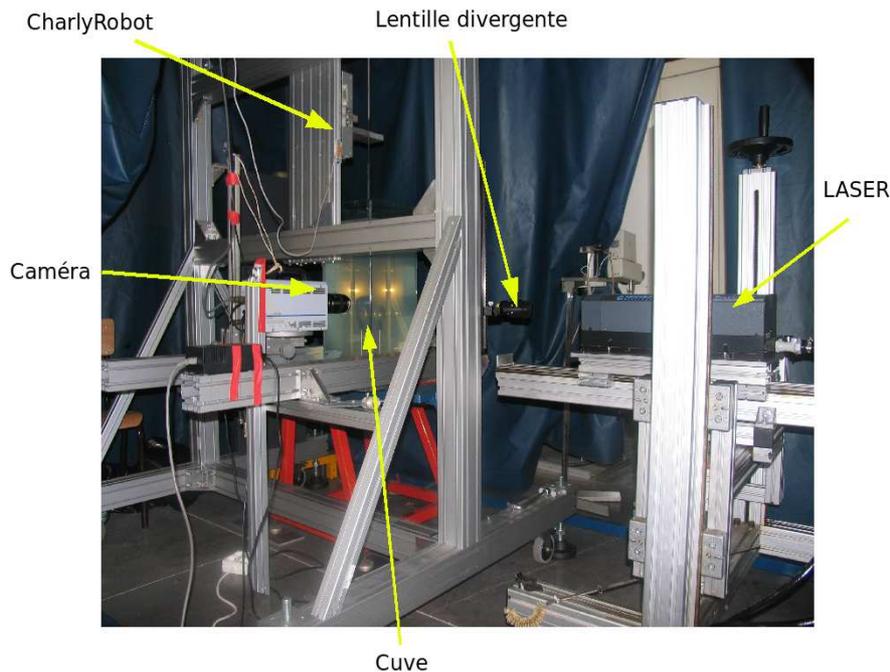


FIG. 3.12 – Installation expérimentale pour l'étude des chocs frontaux.

La nappe laser est verticale et passe par les plans diamétraux des sphères. La caméra est disposée perpendiculairement à la nappe laser. Ce positionnement doit être très précis afin de ne pas biaiser le calcul du champ de vitesse (surestimation des vitesses sur la partie de l'image correspondant à la distance la plus grande entre le capteur et le plan laser). Pour faciliter l'exploitation, la verticalité de la caméra doit également être contrôlée avec soin. Dans notre cas, la photographie des particules éclairées par la nappe laser est enregistrée à une cadence de 400 Hz durant toute la phase de descente de la sphère supérieure. Nous avons utilisé une caméra rapide

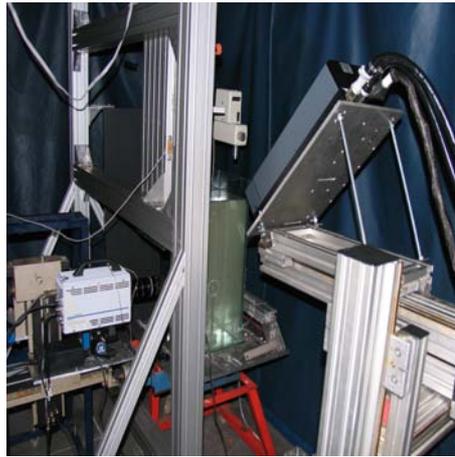


FIG. 3.13 – Installation expérimentale pour l'étude des chocs décalés.

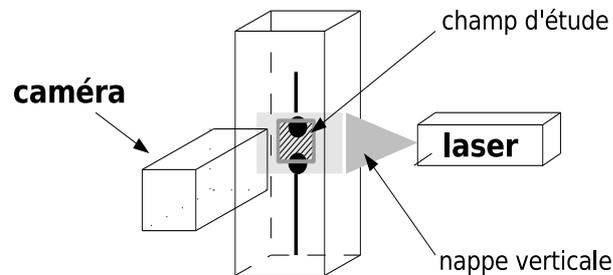


FIG. 3.14 – Schéma de la chaîne de mesure.

Ultima APX-RS avec une résolution de 1024 pixels par 1024 pixels. Le laser utilisé est un Pegasus qui produit un rayon vert (527 nm) d'une puissance de 10 W et d'une énergie de 10 mJ. Le faisceau laser traverse ensuite une lentille divergente qui le transforme en une nappe d'épaisseur modulable ( $500\mu\text{m}$  dans notre cas), de sorte que les particules-traceurs de  $20\mu\text{m}$  de diamètre ont une faible probabilité de sortir de ce plan laser entre deux prises de vue. En fonction des objectifs utilisés, les images PIV représentent soit des grands champs pour étudier la phénoménologie globale de l'écoulement ( $13\text{cm} \times 13\text{cm}$ , objectif 60mm), soit des petits champs pour extraire le maximum d'information du champ de vitesse (de  $1.5\text{cm} \times 1.5\text{cm}$  à  $3.1\text{cm} \times 3.1\text{cm}$ , objectif 150mm avec ou sans double bague-allonge). Sur les 6144 images acquises par la caméra pendant les 15s que dure chaque tir laser, on ne retient dans la séquence de mesure finale que les images comprises entre l'entrée de la sphère en haut du champ et l'arrêt de cette même sphère le plus proche possible de la sphère fixe. Les particules que nous avons utilisées ne sont pas de simples traceurs mais des micro-billes contenant de la rhodamine. Eclairées par la source laser, ces particules fluorescentes réémettent dans une longueur d'onde différente (584 nm). Ceci permet, en équipant l'objectif de la caméra d'un filtre passe-haut correctement choisi, de ne voir que les seules particules de rhodamine. On évite ainsi les réflexions multiples susceptibles d'éblouir la caméra et d'endommager le capteur. Ceci permet d'améliorer de façon très nette la qualité des mesures PIV au voisinage des parois.

Une fois les images collectées, le calcul du champ de vitesse repose sur un algorithme détaillé dans un paragraphe ultérieur.

### 3.2 Synchronisation des différents éléments de la chaîne de mesure

Bien que l'utilisation d'une chaîne de mesure PIV soit maintenant courante, cela ne doit pas faire oublier le caractère particulier de notre expérience : le déclenchement de la caméra est synchronisé avec le tir laser et il faut en plus que la caméra soit synchronisée avec le CharlyRobot. En effet, la sphère supérieure est mise en mouvement suffisamment loin de la sphère immobile pour que l'écoulement autour de la sphère mobile soit établi. Donc il n'y a qu'au moment où la sphère mobile entre dans le champ de la caméra que l'étude présente un intérêt. Un déclencheur électromagnétique activé par le passage du CharlyRobot sur lequel a été fixé un aimant, envoie un signal déclenchant l'acquisition des images. On a vérifié que le déclenchement s'effectuait de manière extrêmement reproductible grâce à un suivi systématique à l'oscilloscope du délai entre le signal reçu par le déclencheur et celui reçu par la caméra. Toute la synchronisation entre le laser et la caméra est effectuée par une unité programmable de synchronisation de LaVision (PTU) installée sur un PC et commandée par Davis 7.3.

### 3.3 Ombroscopie

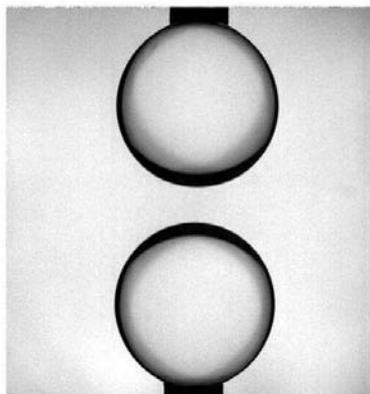


FIG. 3.15 – Visualisation par ombroscopie en grand champ du rapprochement des sphères.

Chaque série de mesure de champ de vitesse a été accompagnée d'une prise d'images par ombroscopie à la même cadence que les images PIV. Ainsi, à une photographie de la séquence de mesure correspond une image réalisée par ombroscopie. De ces dernières, on extrait les contours des sphères (cf. fig. 3.15) pour ensuite contrôler leur bon alignement au cours de la descente, déterminer l'évolution de la distance inter-sphères, et enfin examiner jusqu'à quelle position la vitesse de consigne est respectée. Par la suite, la localisation rigoureuse des sphères sur chaque image PIV

permettra d'éliminer des vecteurs vitesse qui se trouvent à l'intérieur des sphères. La réalisation d'une ombroscopie est assez simple : on dispose derrière la cuve un panneau lumineux qui délivre une lumière blanche parfaitement uniforme (panneau de LED '*backlight*'). La reconnaissance précise des sphères demande un traitement ultérieur précis qui consiste à optimiser le seuil de détection et à appliquer certains filtres pour faciliter la recherche de l'équation du cercle passant par la frontière de chacune des sphères.

## 4 Post-traitement des données

Le traitement des données s'appuie sur un programme développé à l'IMFT et dénommé PIVIS (Maurel, 2000). Mais avant de l'utiliser pour calculer un champ de vitesse, il est nécessaire d'améliorer la qualité des images.

### 4.1 Pré-traitement avant PIVIS

Deux corrections ont dû être apportées aux images : une augmentation du contraste et la suppression du bruit de fond. La première a consisté à dilater l'échelle des niveaux de gris à l'aide d'une routine Matlab ("*imadjust*"), de 1024 niveaux (résolution de la caméra) à 65500. Ceci a permis le passage d'une maille de calcul de 32 pixels à une maille de calcul de 16 pixels et ainsi nous avons gagné en précision sur la mesure des champs de vitesse. Une fois renforcé le contraste des images, on peut soustraire les pixels qui ont un niveau de gris identique sur chacune des images d'une série de mesure, indépendamment du déplacement de la sphère mobile. Ces pixels de niveau de gris constant sont liés au bruit de fond qui peut provenir soit d'une accumulation de particules de rhodamine dans une zone de l'image, soit de la résolution de la caméra. Cette correction n'a pas été systématique car toutes les séries de mesures n'ont pas nécessité ce traitement. Elle a été indispensable dans les expériences avec le Xanthane qui diffuse beaucoup plus la lumière que l'eau. A titre d'exemple, les figures 3.16a et 3.16b montrent la répartition spatiale de ces pixels inertes. La figure 3.16 montre un grand champ dans une expérience avec de l'eau. On voit que, malgré nos précautions dans la préparation des suspensions, quelques particules de rhodamine se sont déposées sur la sphère inférieure, après avoir sédimenté. Ce dépôt émettant un signal lumineux bien plus important que celui émis par une particule isolée, il fausse le calcul du champ de vitesse qui repose sur la pondération de l'intensité lumineuse émise par les points voisins. Quant à la figure 3.17, elle illustre la difficulté à obtenir une bonne qualité d'images dans le cas de la solution la plus concentrée en Xanthane. L'image est brouillée par une diffusion importante de la lumière réémise par les particules et par une transparence de la suspension qui s'amointrit lorsque la concentration en Xanthane augmente. Les cercles qui apparaissent sur la gauche des images sont des reflets de l'objectif de la caméra, collé pour l'occasion à la paroi de la cuve. Néanmoins, des champs de vitesse ont pu être calculés avec ce type d'image.

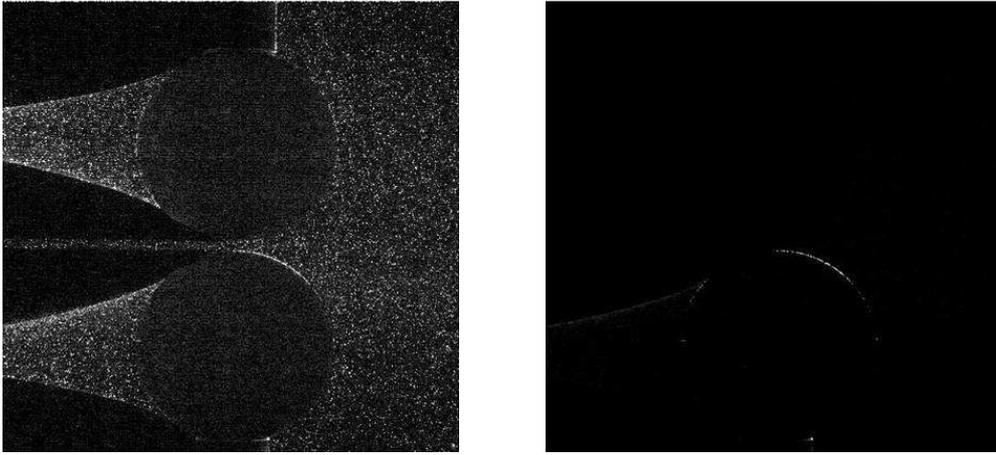


FIG. 3.16 – A gauche, image PIV brute de l’approche des deux sphères en grand champ ( $13 * 13cm^2$ ) dans de l’eau. A droite, image du bruit de fond à soustraire à l’image brute

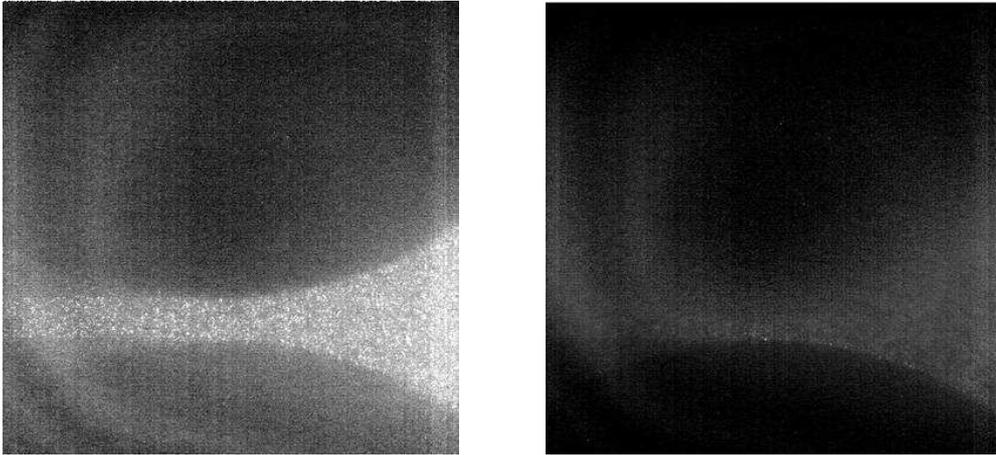


FIG. 3.17 – A gauche, image PIV brute de l’approche des deux sphères en petit champ ( $3 * 3cm^2$ ) dans la solution de Xanthane la plus concentrée. A droite, image du bruit de fond à soustraire à l’image brute

## 4.2 Présentation du code de calcul PIVIS

Le code de calcul PIVIS (Maurel, 2000) est une application qui permet de calculer un champ de vitesse à partir de deux photographies prises à des instants  $t$  et  $t + \Delta t$ . Contrairement à des mesures par Particle Tracking Velocimetry (PTV), la densité surfacique de particules présentes dans les images ne permet pas de suivre le déplacement de chacune d’entre elles. On cherche donc à déterminer le déplacement d’un ensemble de particules en reconnaissant le motif qu’elles forment sur chaque image. Les images sont découpées en mailles d’interrogation dont on définit la taille en pixels. Dans notre cas, les images ont une taille de 1024 par 1024 pixels. L’inter-corrélation des mailles de deux images successives présente un niveau de bruit moyen et un pic de corrélation maximum dont la position correspond au déplacement le plus probable des particules à l’intérieur de la maille. Le rapport entre la valeur du pic de corrélation de plus grande amplitude et le second pic définit le rapport signal sur bruit qui sert d’indicateur à la qualité de la corrélation. Dans PIVIS, l’in-

tercorrélacion bidimensionnelle est réalisée dans le plan spectral par une transformée de Fourier rapide, ce qui permet de gagner en rapidité de calcul par rapport à des méthodes directes. La taille des mailles est alors une puissance de 2 (typiquement 8, 16, 32 et 64 pixels). Les résultats présentés au chapitre suivant ont été obtenus avec une maille de 32 pixels lorsque l'entrefer entre les billes est de l'ordre de leur rayon ou 16 pixels de côté lorsque l'entrefer est dix fois plus petit que ce même rayon. Les profils de vitesse calculés avec des mailles 32\*32 sont une version lissée des profils de vitesse calculés avec des mailles 16\*16. Les seconds sont néanmoins constitués de plus de points de calculs.

Afin d'améliorer la précision sur la détermination de la position du pic de corrélation et de permettre un calcul sur des mailles les plus petites possibles, on utilise un algorithme itératif. Il consiste d'abord à décaler les mailles d'interrogation à chaque itération en fonction du déplacement calculé à l'itération précédente afin de conserver le maximum de particules communes aux mailles des deux images, jusqu'à obtenir un déplacement infinitésimal des mailles. Les déplacements de maille sont calculés en valeurs décimales et les images sont interpolées pour positionner le pic de corrélation au centre de la maille. Le détail de cette procédure est décrit dans Maurel (2000) ou Lecordier (1997).

Dans les écoulements à forts gradients de vitesse à l'échelle de la maille, la procédure itérative peut diverger en raison d'un mauvais résultat du prédicteur. Pour y remédier, une déformation est appliquée sur l'image lors des différentes itérations. La déformation des images est déterminée à partir du champ de déplacement calculé à l'itération précédente et interpolé sur chaque pixel. Les détails de ce schéma sont développés dans Lecordier et Trinité (2003).

Enfin, afin d'augmenter encore le nombre de points de calcul, on définit un maillage supplémentaire avec un taux de chevauchement des mailles adjacentes qui peut varier entre 0 et 1. Comme la majorité des études montre qu'il n'est pas nécessaire d'imposer un recouvrement supérieur à 0.5 et que cela est pénalisant en temps de calcul, tous nos calculs ont été faits avec cette valeur. D'après Raffel et al. (2000), 0.5 est même un optimum pour le calcul des gradients de vitesse.

### 4.3 Traitement après PIVIS et validation

PIVIS fournit directement le champ de vitesse associé aux paramètres de réglage décrits précédemment. Dans ce champ, se trouvent des vecteurs faux liés à une qualité d'image localement médiocre (trop peu de particules dans la maille, présence d'agrégats,...). Après avoir éliminé, grâce aux images d'ombroscopie ceux qui se situent à l'intérieur des sphères, il faut supprimer ceux qui n'ont pas une direction ou une intensité cohérente avec leur voisinage. Pour cela, on applique un seuillage sur la norme du vecteur vitesse et on tient compte du rapport signal sur bruit RSB. Enfin, pour améliorer encore la qualité de ces mesures, dix mesures dans des conditions identiques ont été effectuées par configuration. Une première moyenne est faite sur les vecteurs des dix champs de vitesse puis une seconde en écartant les vecteurs dont la norme s'écarte de plus de 15% de la moyenne précédente.

Le moyen le plus simple de contrôler la pertinence du calcul est évidemment le nombre de vecteurs faux. S'il est trop important, il faut revenir au début de la procédure, adapter le temps inter-images qui détermine le déplacement des particules

au cas où les vitesses seraient trop fortes ou changer la taille des mailles de calcul, étudier l'impact de la soustraction du bruit de fond, explorer l'influence du recouvrement ou de la prise en compte de la déformation. Au final, pour juger de la qualité d'un calcul, nous avons choisi un test sur une grandeur physique : l'évaluation de la conservation de la masse. Cette procédure est facile à mettre en oeuvre si le choc est frontal puisque c'est la seule configuration où l'on dispose, avec le champ de vitesse  $(V_r, V_z)$  dans un plan diamétral, de l'ensemble des données nécessaires au calcul du débit à travers la surface cylindrique représentée sur la figure 3.18. On tire alors parti de la symétrie de révolution.

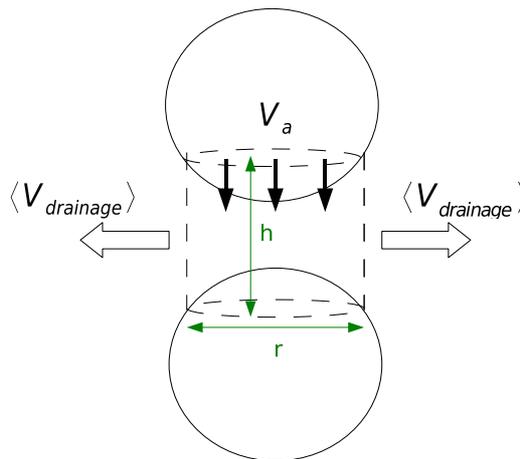


FIG. 3.18 – Représentation du volume d'étude pour vérifier la conservation de la masse au cours d'une collision frontale.

La conservation de la masse est écrite de la manière suivante : le volume de fluide qui est expulsé de l'espace inter-sphère au travers de la surface latérale du cylindre correspond à la diminution du volume du cylindre fictif considéré au cours du rapprochement des sphères. Le volume drainé est donc égal au volume d'un cylindre de section  $\pi r^2$  et de hauteur  $V_a * \Delta t$  où  $r$  est la coordonnée radiale qui vaut 0 sur l'axe des centres des sphères,  $V_a$  est la vitesse d'approche de la sphère mobile, et  $\Delta t$  le temps inter-images. Mathématiquement, l'égalité des débits s'écrit :

$$2\pi r h \langle V_{drainage} \rangle = \int 2\pi r V_r(r, z) dz = \pi r^2 V_a \quad (3.3)$$

où  $h$  est la hauteur du cylindre de fluide. D'où :

$$\frac{\langle V_{drainage} \rangle}{V_a} = \frac{r}{2h} = \text{constante} \quad (3.4)$$

si  $\langle V_{drainage} \rangle$  est la vitesse moyenne du fluide drainé. L'estimation de la précision des mesures PIV dans cette configuration se fait donc aisément.

#### 4.4 Nombre de Reynolds de drainage

On s'intéresse à l'écoulement entre les sphères lorsqu'elles sont proches, l'écoulement étudié est de type drainage entre deux parois mobiles. Le nombre de Reynolds

basé sur le diamètre des sphères n'est pas alors le plus pertinent pour analyser cet écoulement. Aussi, lors de l'exploitation des résultats, nous utiliserons un nombre de Reynolds basé sur l'entrefer  $\Delta z$  et la vitesse d'approche  $V_a$  :

– dans le cas newtonien :

$$Re = \frac{V_a \Delta z}{\nu_{susp}} \quad (3.5)$$

– dans le cas non-newtonien :

$$Re = 8^{1-n} \left( \frac{4n}{3n+1} \right)^n \rho_{susp} \frac{V_a^{2-n} \Delta z^n}{m} \quad (3.6)$$

Ainsi le nombre de Reynolds diminue à mesure que l'entrefer diminue, à l'instar de la microfluidique où les effets visqueux sont prépondérants. Cependant dans notre cas, plus les sphères sont proches, plus la vitesse dans le fluide drainé est élevée. Le nombre de Reynolds aurait donc pu être écrit à partir de la section locale par laquelle traverse le fluide éjecté et le maximum de la vitesse radiale dans cette section.

## 4.5 Suivi lagrangien de particules fictives

Le traitement des images PIV nous permet de calculer l'évolution temporelle des champs de vitesse dans le liquide drainé entre les sphères (dans la limite de la fréquence d'acquisition utilisée, i.e. 400 Hz). Ces champs de vitesse sont liés aux trajectoires que suivent les particules PIV. Le diamètre des sphères  $D_b$  faisant 56 mm et celui de particules de rhodamine  $D_p$  étant de l'ordre de 20  $\mu m$ , le rapport de taille entre ces deux objets est de 2800 dans nos expériences. Cette valeur est légèrement inférieure à celles observées en fin de broyage où ce rapport atteint 4000 si le diamètre des billes de broyage vaut 200  $\mu m$  et celui des particules 50 nm. Pour avoir une estimation du mouvement de particules plus grosses, nous avons calculé les trajectoires de particules de différents diamètres et densité à l'aide des champs de vitesse du fluide à chaque instant.

### Respect des similitudes

Pour réaliser ce suivi lagrangien, nous devons respecter quatre similitudes : une similitude correspondant à la non prise en compte de la gravité (en effet la gravité ne joue qu'un rôle minime sur les particules et l'orientation des collisions dans le broyeur), une similitude hydrodynamique basée sur le nombre de Reynolds de collision (celle qui a servi à construire le modèle expérimental) telle que

$$Re = \frac{D_b \Delta U}{\nu_f} = cte \quad (3.7)$$

une similitude géométrique liée au respect du rapport des diamètres entre billes et particules telle que :

$$\frac{D_b}{D_p} = cte \quad (3.8)$$

et enfin une similitude liée au respect des nombres de Stokes  $St$  des particules dans le broyeur et des particules fictives. Ceci conduit à imposer le rapport des densités

$\rho_p/\rho_f$  telle que :

$$St = \frac{1}{18} \frac{\rho_p}{\rho_f} \left( \frac{D_p}{D_b} \right) Re = cte \quad (3.9)$$

Cette relation se déduit de la définition du nombre de Stokes comme le rapport du temps caractéristique des particules  $\tau_p = \rho_p D_p^2 / (18 \rho_f \nu_f)$  sur le temps caractéristique du mouvement du fluide  $\tau_f = \Delta U / D_b$ .

### Choix des forces

Les principales forces qui interviennent dans le principe fondamental de la dynamique appliqué à chacune de ces particules sont : la force de traînée  $\vec{F}_D$ , la force de portance  $\vec{F}_L$ , la force d'inertie  $\vec{F}_I$  (qui contient les effets du gradient de pression et de masse ajoutée) avec

$$\vec{F}_D = C_D \rho_f \frac{\pi R_p^2}{2} \|\vec{V}_f - \vec{V}_p\| (\vec{V}_f - \vec{V}_p) \quad (3.10)$$

$$\vec{F}_L = m_f C_L (\vec{V}_f - \vec{V}_p) \wedge \vec{\Omega} \quad (3.11)$$

$$\vec{F}_I = m_f (1 + C_M) \frac{D\vec{V}_f}{Dt} - C_M m_f \frac{d\vec{V}_p}{dt} \quad (3.12)$$

où  $C_D$  est le coefficient de traînée de Schiller et Neumann (1933) :

$$C_D = 24/Re_p (1 + 0.15 Re_p^{0.687}) \quad (3.13)$$

pour lequel

$$Re_p = \frac{\|\vec{V}_f - \vec{V}_p\| D_p}{\nu_f} \quad (3.14)$$

avec  $\rho_f$  la masse volumique du fluide,  $R_p$  le rayon d'une particule,  $\vec{V}_f$  la vitesse du fluide,  $\vec{V}_p$  la vitesse de la particule,  $m_f$  la masse de fluide équivalente au volume de la particule,  $C_L$  le coefficient de portance,  $\vec{\Omega}$  la vorticit  de l' coulement,  $C_M$  le coefficient de masse ajout e ( gal   0.5 dans le cas d'une sph re) et  $\frac{D}{Dt}$  repr sente la d riv e particulaire. Nous avons dans un premier temps utilis  la forme suivante du coefficient de portance  $C_L$ , d finie pour  $Re \ll 1$  et  $\sqrt{Re} Sr \ll 1$  d'apr s Legendre et Magnaudet (1997) :

$$C_L = \frac{6}{\pi^2} \left( \frac{2 + 3\phi_\mu}{2 + 2\phi_\mu} \right) \frac{J(\varepsilon)}{\sqrt{Re} Sr} \quad (3.15)$$

o   $Sr = D_p \dot{\gamma} / V_p$  est le cisaillement adimensionnel construit avec le diam tre de la particule  $D_p$ , la vitesse de cisaillement locale  $\dot{\gamma}$  et la vitesse de la particule  $V_p$ ,  $\varepsilon = \sqrt{Sr/Re}$ ,  $\phi_\mu$  le ratio de la viscosit  de la particule sur celle du fluide (ici tend vers l'infini) et  $J(\varepsilon)$  une int grale qui ne peut  tre calcul e que num riquement. Lorsque  $\varepsilon$  tend vers l'infini, comme c'est le cas ici,  $J(\varepsilon) = 2.255$  et le coefficient de portance obtenu est  gal   celui pr dit par Saffman (1965). Ce coefficient varie donc en fonction des conditions hydrodynamiques dans lesquelles se d placent la particule. Les expressions de ces forces forment le second membre de l' quation classique de la trajectoire d'une particule du type :

$$m_p \frac{d\vec{V}_p}{dt} = \vec{F}_D + \vec{F}_L + \vec{F}_I \quad (3.16)$$

où  $m_p$  est la masse d'une particule. Finalement, on obtient l'accélération :

$$\begin{aligned} \frac{d\vec{V}_p}{dt} &= \frac{1}{m_p + C_M m_f} \left( C_{D\rho_f} \frac{\pi R_p^2}{2} \|\vec{V}_f - \vec{V}_p\| (\vec{V}_f - \vec{V}_p) + m_f C_L (\vec{V}_f - \vec{V}_p) \wedge \vec{\Omega} \right) \\ &+ \frac{1}{m_p + C_M m_f} \left( m_f (1 + C_M) \frac{D\vec{V}_f}{Dt} \right) \end{aligned} \quad (3.17)$$

La vitesse  $\vec{V}_f$  du fluide au centre de gravité de la particule est interpolée à partir des valeurs du champ de vitesse PIV aux quatre coins de la maille dans laquelle se trouve la particule. Enfin, il est nécessaire pour assurer la convergence du schéma d'intégration de subdiviser le pas de temps physique qui sépare deux champs de vitesse (2.5 ms) en un certain nombre de pas de temps numériques de sorte que le pas de temps global soit de l'ordre de grandeur du temps de relaxation de la particule  $\tau_p$ . Comme  $\tau_p = \frac{m_p + 0.5m_f}{6\pi\mu R_p}$  pour  $Re_p \ll 1$ , on estime  $\tau_p \simeq \frac{2R_p^2}{9\nu_f} \simeq 10^{-6} s$ . En pratique, le pas de temps retenu est  $10^4$  fois plus petit que le temps inter-images.

Nous avons constaté que la force de portance calculée avec l'expression 3.15 n'avait aucun effet sur la trajectoire de la particule. Nous avons également testé la valeur  $C_L = 0.35$  qui a été obtenue par Zeng et al. (1995) de manière numérique, pour une particule sphérique se déplaçant près d'une paroi à un nombre de Reynolds de 10. La force de portance s'est révélée une nouvelle fois sans effet.

## 5 Suivi de particules placées sur la sphère fixe

Les mesures de vitesse très près des parois constituent l'une des difficultés des mesures PIV, en particulier pour le calcul des trajectoires de particules que nous venons de présenter. Aussi nous avons réalisé une petite expérience de visualisation complémentaire pour analyser le mouvement de particules réelles déposées sur la sphère immobile en fonction de la vitesse de rapprochement des sphères et de la distance entre ces deux dernières.

Dans cette expérience, la sphère fixe est remplacée par une demi-sphère posée sur un cylindre creux de même diamètre. Le système d'acquisition vidéo est positionné sous la cuve afin de filmer en ombroscopie les particules déposées sur le haut de la demi-sphère. Pour les éclairer et renforcer le contraste entre l'hémisphère et les billes déposées à sa surface, un miroir est installé à 45 degrés à l'intérieur de la sphère mobile et éclairé par un projecteur de 1000 W. Le dépôt des billes sur la sphère fixe est effectué à l'aide d'une seringue. Une fois le système stabilisé, une séquence d'acquisition d'images est démarrée. Le dispositif expérimental est présenté sur les figures 3.19.

### 5.1 Choix des billes

Les billes utilisées représentent les particules réelles, elles sont en polystyrène transparent de densité 1.05. On a donc ajouté du sel (NaCl) afin d'augmenter la densité de la phase continue et minimiser l'influence des forces de pesanteur puisque ces dernières n'ont pas un rôle significatif dans le procédé. On s'est toutefois placé à

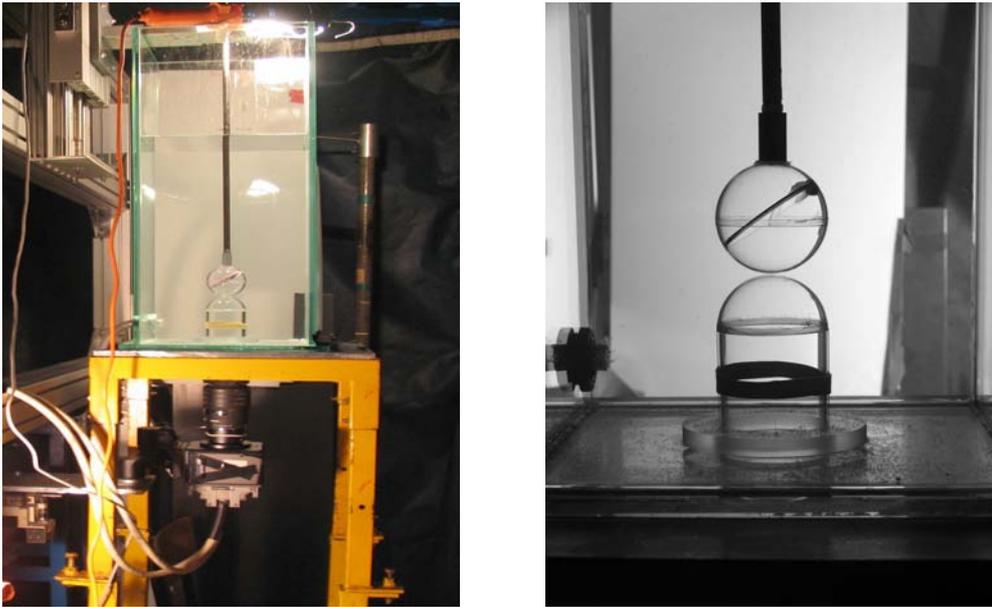


FIG. 3.19 – Dispositif expérimental pour la mesure de la probabilité de capture. La caméra est placée en dessous de la cuve. Le CharlyRobot tient la sphère supérieure à gauche. Un agrandissement de la sphère mobile dans laquelle se trouve le miroir à  $45^\circ$  et l'hémisphère surmontant le cylindre transparent est présenté dans l'image de droite.

une densité légèrement inférieure à celle des billes afin de pouvoir contrôler leur dépôt sur le haut de la sphère fixe. La faculté des billes de polystyrène de s'agglomérer dans l'eau a impliqué, comme cela avait été le cas pour les particules de rhodamine, l'ajout d'un tensioactif.

Afin de mettre en évidence un effet de leur diamètre sur leur mouvement et ainsi de reproduire le comportement des fragments de particules dans le broyeur aux différents stades de leur réduction de taille en respectant la similitude géométrique, nous avons utilisé des billes de 40, 80, 140, 250 et  $500\mu\text{m}$  de diamètre. Toutefois les expérimentations les plus complètes ont été réalisées avec des billes de  $250\mu\text{m}$ . Avec un diamètre des sphères  $D_b$  de 60 mm et un diamètre des particules  $D_p$  variant de 40 à  $500\mu\text{m}$ , la rapport  $D_b/D_p$  est compris entre 120 et 1500, ce qui comparable à celui de la gamme réelle (entre 200 et 4000 pour des billes de broyage de  $200\mu\text{m}$  de diamètre et des particules au minimum de 50 nm).

## 5.2 Technique d'acquisition et exploitation

La caméra filme le déplacement des petites particules avec une fréquence de 60 images par seconde. En parallèle, une séquence d'images a été prise avec une caméra horizontale, synchronisée avec les images acquises dans le plan vertical afin de corrélérer le déplacement dans le plan "horizontal" (caméra filmant par-dessous) avec l'espace séparant les sphères. Des exemples de ces deux types d'acquisitions sont présentés sur la figure 3.20.



FIG. 3.20 – Expérience de suivi de particules déposées à la surface de la sphère fixe. Vue de dessous (à gauche) et vue latérale (à droite).

point pour suivre chaque particule d'une photographie à l'autre. Il effectue les tâches suivantes :

- Création d'une image de fond
- Division des images de la séquence par l'image de fond et passage en négatif
- Fermeture des contours (en niveaux de gris)
- Seuillage et binarisation
- Suppression de bruits ponctuels (par érosion/dilatation)
- Détection des billes : détermination des coordonnées du centre de chaque bille et surface de cette bille

On dispose ainsi d'une suite d'images sur lesquelles les billes sont parfaitement repérées par leur position (abscisse et ordonnée) dans le plan de la photo à tout instant. La superposition des positions successives représente les trajectoires des billes initialement déposées à la surface de la sphère fixe.

## 6 Bilan

Nous avons présenté dans ce chapitre l'approche expérimentale qui nous a servi à étudier le rapprochement de deux billes. Celle-ci permet d'analyser l'hydrodynamique au cours des instants précédents la collision de deux billes, qui est le mode d'action élémentaire s'exerçant dans les broyeurs à billes agités. Le modèle expérimental a été conçu en respectant les nombres de Reynolds de collision, sur la base des vitesses d'approche estimées dans le chapitre 2 à partir de la simulation de l'hydrodynamique globale dans le broyeur. Le banc expérimental est constitué d'une cuve dans laquelle sont plongées deux sphères : une sphère inférieure immobile et une sphère supérieure approchant de façon frontale ou décalée, à vitesse imposée. A partir des images prises par ombroscopie, il a été possible de déterminer avec précision l'emplacement des deux sphères, à tout instant de la séquence de mesure du champ de vitesse.

La chaîne de mesure est constituée d'un laser (Pégasus, 527 nm) et d'une caméra

rapide (Ultima APX-RS) de résolution 1024\*1024 pixels. En fonction des objectifs de mesure recherchés, les images PIV représentent soit des grands champs (13cm\*13cm, objectif 60mm) pour acquérir une vue d'ensemble de la scène, soit des petits champs pour extraire des informations plus précises sur le champ de vitesse (1.5cm\*1.5cm à 3.1cm\*3.1cm, objectif 150 mm).

Le choix des matériaux constituant les sphères est l'un des éléments qui conditionnent la qualité des mesures optiques effectuées. Des sphères en cristal ont été choisies pour les expériences de rapprochement frontal tandis que pour des rapprochements décalés nous avons utilisé des sphères en polystyrène transparent remplies par la suspension contenue dans la cuve. Le choix de cette solution constitue un deuxième élément important pour obtenir des images PIV de qualité. Concernant l'ensemencement, notre choix s'est porté sur des particules de rhodamine encapsulée dans des billes de polystyrènes de 1 à 20  $\mu m$  de diamètre. Afin de limiter la sédimentation des particules traceurs, la densité du fluide est ajustée par ajout de chlorure de sodium. Un tensio-actif est également ajouté pour assurer une dispersion homogène des particules traceurs. Afin de reproduire le comportement rhéologique des suspensions couramment rencontrées dans les procédés de broyage, des mesures ont également été faites avec des solutions de Xanthane, caractérisées par un comportement rhéofluidifiant.

Le traitement des données s'appuie sur un logiciel PIV développé à l'IMFT (code PIVIS). Toutefois, pour améliorer la qualité des résultats, des pré-traitements sont réalisés sur les images tels que la dilatation de l'échelle des niveaux de gris pour accentuer le contraste et permettre une meilleure précision sur la mesure des champs de vitesse, ainsi que l'élimination du bruit de fond généré par des particules immobiles (déposées sur la sphère fixe) ou des reflets de l'objectif de la caméra ou encore une forte diffusion de la suspension. Selon les conditions d'analyse, les profils de vitesse sont calculés avec une maille de 32\*32 pixels lorsque l'espace entre les sphères est de l'ordre de leur rayon ou 16\*16 pixels lorsque l'entrefer correspond au dixième de ce même rayon. Un post-traitement des résultats est réalisé pour éliminer les vecteurs faux. Enfin, pour améliorer la qualité des résultats, dix séquences de mesures sont réalisées dans les mêmes conditions expérimentales. Le principe de conservation de la masse appliqué au volume de fluide compris entre les sphères est utilisé pour valider a posteriori les mesures en approche frontale.

A partir des séries temporelles de champs de vitesse du fluide, nous avons cherché à calculer les trajectoires de particules de différents diamètres et de différentes densités. Pour réaliser ce suivi lagrangien, en plus de négliger la gravité, nous avons adopté trois similitudes : une similitude hydrodynamique basée sur le nombre de Reynolds de collision, une autre basée sur le rapport des diamètres entre billes et particules, et enfin une troisième basée sur le nombre de Stokes.

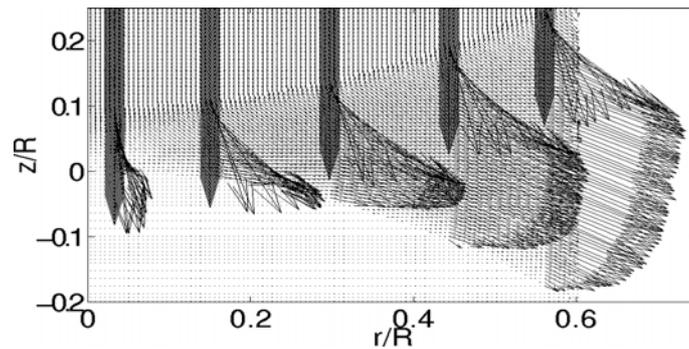
Enfin, pour estimer la probabilité de capture des particules entre deux sphères lors de leur rapprochement, nous avons entrepris une campagne d'expériences complémentaires en déposant sur la sphère immobile des petites billes de différents diamètres en polystyrène transparent. Des séquences d'images ont été prises avec une caméra placée horizontalement ou verticalement en dessous de l'hémisphère. L'utilisation

simultanée des images dans les deux plans de visualisation permet de repérer la position des particules et de suivre ainsi leur mouvement.

Les résultats des mesures effectuées vont maintenant être exposés au chapitre suivant.

# Chapitre 4

## Etude expérimentale du rapprochement de deux billes de broyage : Résultats



**Résumé** Ce chapitre est principalement consacré à l'analyse des profils de vitesse de drainage lorsque deux sphères qui représentent deux billes de broyage se rapprochent. L'étude met en évidence l'influence de la vitesse relative d'approche, de la distance entre les sphères, de la position par rapport à la zone d'impact, de la nature de la suspension et enfin du décalage des sphères lors du rapprochement sur les champs de vitesse dans le fluide drainé.

L'examen des champs de cisaillement vient ensuite étayer les éléments précédents. Finalement, une estimation de l'efficacité de capture des particules à broyer en fonction de leurs densités et de leurs diamètres, ainsi que des paramètres déjà cités, a été calculée de deux manières : à partir des champs de vitesse du fluide dans un premier temps et à partir d'un suivi lagrangien direct dans un deuxième temps.

### 1 Introduction

Avant de présenter les résultats, nous rappelons dans le tableau 4.1 les grandeurs nécessaires à la compréhension de ce chapitre : grandeurs géométriques et cinématiques, propriétés des fluides étudiés ainsi que nombres de Reynolds appropriés aux cas newtonien et non-newtonien.

TAB. 4.1 – Grandeurs utilisées dans ce chapitre.

$R$	rayon des sphères
$\Delta z$	espace entre les sphères
$V_a$	vitesse d'approche
$\nu_{susp}$	viscosité cinématique de la suspension Newt.
$\rho_{susp}$	masse volumique de la suspension
$n$	indice de la suspension non-newtonienne
$m$	consistance de la suspension non-newtonienne
$Re = \frac{V_a \Delta z}{\nu_{susp}}$	nombre de Reynolds (drainage newtonien)
$Re = \alpha \rho_{susp} \frac{\Delta U^{2-n} \Delta z^n}{\nu_{susp}}$ avec $\alpha = 8^{1-n} \left( \frac{m}{3n+1} \right)^n$	nombre de Reynolds (drainage non-newtonien)

La figure 4.1 décrit le système de coordonnées cylindriques utilisé ainsi que les directions des composantes du champ de vitesse dans le cas d'une approche frontale des sphères pour laquelle l'écoulement est axisymétrique. Nous présentons des

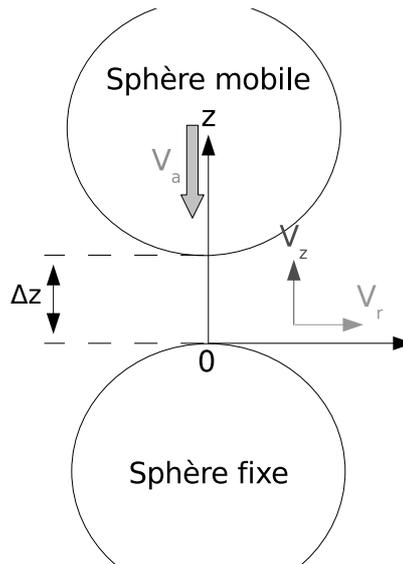


FIG. 4.1 – Définitions du repère de coordonnées cylindriques et des composantes du champ de vitesse pour un choc frontal.

résultats essentiellement pour deux distances  $\Delta z$  entre les sphères ( $\Delta z = R/3$  et  $\Delta z = R/10$  qui correspondent respectivement à 10mm et 2.9mm) et pour chacun des fluides testés (l'eau et les deux solutions de Xanthane). Il est important de noter que l'on suppose que la force de lubrification n'a pas d'effet à ces deux entrefers ( $\Delta z/R = 0.1$  au minimum). C'est à dire que le rapprochement à vitesse constante de nos sphères reproduit de manière réaliste le rapprochement entre deux billes de broyage à ces entrefers là. On fait donc l'hypothèse qu'une bille libre verrait sa vitesse décroître pour des entrefers inférieurs  $\Delta z = R/10$ .

Concernant l'obtention des profils de vitesse, nous rappelons qu'ils ont tous été obtenus à partir de mesures PIV sur des mailles de 32 pixels de coté lorsque l'espace  $\Delta z$  séparant les sphères atteint  $R/3$  et de 16 pixels de coté lorsque  $\Delta z$  vaut  $R/10$ . Une taille de maille de 32 pixels de coté présente l'avantage d'engendrer des profils plus lisses que si la maille de calcul fait  $16 \times 16$  pixels.

L'écart  $\varepsilon$  entre le débit calculé à partir du profil de vitesse (avec hypothèse d'écoulement axisymétrique) et le débit calculé à partir de la vitesse d'approche en utilisant l'équation de continuité accompagne chaque profil.

Enfin, la vitesse est adimensionnée par la vitesse d'approche de la sphère supérieure  $V_a$  afin que les aires sous chaque profil soient identiques (conservation du débit) et la coordonnée axiale  $z$  par le rayon de la sphère  $R$ .

## 2 Influence de la nature du fluide sur le champ de vitesse de drainage

L'influence de la nature du fluide sur le drainage était l'une des questions à laquelle cette campagne expérimentale devait répondre. En effet, sous hypothèse de lubrification, les prédictions théoriques du profil de vitesse de drainage (composante radiale de la vitesse) d'un fluide ayant un comportement régi par une loi puissance décrivent des écoulements impossibles physiquement, d'après Lian et al. (2001). Les expressions analytiques, développées dans le premier chapitre (voir section 2.2, eq. 1.55), sont tracées sur la figure 4.2 lorsque  $\Delta z = R/10$  et pour différents indices de fluide  $n$ , dont  $n = 1$  qui correspond au cas newtonien. Pour mémoire, on a testé deux solutions de Xanthane de comportements rhéofluidifiants légèrement différents : une solution (dénommée Xanthane 1) dont les propriétés sont  $n = 0.583$  et  $m = 0.0395 \text{ Pa.s}^n$ , et une solution (dénommée Xanthane 2) dont les propriétés sont  $n = 0.68$  et  $m = 0.0164 \text{ Pa.s}^n$ . Ces propriétés conduisent aux deux courbes rouges sur la figure 4.2. Lorsque  $n$  diminue et s'éloigne de 1, les profils ne parviennent plus à décrire un

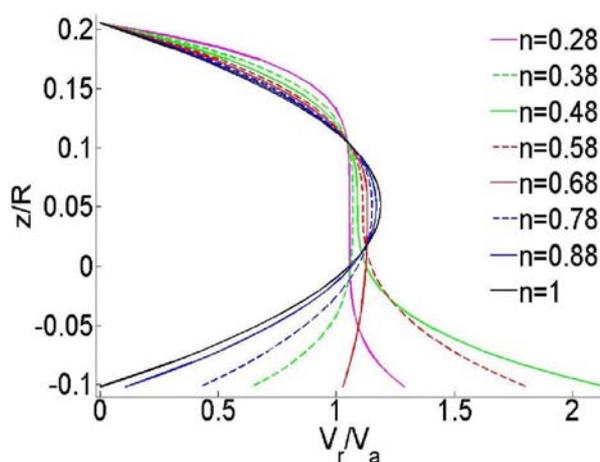


FIG. 4.2 – Profils théoriques de vitesse radiale en fonction de l'indice  $n$  pour  $\Delta z = R/10$  à  $r = 0.44R$ .

fluide rhéofluidifiant entre deux sphères de manière expérimentale.

Tout d'abord, comparons les profils de vitesse radiale des deux solutions de Xanthane lorsqu'un entrefer  $\Delta z = R/3$  sépare les sphères, à une abscisse de  $r = 0.44R$  (voir figure 4.3). Bien que l'indice de la solution de Xanthane passe de  $n = 0.68$  à  $n = 0.58$ , les profils sont très proches à cet entrefer. Il en va de même lorsque  $\Delta z = R/10$ .

Si on compare maintenant les profils de vitesse radiale dans l'eau et dans une des deux solutions de Xanthane à des nombres de Reynolds parmi les plus élevés que nous ayons (cf. définition dans la table 4.1), que ce soit à  $\Delta z = R/3$  (figure 4.4,  $Re = 35$ ) ou à  $\Delta z = R/10$  (figure 4.5  $Re = 20$ ), le constat est identique : malgré une précision des mesures PIV acceptable (inférieure ou égale à 5%) et des nombres de Reynolds très proches, seules des différences minimales de comportement entre les fluides peuvent être signalées.

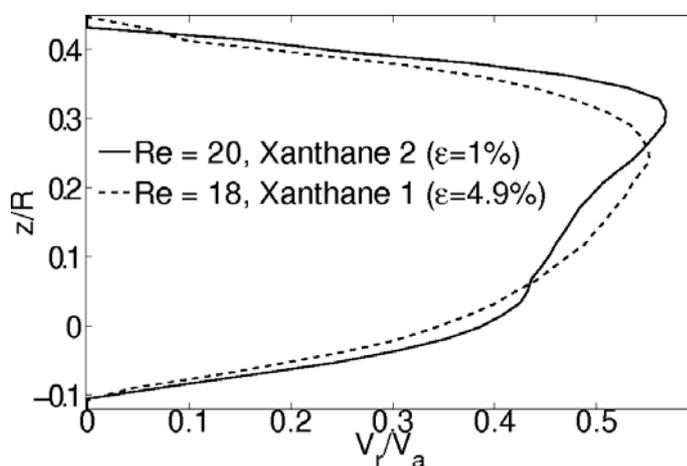


FIG. 4.3 – Profils de vitesses radiales à  $r = 0.44R$  dans le Xanthane 1 et le Xanthane 2 à un nombre de Reynolds voisin de 20 pour  $\Delta z = R/3$ .

Cette absence apparente de différence entre fluide newtonien et non-newtonien peut s'expliquer par une trop faible plage de variation de la vitesse de cisaillement dans l'entrefer. Les variations de viscosité n'y sont donc pas suffisantes. On peut avoir une première estimation de cette vitesse de cisaillement en supposant que la variation de la vitesse maximale du fluide entre les deux sphères est linéaire. Dans le plus petit entrefer dont on dispose ( $\Delta z = R/10$ ), il doit y être maximum puisqu'il évolue comme  $1/\Delta z$ . On obtient alors un taux  $\dot{\gamma} = \frac{V_a - 0}{\Delta z}$  de  $13 \text{ s}^{-1}$  pour  $V_a = 37.8 \text{ mm/s}$ , la vitesse de rapprochement la plus élevée dans le Xanthane 1. Ce taux est relativement faible pour agir sur la viscosité.

Par contre, en diminuant  $\Delta z$  jusqu'à  $200 \mu\text{m}$ , un taux linéaire dans l'entrefer conduirait à une vitesse de cisaillement de l'ordre de  $190 \text{ s}^{-1}$ . Rappelons que sur un plan technique, un entrefer de  $200 \mu\text{m}$  est accessible avec le CharlyRobot mais la vitesse de consigne n'est plus maintenue à une valeur constante, car l'automate est alors en phase de décélération. A cet entrefer, les tailles de champs que nous avons utilisées ne permettent pas de faire des mesures PIV exploitables. Il est donc possible qu'une influence de la nature du fluide drainé sur le champ de vitesse puisse être mise en

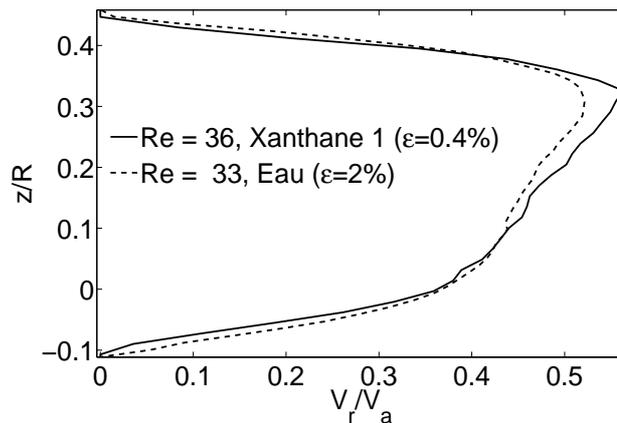


FIG. 4.4 – Profils de vitesses radiales à  $r = 0.44R$  dans l'eau et le Xanthane 1 à un nombre de Reynolds voisin de 35 pour  $\Delta z = R/3$ .

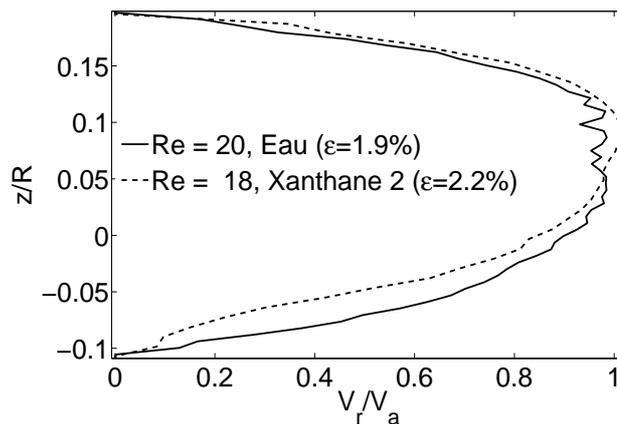


FIG. 4.5 – Profils de vitesses radiales à  $r = 0.44R$  dans l'eau et le Xanthane 2 à un nombre de Reynolds voisin de 20 pour  $\Delta z = R/10$ .

évidence pour les très faibles entrefers.

Néanmoins, les baisses potentielles de viscosité restent modérées : en effet, la viscosité évoluant en fonction de la vitesse de cisaillement selon  $m\dot{\gamma}^{(n-1)}$ , une augmentation de cette dernière d'un facteur 10 ou d'un facteur 100 divise la viscosité par 2.6 et 6.8 respectivement. Nous reviendrons plus en détail sur les champs de viscosité dans la section 7 consacrée à l'étude du champ de cisaillement.

Notons enfin que, sur chacune des figures 4.3, 4.4, et 4.5, les profils de vitesse radiale sont dissymétriques. Cette dissymétrie est une première manifestation des effets d'inertie et ne doit pas surprendre : en effet elle est inhérente à la configuration d'approche des sphères très bien illustrée par la figure 3.5 du chapitre précédent. Deux sphères se déplaçant avec des vitesses de même norme mais de sens opposé engendreraient des profils symétriques dans cette gamme de nombres de Reynolds. Nous revenons sur ce phénomène au paragraphe suivant.

## 2. INFLUENCE DE LA NATURE DU FLUIDE SUR LE CHAMP DE VITESSE DE 93 DRAINAGE

### 3 Influence de la vitesse de rapprochement sur le champ de vitesse de drainage

Pour analyser l'évolution du champ de vitesse en fonction de la vitesse de rapprochement, nous allons examiner son évolution en fonction du nombre de Reynolds défini dans le tableau 4.1.

La figure 4.6 présente les profils de vitesse radiale dans l'eau, tracés à  $r = 0.44R$  pour un espace entre les sphères  $\Delta z = R/3$ . Les nombres de Reynolds varient de 9 à 93, correspondant à une vitesse d'approche de 1 à 10 mm/s respectivement. A ces deux nombres de Reynolds extrêmes, la différence apparaît clairement entre un profil de vitesse radiale quasiment parabolique pour  $Re = 9$  et un profil fortement dissymétrique pour  $Re = 93$ . A ce nombre de Reynolds, le profil admet un maximum de vitesse au voisinage de la sphère mobile. Entre ces deux extrêmes, le profil de la vitesse radiale évolue continuellement. La perte de symétrie se produit donc entre les nombres de Reynolds 9 et 21.

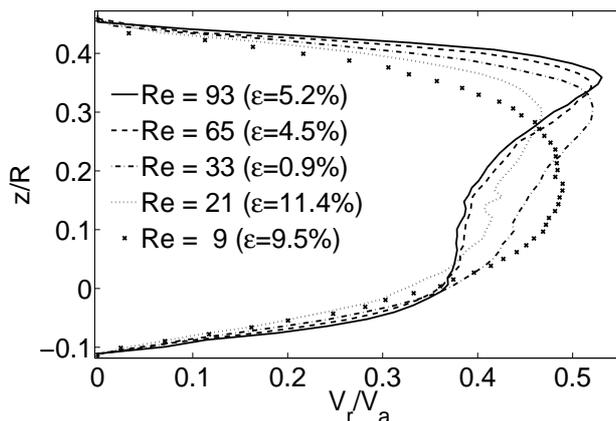


FIG. 4.6 – Profils de la vitesse radiale à  $r = 0.44R$  dans l'eau pour  $\Delta z = R/3$  en fonction du nombre de Reynolds, avec l'erreur relative correspondante  $\epsilon$ .

L'analyse de ces mêmes profils pour  $\Delta z = R/10$  et  $r = 0.44R$  (voir la figure 4.7) permet de confirmer le seuil à partir duquel les effets d'inertie se font sentir puisqu'à cet espace inter-sphère, la gamme des nombres de Reynolds se réduit par construction. Le nombre de Reynolds varie ainsi de 3 à 29. Bien que les différences entre les profils se discernent moins facilement dans ce cas, les profils étant tous relativement paraboliques, il apparaît néanmoins qu'à  $Re = 10$ , la dissymétrie est présente. Cela nous confirme que le seuil d'apparition des effets d'inertie se situe à un nombre de Reynolds  $Re = 10$ .

Enfin, on observe que les vitesses ont logiquement augmenté entre  $\Delta z = R/3$  et  $\Delta z = R/10$  étant donné que la section s'est réduite. On observe également que les profils dont le nombre de Reynolds est inférieur ou égal à 10 ne sont pas très éloignés du profil de vitesse radiale obtenu avec les hypothèses de lubrification.

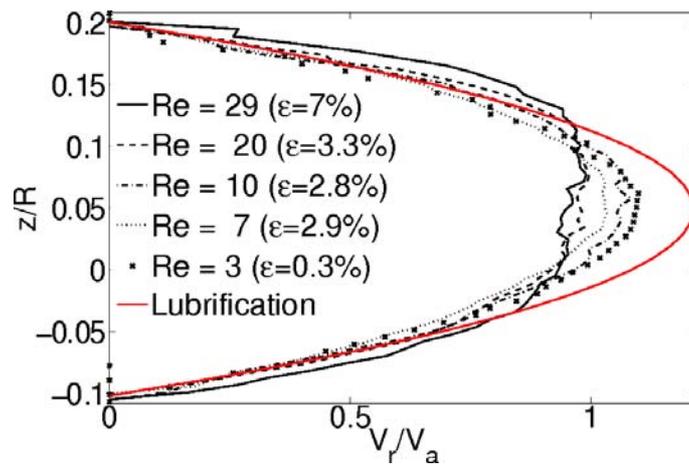


FIG. 4.7 – Profils de la vitesse radiale  $V_r$  comparés au profil issu de la théorie de la lubrification (en rouge) à  $r = 0.44R$  dans l'eau pour  $\Delta z = R/10$ .

## 4 Evolution du champ de vitesse en fonction de la distance entre les sphères à même Re

L'étude de l'évolution du champ de vitesse en fonction de la distance entre les sphères à même Re s'appuie sur la comparaison des profils de vitesse radiale tracés à  $\Delta z = R/3$  ou à  $\Delta z = R/10$  et correspondant à un nombre de Reynolds de 20 (voir figure 4.8). A un même nombre de Reynolds, il n'y a pas de différence notable

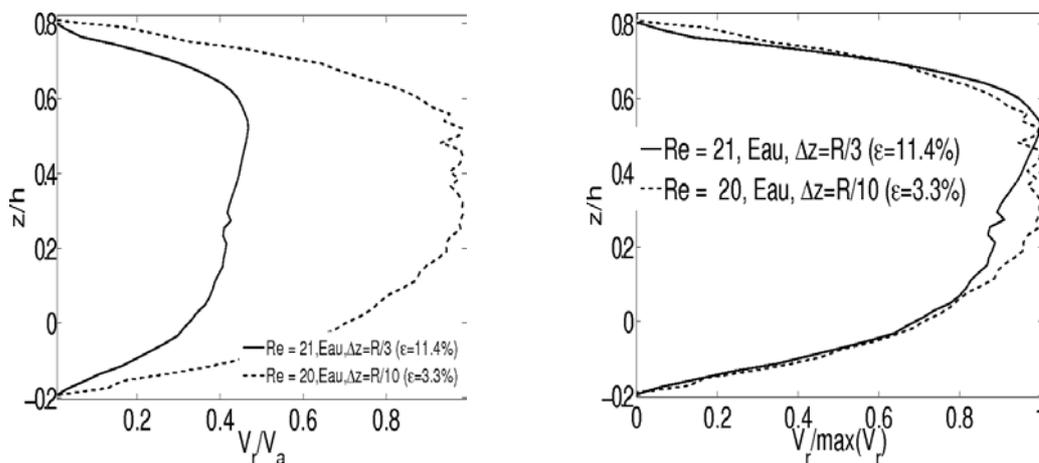


FIG. 4.8 – Profils de vitesse radiale adimensionnée par  $V_a$  à gauche et  $\max(V_r)$  à droite, dans l'eau à  $Re = 20$  pour des entrefers  $\Delta z = R/10$  et  $\Delta z = R/3$ .

sur la forme des profils de vitesse radiale tracés à  $\Delta z = R/3$  ou à  $\Delta z = R/10$ . Naturellement, l'espace entre les sphères se réduisant, la vitesse du drainage à une abscisse  $r$  donnée augmente fortement lorsque l'entrefers diminue. Le choix du nombre de Reynolds est ainsi conforté.

## 5 Evolution du champ de vitesse en fonction de la distance à l'axe $z$

Afin de ne pas restreindre l'étude à une abscisse  $r$  donnée, nous allons examiner l'évolution des profils de vitesse radiale pour un même fluide et un même nombre de Reynolds à différentes distances  $r$  de l'axe  $z$ . L'étude concerne toujours le cas de l'eau, à  $\Delta z = R/3$  et  $\Delta z = R/10$  pour les abscisses  $r = 0.44R$ ,  $r = 0.32R$ ,  $r = 0.21R$  et  $r = 0.1R$ .

On peut voir clairement sur la figure 4.9 ( $\Delta z = R/3$ ) que lorsque  $r$  décroît de  $r = 0.44R$  à  $r = 0.1R$ , la dissymétrie du profil de vitesse radiale tend à s'estomper au profit d'une forme uniforme lorsque la section diminue. De plus, on vérifie que la vitesse et le débit diminuent au fur et à mesure que la section diminue, donc que le volume de fluide expulsé devient plus faible. L'évolution est différente pour

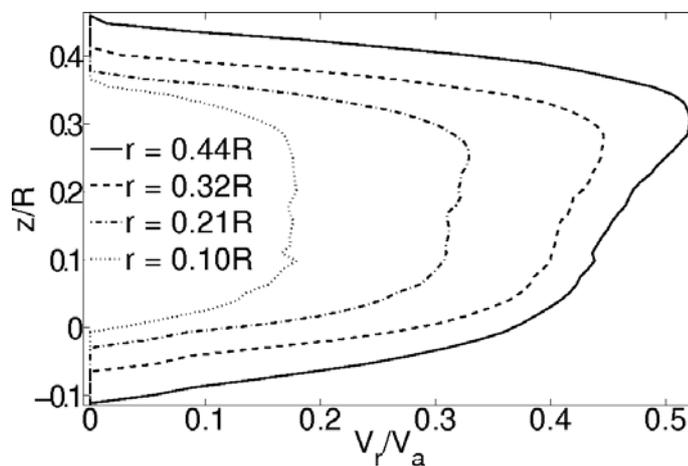


FIG. 4.9 – Profils de vitesse radiale en fonction de  $r$  dans l'eau pour  $\Delta z = R/3$  et  $Re = 33$ .

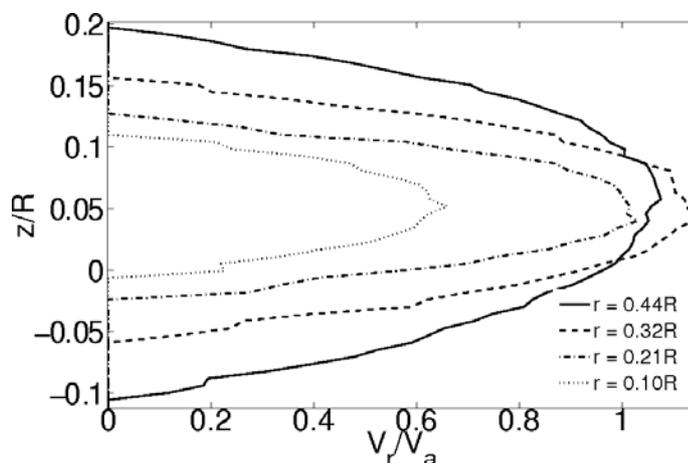


FIG. 4.10 – Profils de vitesse radiale en fonction de  $r$  dans l'eau pour  $\Delta z = R/10$  et  $Re = 10$ .

un écartement plus faible des sphères comme le montre la figure 4.10 dans le cas  $\Delta z = R/10$ . Contrairement aux profils de vitesse radiale à  $\Delta z = R/3$  aux mêmes abscisses, on constate que la vitesse radiale moyenne à  $r = 0.44R$  est inférieure à celle que l'on obtient aux trois autres positions. C'est aussi à  $r = 0.44R$  que la section est suffisante pour faire réapparaître la dissymétrie des profils de vitesse radiale. On peut expliquer l'évolution du profil de vitesse radiale à ces deux entrefers grâce au critère de conservation de la masse, présenté au chapitre précédent, qui donne accès à la vitesse radiale moyenne du fluide drainé. La conservation de la masse implique l'égalité entre le volume de fluide chassé par la sphère mobile à la vitesse  $V_a$  et le volume de fluide qui s'échappe de l'entrefers à travers une surface cylindrique. Nous avons représenté sur la figure 4.11 l'évolution de la vitesse radiale moyenne adimensionnée par la vitesse d'approche  $V_a$  en fonction de  $r/R$  à des entrefers de  $R/3$ ,  $R/10$  et  $R/20$  (notés  $h_0$  en référence au chapitre 1). Ce dernier entrefers n'est donné qu'à titre indicatif afin de quantifier l'augmentation de la vitesse radiale moyenne lorsque l'entrefers diminue. Lorsque  $\Delta z = R/3$ , la vitesse moyenne augmente bien entre  $r = 0$  et  $r = 0.5R$  puis décroît doucement. Lorsque  $\Delta z = R/10$ , on observe bien que le débit à  $r = 0.32R$  est supérieur aux débits correspondant aux trois autres abscisses, conformément aux résultats expérimentaux présentés sur la figure 4.10. Ainsi, au fur et à mesure que l'entrefers  $\Delta z$  diminue de  $R/3$  à  $R/20$ , l'abscisse correspondant à la vitesse radiale moyenne la plus grande se déplace vers l'origine.

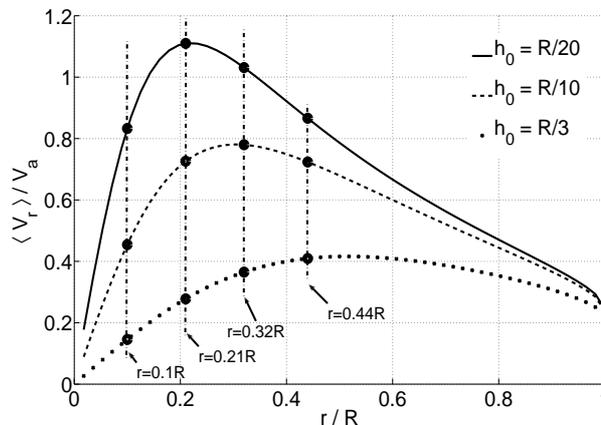


FIG. 4.11 – Profils de la vitesse radiale moyenne  $V_r/V_a$  en fonction de l'abscisse  $r/R$ .

## 6 Evolution du champ de vitesse selon le type de rapprochement

Toutes les données précédentes sont issues de mesures effectuées pour une collision qu'on peut qualifier de frontale : l'axe passant par les centres des sphères et la direction du mouvement se confondent. Or la simulation numérique dans le broyeur nous a appris que les collisions les plus intenses étaient celles créées par cisaillement. De plus, d'après Kwade (1999), elles sont aussi les plus fréquentes (voir chapitre 1). Les collisions créées par cisaillement semblent donc les plus propices à la frag-

mentation des particules. Nous avons reproduit ce type d’approche en décalant la descente de la sphère mobile par rapport à la sphère immobile d’une distance variable de  $0.5R$ ,  $R$ ,  $1.5R$  et  $2R$  (cf. fig. 3.2 du chapitre 3), tout en maintenant la zone de collision au centre de la cuve afin d’éviter tout effet de paroi. Dans le but de garantir une bonne précision nous avons aussi utilisé des tailles de champs réduites, de 16.4 mm à 17.4mm de côté. En conséquence nous n’avons pu traiter les champs PIV que pour l’entrefer  $\Delta z = R/10$ . Enfin, cette campagne de mesure a été réalisée uniquement avec de l’eau du fait des conclusions précédentes relatives à l’effet de la nature du fluide.

L’analyse s’appuie toujours sur les seules composantes axiale et radiale de la vitesse bien que l’écoulement entre les sphères ne soit plus axisymétrique mais tridimensionnel. Toutefois, le plan de mesure étant un plan de symétrie, la vitesse tangentielle  $V_\theta$  et les dérivées suivant la direction  $\theta$  y sont théoriquement nulles. Puisque la validation de la qualité des mesures par le critère de la conservation de la masse n’est plus applicable, les temps inter-images utilisés pour extraire des images PIV un champ de vitesse lors de l’étude des collisions frontales ont été conservés pour les mêmes vitesses d’approche. On se fie donc uniquement au critère basé sur le non-dépassement d’une vitesse limite pour une taille de maille donnée. Les sphères étant dans ce cas remplies de la suspension de rhodamine, la comparaison du champ de vitesse dans les sphères avec la vitesse de rapprochement imposée nous permet également de contrôler la qualité de nos mesures.

Chaque décalage est décrit par une représentation du champ de vitesse adimensionné par la vitesse d’approche  $V_a$  en quatre positions. Lorsque le drainage est majoritairement horizontal (décalage de  $0.5R$  et  $R$ ), nous les présentons à quatre abscisses  $r/R$ . Lorsque le drainage est majoritairement vertical (décalage de  $1.5R$  et  $2R$ ), nous les présentons à quatre côtes  $z/R$ . Nous examinons ensuite les profils des composantes  $V_r$  et  $V_z$  de la vitesse (également adimensionnée par  $V_a$ ) en ces positions pour des nombres de Reynolds de 10 et 29. Le repère reste cylindrique mais l’origine se situe sur la sphère fixe, à l’endroit où la distance la plus courte entre les sphères vaut  $\Delta z = R/10$  (voir fig. 4.12).

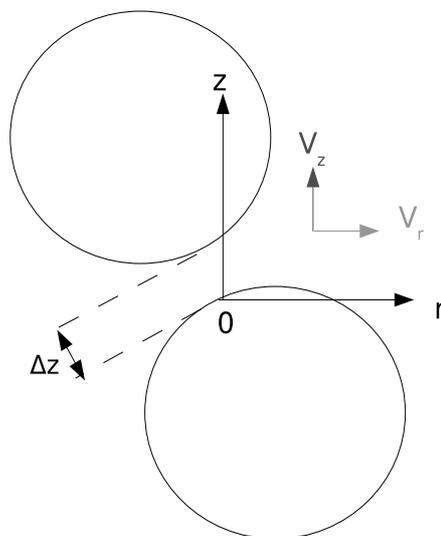


FIG. 4.12 – Représentation du repère cylindrique pour l’étude des chocs décalés.

## 6.1 Décalage de $0.5R$

C'est le décalage pour lequel les résultats doivent être les plus proches de ceux obtenus en collision frontale. La figure 4.13 présente le champ de vitesse en quatre abscisses :  $r/R = -0.22$ ,  $r/R = -0.05$ ,  $r/R = 0.07$  et  $r/R = 0.22$  afin de faciliter la représentation du système. Les graphes (a), (b), (c) et (d) de la figure 4.14 détaillent les composantes  $V_r$  et  $V_z$  à chacune de ces abscisses dans l'ordre croissant. Deux éléments principaux sont à observer. Premièrement une dissymétrie assez forte en terme d'intensité existe sur la composante radiale  $V_r$  entre les positions les plus éloignées de l'origine (a et d) au nombre de Reynolds de 29 :  $V_r$  atteint  $V_a$  en (d) et seulement  $-0.6V_a$  en (a), bien que les abscisses soient équidistantes de l'origine. Cet aspect reste vrai à  $Re = 10$  mais est moins marqué. Deuxièmement, la composante axiale de la vitesse  $V_z$  est quasiment inchangée lorsque  $r$  varie. Ceci est cohérent avec un drainage plus intense pour les  $r$  positifs pour lesquels le fluide drainé est plus contraint dans son mouvement.

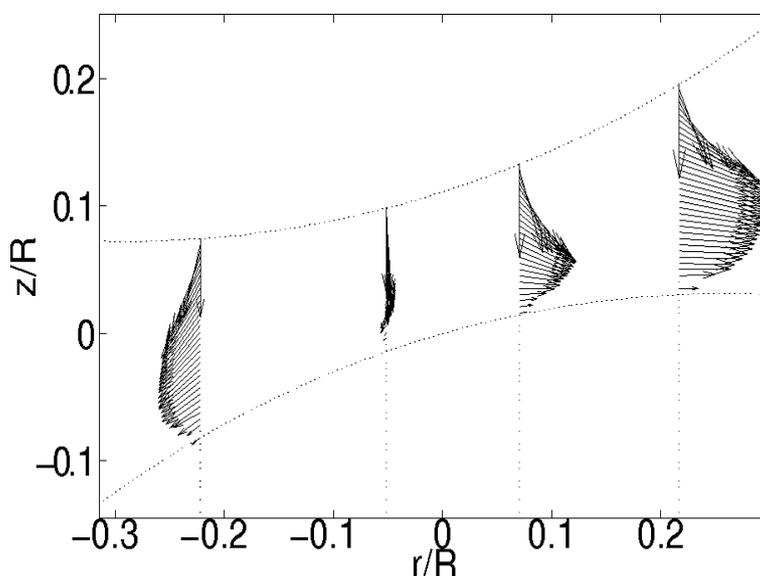


FIG. 4.13 – Champ de vitesse pour un décalage de  $0.5R$  dans l'eau à  $Re = 29$  et  $\Delta z = R/10$ .

On observe aussi que les composantes adimensionnées  $V_z/V_a$  sont très proches voire superposées sur la figure 4.14d contrairement aux composantes  $V_r/V_a$ . On en déduit que le fluide éjecté du volume entre les sphères pourrait donc être évacué préférentiellement selon la direction  $\theta$  pour de faibles nombres de Reynolds. Néanmoins, pour ce décalage uniquement, on ne peut pas totalement l'affirmer. En effet, bien que le pas de temps soit identique à celui utilisé pour les collisions frontales, la précision des mesures, basée sur la comparaison entre la vitesse de descente imposée et la vitesse mesurée des particules de rhodamine dans la sphère, est légèrement inférieure à 8% si  $Re = 29$  et 26% si  $Re = 10$ . L'erreur propre à  $Re = 10$  est donc surprenante. Elle est de loin supérieure à l'erreur obtenue dans le cas d'un décalage plus important, au même nombre de Reynolds. Elle est sûrement due à une détérioration de la suspension dans la sphère mobile, les mesures en décalage  $0.5R$  ayant été les dernières effectuées.

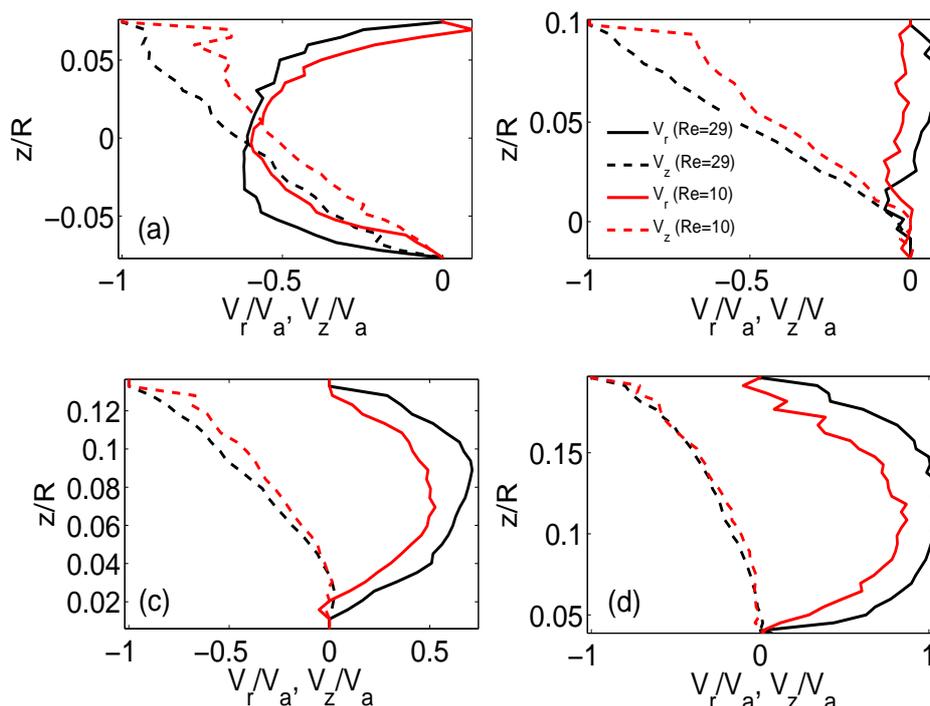


FIG. 4.14 – Composantes radiale  $V_r$  et axiale  $V_z$  aux abscisses successives  $r/R = -0.22$  (a),  $r/R = -0.05$  (b),  $r/R = 0.07$  (c) et  $r/R = 0.22$  (d) pour  $Re = 10$  et  $Re = 29$  quand les sphères sont décalées de  $0.5R$ .

## 6.2 Décalage de $R$

Quand le décalage des sphères est de  $R$ , la vision globale du drainage au nombre de Reynolds  $Re = 29$  (voir figure 4.15), montre sans surprise une diminution de la vitesse radiale  $V_r$  aux abscisses  $r$  négatives, par rapport au cas du décalage de  $0.5R$  (comparaison des graphes 4.13 et 4.15). En corollaire, lorsque les sphères sont décalées de  $R$ , la vitesse radiale  $V_r$  pour les abscisses positives est renforcée ; l'écoulement devient plus vertical. Un résultat similaire a été observé pour  $Re = 10$ . En effet si on regarde en détail les profils axiaux de la vitesse radiale aux différentes abscisses,  $V_r/V_a$  varie de 0.4 pour  $r/R = -0.23$  (fig. 4.16a) jusqu'à 1 pour  $r/R = 0.18$  (fig. 4.16d). Mais ce qui contraste surtout par rapport au décalage de  $0.5R$ , c'est la superposition des vitesses axiales  $V_z$  pour les nombres de Reynolds 10 et 29 (fig. 4.16), quelle que soit la position dans le film drainé. Le nombre de Reynolds ne semble donc avoir aucun impact sur le profil de  $V_z$  alors qu'il en a un sur celui de  $V_r$  : à  $r/R = -0.07$  et  $r/R = 0.18$  où  $V_r$  est positive (voir figures 4.16c et 4.16d), le nombre de Reynolds de 29 engendre une vitesse radiale supérieure à celle existant à un nombre de Reynolds de 10. Inversement, à  $r/R = -0.23$  et  $r/R = -0.16$  où  $V_r$  est négative (voir figure 4.16a et 4.16b), le nombre de Reynolds de 29 engendre une vitesse radiale inférieure en valeur absolue à celle existant à un nombre de Reynolds de 10. Cela signifie donc que, comme les composantes axiales  $V_z$  sont identiques, plus le nombre de Reynolds est faible, plus le fluide est chassé de l'entrefer par les abscisses négatives au delà de  $r = -0.07R$  (cf. figure 4.15). A l'opposé, un nombre de

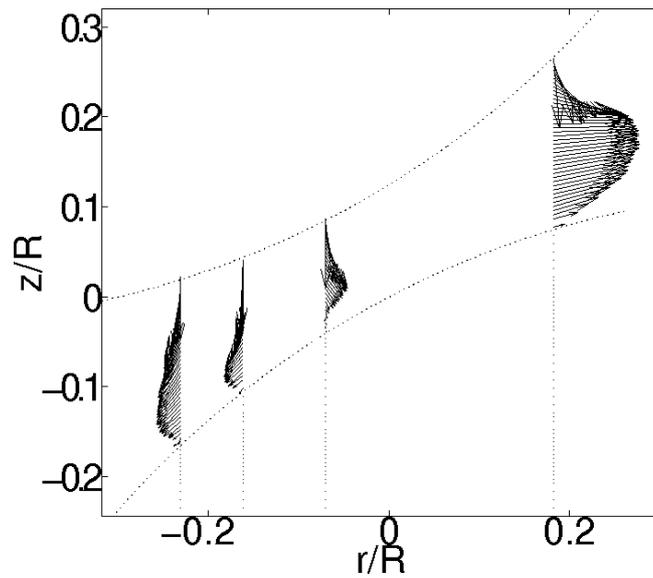


FIG. 4.15 – Champ de vitesse pour un décalage de  $R$  dans l'eau à  $Re = 29$  et  $\Delta z = R/10$ .

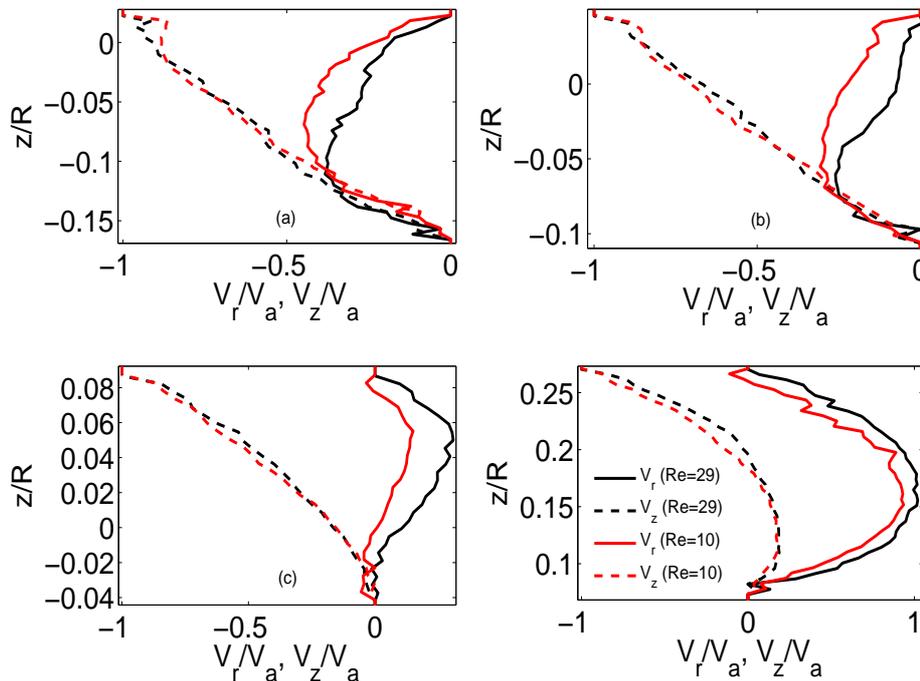


FIG. 4.16 – Composantes radiale  $V_r$  et axiale  $V_z$  aux abscisses successives  $r/R = -0.23$  (a),  $r/R = -0.16$  (b),  $r/R = -0.07$  (c) et  $r/R = 0.18$  (d) pour  $Re = 10$  et  $Re = 29$  quand les sphères sont décalées de  $1R$ .

Reynolds plus élevé se traduit par un drainage qui se développe préférentiellement dans le sens des abscisses positives. Enfin, il est intéressant de remarquer l'évolution

du profil axial de  $V_z$ . Contrairement aux trois premières abscisses (fig. 4.16a, 4.16b, 4.16c) pour lesquelles la décroissance de  $V_z$  en valeur absolue de  $V_a$  à 0 se fait de manière quasi-linéaire en fonction de  $z/R$ , on commence à observer un changement de signe de  $V_z$ . Dans ce cas, à  $r/R = 0.18$  (fig. 4.16d), le fluide se trouve soumis à deux sollicitations verticales antagonistes par simple effet géométrique, alors même qu'une seule des sphères est en mouvement dans notre cas. Ce phénomène s'amplifie pour les décalages de  $1.5R$  et  $2R$ , comme nous le verrons plus loin.

### 6.3 Décalage de $1.5R$

Lorsque les sphères sont décalées de  $1.5R$  (voir figure 4.17), l'écoulement de drainage devient majoritairement vertical, ce qui renforce la configuration de contre-courant sur la zone correspondant aux  $r$  positifs. Par conséquent, il est cette fois-ci

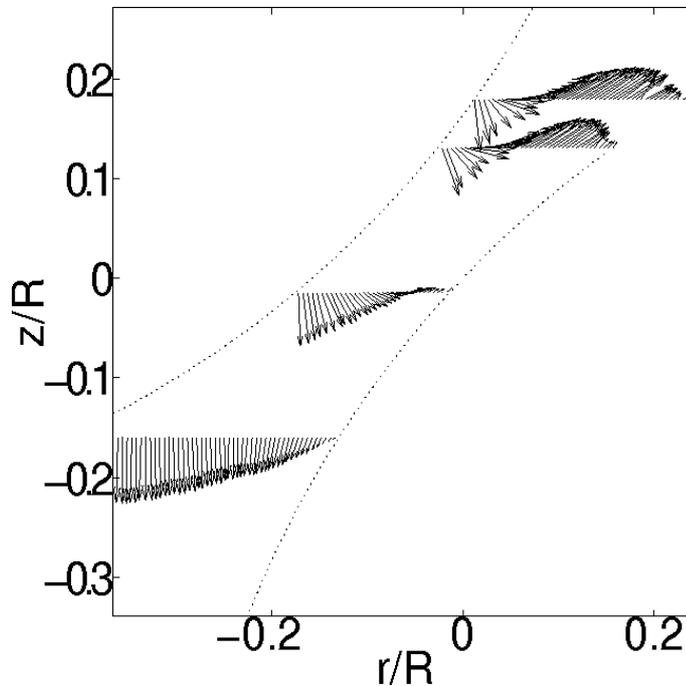


FIG. 4.17 – Champ de vitesse pour un décalage de  $1.5R$  dans l'eau à  $Re = 29$  et  $\Delta z = R/10$ .

plus judicieux d'étudier les variations radiales de la vitesse à différentes côtes  $z/R$  et non plus à différentes abscisses  $r/R$ . Les quatre graphes de la figure 4.18 représentent les composantes  $V_r$  et  $V_z$  aux côtes  $z/R = 0.18$  (a),  $z/R = 0.13$  (b),  $z/R = -0.01$  (c), et  $z/R = -0.16$  (d). Ils mettent en évidence deux caractéristiques importantes. Tout d'abord,  $V_z$  est négative au voisinage de la sphère mobile et positive au voisinage de la sphère fixe dans les trois premiers cas (a, b et c). L'amplitude la plus importante se produit logiquement à la côte la plus haute  $z/R = 0.18$  (4.18a) :  $V_z$  varie entre  $-V_a$  à la frontière supérieure et  $0.48V_a$  dans la partie centrale de l'entrefer. D'autre part  $V_r$  est positive sur les figures 4.18a, 4.18b, et 4.18c. Si on interprète ces informations en relation avec le procédé de broyage, en terme de probabilité de capture des particules dans la zone de contrainte entre billes de broyage, on peut conclure que la conjugaison

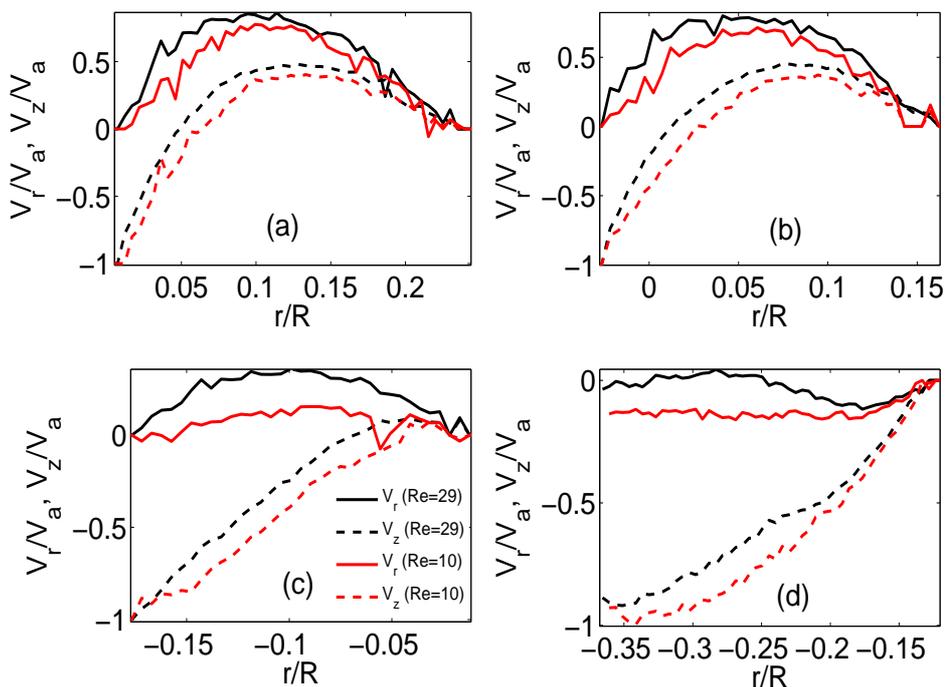


FIG. 4.18 – Composantes radiale  $V_r$  et axiale  $V_z$  aux côtes successives  $z/R = 0.18$  (a),  $z/R = 0.13$  (b),  $z/R = -0.01$  (c), et  $z/R = -0.16$  (d), pour  $Re = 10$  et  $Re = 29$  quand les sphères sont décalées de  $1.5R$ .

des deux tendances sur  $V_r$  et  $V_z$  concourt à maintenir les particules se trouvant dans l'entrefer à proximité de la sphère immobile. Leur probabilité d'être capturées doit donc s'accroître. Et ce d'autant plus que le nombre de Reynolds est élevé, puisqu'à chaque côte il renforce  $V_r$  au détriment de  $V_z$ .

## 6.4 Décalage de $2R$

Le champ de vitesse, lorsque le décalage entre les sphères vaut  $2R$  (voir figure 4.19), semble accentuer le caractère favorable au piégeage des particules : le mouvement de la sphère contraint les particules à se diriger vers la surface de la sphère fixe, là où la sphère doit impacter. La sphère haute joue un peu le rôle de rabatteur.

Confirmation est donnée par la composante  $V_r$  positive aux côtes décrites sur les quatre graphes de la figure 4.20.  $V_r$  ne dépasse cependant pas  $0.4V_a$  (fig. 4.20d). Parallèlement, la composante  $V_z$  qui est toujours négative aux côtes les plus basses ( $z/R = -0.22$ , fig. 4.20c et  $z/R = -0.44$ , fig. 4.20d) varie entre  $-V_a$  et  $0.5V_a$  aux deux plus hautes ( $z/R = 0.16$ , fig. 4.20a et  $z/R = -0.03$ , fig. 4.20b). Donc, par rapport au cas où les sphères sont décalées de  $1.5R$ , on vérifie que le mouvement vertical descendant du fluide est favorisé par rapport au mouvement horizontal ( $V_z$  atteint  $-V_a$  à  $z/R = -0.22$  et  $z/R = -0.44$ ) tandis que le mouvement vertical ascendant présente le même maximum de vitesse axiale avec  $V = 0.5V_a$  (fig. 4.20a). Néanmoins, la diminution de l'amplitude de variation de  $V_z$  entre ses valeurs positives et ses valeurs négatives à une côte donnée suggère que la vitesse de cisaillement

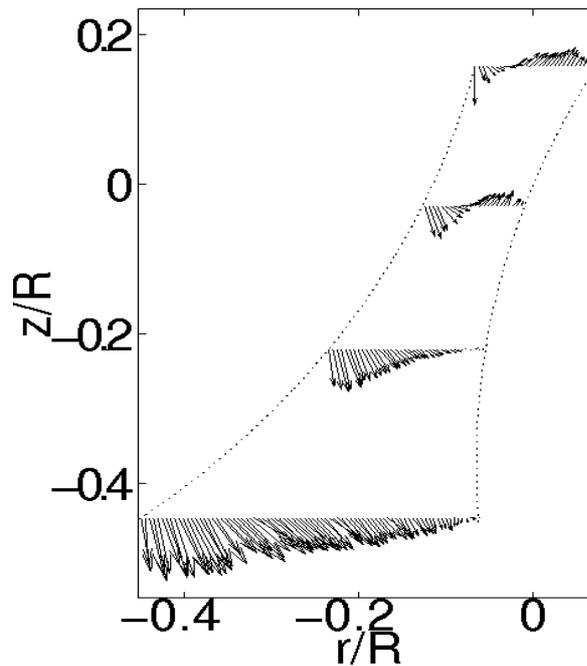


FIG. 4.19 – Champ de vitesse pour un décalage de  $2R$  dans l'eau à  $Re = 29$  et  $\Delta z = R/10$ .

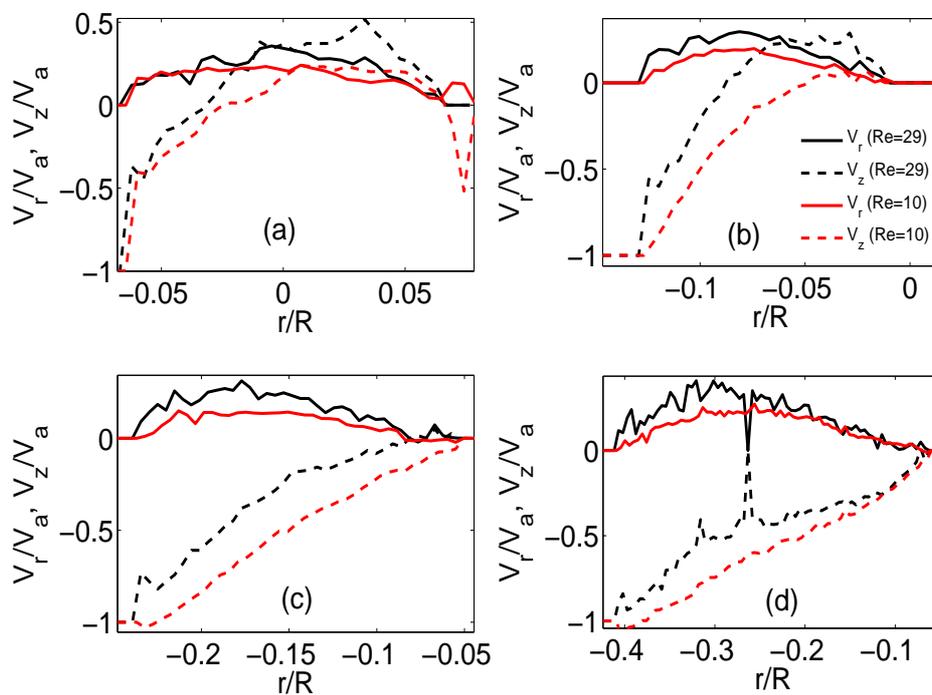


FIG. 4.20 – Composantes radiale  $V_r$  et axiale  $V_z$  aux côtes successives  $z/R = 0.16$  (a),  $z/R = -0.03$  (b),  $z/R = -0.22$  (c), et  $z/R = -0.44$  (d) pour  $Re = 10$  et  $Re = 29$  quand les sphères sont décalées de  $2R$ .

dans l'entrefer est plus faible pour un décalage entre les sphères de  $2R$  que pour un décalage de  $1.5R$ . Ce point sera examiné dans la suite de ce chapitre. Enfin, on a toujours les composantes radiales  $V_r$  de la vitesse plus fortes à  $Re = 29$  qu'à  $Re = 10$  mais les composantes axiales  $V_z$  plus fortes à  $Re = 10$  qu'à  $Re = 29$ .

## 7 Etude du champ de cisaillement entre les sphères

Analytiquement, la vitesse de cisaillement se définit dans le cas général de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \dot{\gamma}^2 = & 2 \left( \frac{\partial V_r}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial V_z}{\partial z} \right)^2 + 2 \left( \frac{1}{r} \frac{\partial V_\theta}{\partial \theta} + \frac{V_r}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial V_r}{\partial z} + \frac{\partial V_z}{\partial r} \right)^2 \\ & + \left( r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_\theta}{r} \right) + \frac{1}{\partial r} \frac{V_r}{\partial \theta} \right)^2 + \left( \frac{1}{\partial r} \frac{V_z}{\partial \theta} + \frac{V_\theta}{\partial z} \right)^2 \end{aligned} \quad (4.1)$$

Dans le cas d'un écoulement axisymétrique, en l'occurrence lorsque les sphères sont en approche frontale, il se réduit à l'expression suivante :

$$\dot{\gamma} = \left[ 2 \left( \frac{\partial V_r}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial V_z}{\partial z} \right)^2 + 2 \left( \frac{V_r}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial V_r}{\partial z} + \frac{\partial V_z}{\partial r} \right)^2 \right]^{0.5} \quad (4.2)$$

En configuration de choc décalé où l'écoulement est tridimensionnel, on parvient à la même expression à condition de se placer, comme on l'a fait, dans le plan  $\theta = 0$ . Le terme  $\frac{V_r}{r}$ , qui devient une forme indéterminée à l'origine, est identifié grâce à l'équation de continuité qui s'écrit dans les deux configurations de rapprochement :

$$\frac{\partial V_r}{\partial r} + \frac{V_r}{r} + \frac{\partial V_z}{\partial z} = 0 \quad (4.3)$$

Seules les composantes  $V_r$  et  $V_z$  de la vitesse sont donc nécessaires pour calculer la vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . Celle-ci sera adimensionnée par  $R/V_a$ . A l'instar de l'étude du champ de vitesse, les champs de vitesse de cisaillement sont maintenant détaillés en fonction des différents paramètres de l'expérience. Remarquons dès à présent que les erreurs de mesure sur les champs de vitesse vont entraîner des incertitudes importantes sur les vitesses de cisaillement, liées au calcul des dérivées.

### 7.1 Evolution du champ de cisaillement en fonction de la distance entre les sphères

La vitesse de drainage augmentant à mesure que l'espace  $\Delta z$  entre les sphères diminue, la vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}$  doit évoluer de la même manière. La figure 4.21 en apporte la confirmation. En passant de  $\Delta z = R/3$  à  $\Delta z = R/10$ , la vitesse de cisaillement augmente au moins d'un facteur 3. Cette figure permet aussi de voir que les intensités de cisaillement les plus fortes se déplacent de la surface latérale de la sphère mobile lorsque  $\Delta z = R/3$  aux deux surfaces en approche et autour de l'axe  $z$  (de  $r/R = 0$  jusqu'à  $r/R = 0.2$ ) lorsque  $\Delta z = R/10$ . Cette intensification de la vitesse de cisaillement lorsque l'espace entre les sphères diminue est quantitativement observable sur la figure 4.22 qui montre son profil adimensionné à  $r = 0.44R$  pour

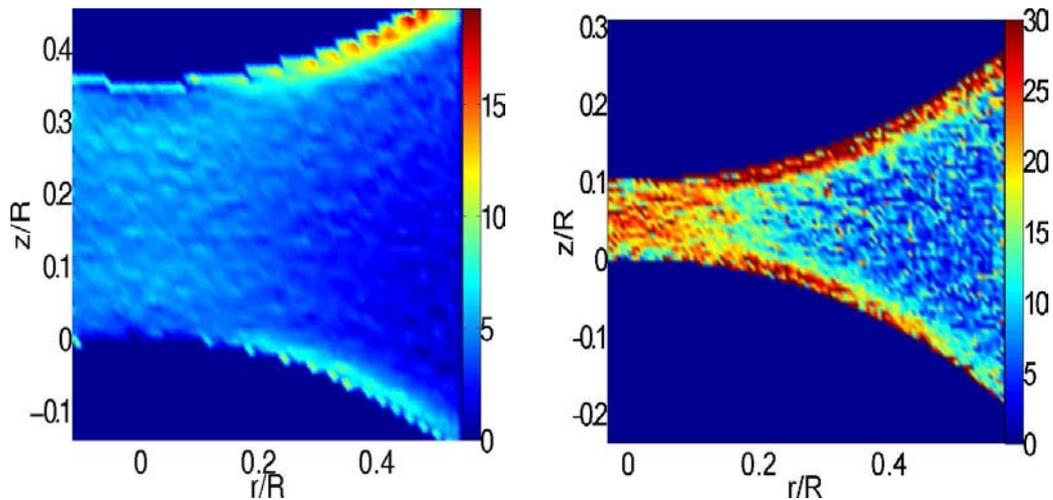


FIG. 4.21 – Champs de cisaillement adimensionnel dans l'eau pour une même vitesse d'approche à  $\Delta z = R/3$  ( $Re = 93$ ) à gauche et  $\Delta z = R/10$  ( $Re = 29$ ) à droite.

$\Delta z = R/3$  et  $\Delta z = R/10$ . A la paroi de la sphère mobile, le maximum de la vitesse de cisaillement est trois fois plus grand. A la paroi de la sphère fixe, il est quatre fois plus grand. Au coeur de l'entrefer, la vitesse de cisaillement adimensionnelle est seulement deux fois plus forte. On peut également noter que le profil à  $\Delta z = R/10$  est un peu plus symétrique que celui à  $\Delta z = R/3$ , comme nous l'avons observé pour le champ de vitesse.

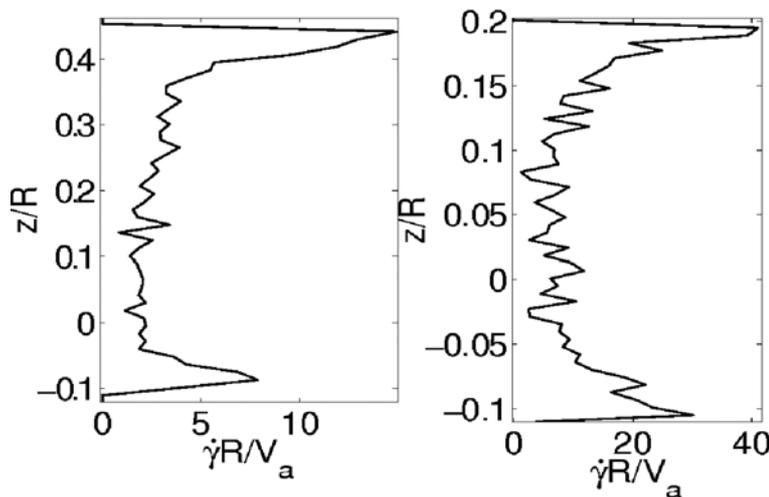


FIG. 4.22 – Profils de la vitesse de cisaillement adimensionnelle dans l'eau pour une même vitesse d'approche à  $r = 0.44R$ . A gauche,  $\Delta z = R/3$  ( $Re = 93$ ) et à droite  $\Delta z = R/10$  ( $Re = 29$ ).

## 7.2 Evolution du champ de cisaillement en fonction de la vitesse relative d'approche

L'analyse des profils de vitesse  $V_r$  adimensionnés par la vitesse d'approche  $V_a$  n'avait pas montré de différences significatives lorsque les vitesses d'approches changeaient. De façon cohérente, les champs de vitesse de cisaillement, qui traduisent ici

l'évolution spatiale de l'ensemble des composantes de la vitesse, ne présentent pas de différence significative comme le montre la figure 4.23 proposée pour un entrefer  $\Delta z = R/10$  et les nombres de Reynolds  $Re = 10$  et  $Re = 29$ . Les valeurs de la vitesse de cisaillement semblent néanmoins légèrement plus intenses à proximité de la sphère en mouvement quand  $Re = 29$ . Il en ressort donc que, dans la gamme de vitesse traitée, les particules en suspension sont soumises à des vitesses de cisaillement proportionnelles à la vitesse d'approche.

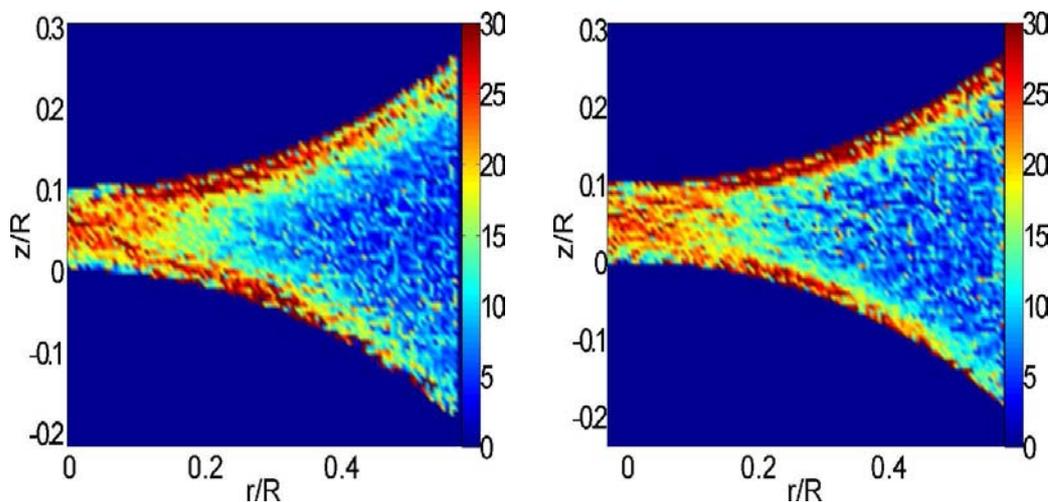


FIG. 4.23 – Champs de cisaillement adimensionnel dans l'eau pour  $Re = 10$  à gauche et  $Re = 29$  à droite lorsque  $\Delta z = R/10$ .

### 7.3 Evolution du champ de cisaillement en fonction du décalage entre les sphères

Afin de faciliter la comparaison entre les différents décalages, les figures 4.24 et 4.25 présentent les champs de cisaillement pour  $z = R/10$  et  $Re = 29$  pour chacun d'entre eux ( $0R$ ,  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$ ). Les extrema de la vitesse de cisaillement varient d'une configuration à l'autre. Nous avons choisi de représenter les champs de cisaillement en utilisant la même palette de couleur afin de pouvoir comparer les différentes configurations entre elles. Sur la figure 4.24, nous avons privilégié la comparaison dans tout l'entrefer en choisissant une palette limitée à la gamme  $[0 \ 30]$ . Puis afin de comparer les valeurs extrêmes obtenues, nous avons utilisé une palette de couleur couvrant la gamme  $[0 \ 100]$  pour la figure 4.25.

Le premier constat évident est que la zone de fort cisaillement à la paroi de la sphère fixe pour les  $r$  négatifs tend à disparaître à mesure que le décalage augmente, contrairement à ce qui se passe à la surface de la sphère mobile pour les  $r$  positifs où l'aire des vitesses de cisaillement supérieures ou égales à  $30V_a/R$  s'étend de manière importante pour les décalages  $R$  et  $1.5R$  (cf. figure 4.25).

Plus quantitativement, la figure 4.26 présente les profils des vitesses de cisaillement adimensionnelles dans l'eau lorsque les sphères sont distantes de  $R/10$  pour les décalages  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$  entre les deux sphères, à  $Re = 29$ . Les profils sont tracés à une distance, verticale ou horizontale selon le décalage, de  $0.15R$  de part et d'autre de l'origine. En observant ces profils à  $r = 0.15R$  ou  $z = 0.15R$ , on

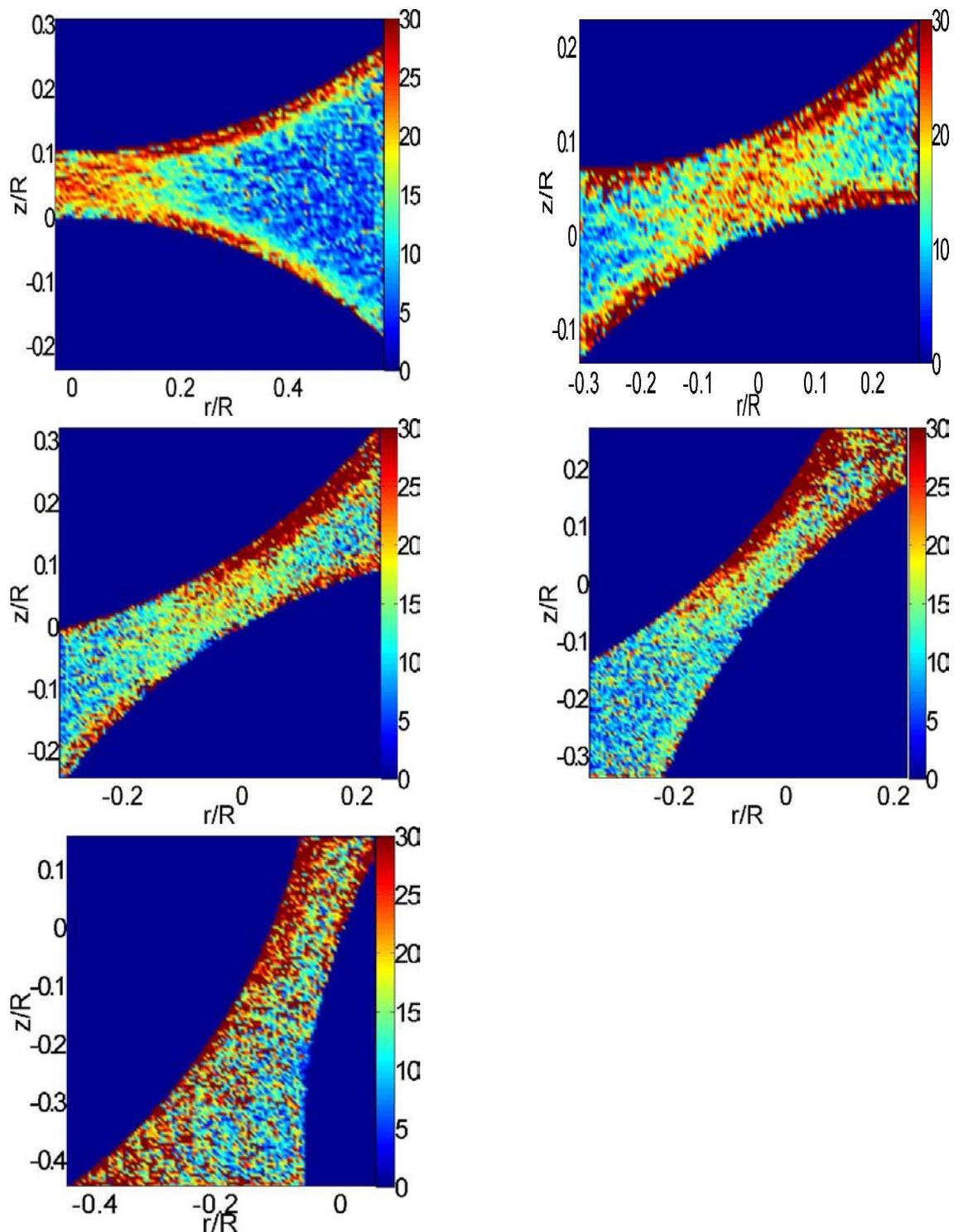


FIG. 4.24 – Confrontation des champs de cisaillement adimensionnels sur une échelle de 0 à 30, dans l'eau, entre les sphères séparées de  $R/10$  pour les décalages  $0R$ ,  $0.5R$ ,  $1R$ , et  $1.5R$  et  $2R$  entre les deux sphères, pour  $Re = 29$ .

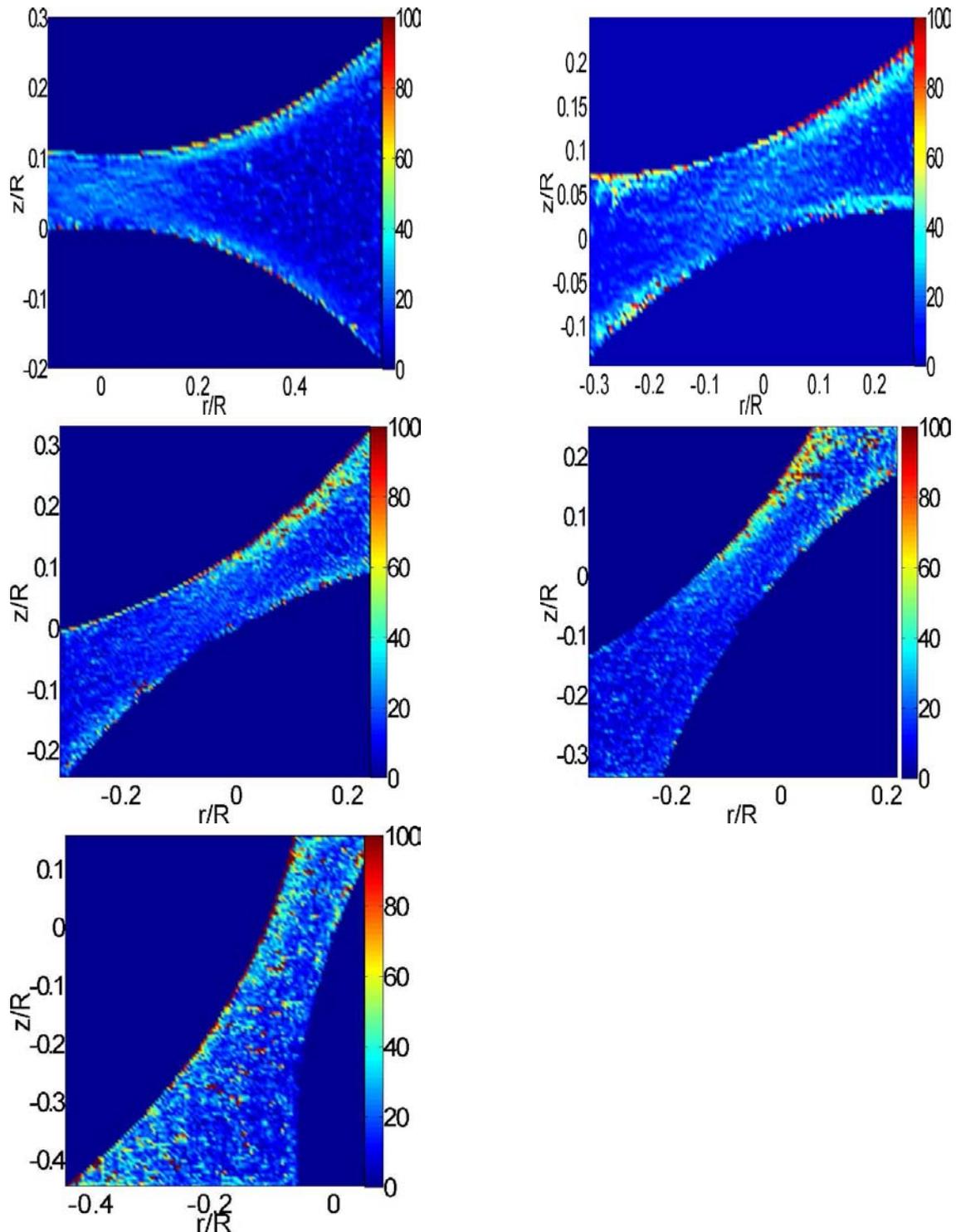


FIG. 4.25 – Confrontation des champs de cisaillement adimensionnels sur une échelle de 0 à 100, dans l'eau, entre les sphères séparées de  $R/10$  pour les décalages  $0R$ ,  $0.5R$ ,  $1R$ , et  $1.5R$  et  $2R$  entre les deux sphères, pour  $Re = 29$ .

remarque que la vitesse de cisaillement est relativement indépendante du décalage :  $\dot{\gamma}$  vaut  $40V_a/R$  à proximité de la surface fixe et approximativement  $110V_a/R$  à la surface de la sphère mobile. A l'inverse,  $\dot{\gamma}$  à  $r = -0.15R$  ou  $z = -0.15R$  diminue lorsque le décalage augmente au niveau de la sphère fixe avec successivement  $80V_a/R$ ,  $40V_a/R$ ,  $25V_a/R$  et  $20V_a/R$ , alors qu'à la surface de la sphère supérieure  $\dot{\gamma}$  est d'abord constant pour les décalages  $0.5R$  et  $1R$  ( $\dot{\gamma} = 40V_a/R$ ) puis diminue jusqu'à  $25V_a/R$  pour un décalage de  $1.5R$  et augmente finalement pour le dernier décalage avec  $60V_a/R$ . La différence d'intensité la plus grande entre coordonnées positives et coordonnées négatives est donc la plus forte quand le décalage est de  $1.5R$ .

Ces valeurs sont en outre bien supérieures à celles qui se rapportent à la configuration de choc frontal qui ne dépassaient pas 40 à la paroi des sphères et environ 5 dans la partie centrale de l'entrefer (voir figure 4.22) pour le même  $\Delta z$ .

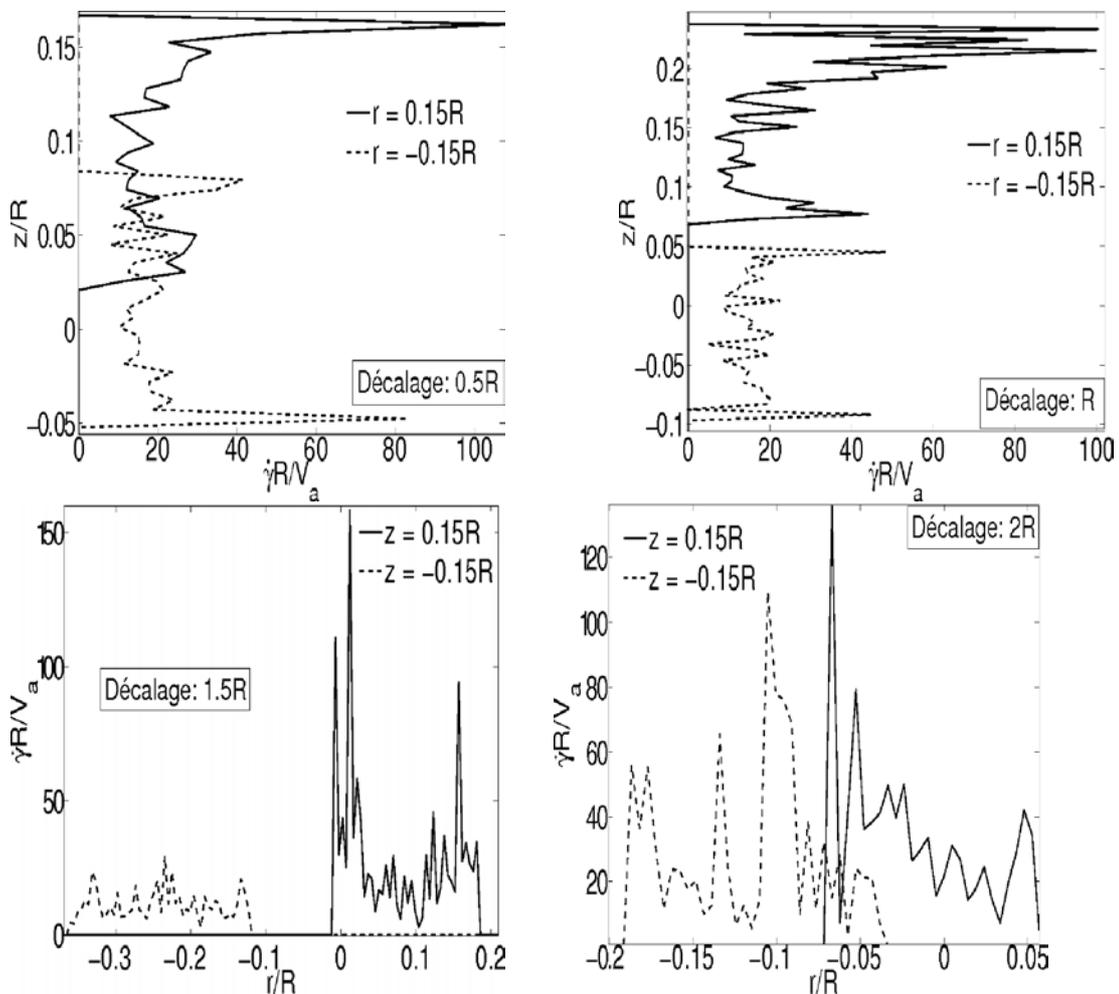


FIG. 4.26 – Profils des vitesses de cisaillement adimensionnelles dans l'eau entre les sphères séparées de  $R/10$  pour les décalages  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$  entre les deux sphères, pour  $Re = 29$  et à une distance de  $0.15R$  de part et d'autre de l'origine (vitesses de cisaillement maximales à la surface des sphères).

## 7.4 Evolution du champ de cisaillement en fonction de la nature du fluide

Le calcul des champs de vitesse de cisaillement nous permet de quantifier l'influence du caractère non-newtonien et vient justifier les observations faites sur les profils de vitesse, à savoir une très faible influence du caractère rhéofluidifiant dans les configurations analysées. La figure 4.27 montre une comparaison des vitesses de cisaillement  $\dot{\gamma}$  adimensionnées par  $R/V_a$  dans l'eau et le Xanthane 2 à un même nombre de Reynolds de 20 et pour la même abscisse radiale  $r = 0.44R$ . Mis à part le maximum en bordure de la sphère mobile (un seul point), la similarité entre les deux profils est très grande. Elle confirme que les variations de la vitesse de cisaillement sont bien trop faibles pour engendrer un effet lié au caractère non-newtonien, à cet entrefer en tout cas. Le Xanthane 2, bien que relativement rhéofluidifiant ( $n = 0.68$ ,  $m = 0.0164 Pa.s^n$ ), se comporte à ces faibles vitesses de cisaillement comme un fluide newtonien. Il en va de même pour le Xanthane 1. Rappelons que l'augmentation de la vitesse de cisaillement d'un facteur 10 ne fait que diviser la viscosité du fluide par un facteur 2.6 dans le cas du Xanthane 1 ( $n = 0.583$ ) et par 2.1 dans le cas du Xanthane 2 ( $n = 0.68$ ).

Sur les profils présentés sur la figure 4.27 ( $r = 0.44R$ ), la vitesse de cisaillement varie approximativement entre 5 et 30  $V_a/R$ . Si on se réfère au rhéogramme de cette solution de Xanthane, une telle plage de variation entraîne des viscosités variant environ dans un facteur 2. Toutefois, les vitesses de cisaillement augmentant fortement lorsque les sphères se rapprochent, il n'est pas exclu que le caractère rhéofluidifiant devienne un facteur plus important à ce moment là. Nos expérimentations ne nous permettent malheureusement pas d'accéder à ces instants avec suffisamment de précision. On notera également que les maxima de vitesse de cisaillement étant supérieurs dans le cas des chocs décalés, l'influence du caractère rhéofluidifiant serait peut-être légèrement plus importante dans ce cas.

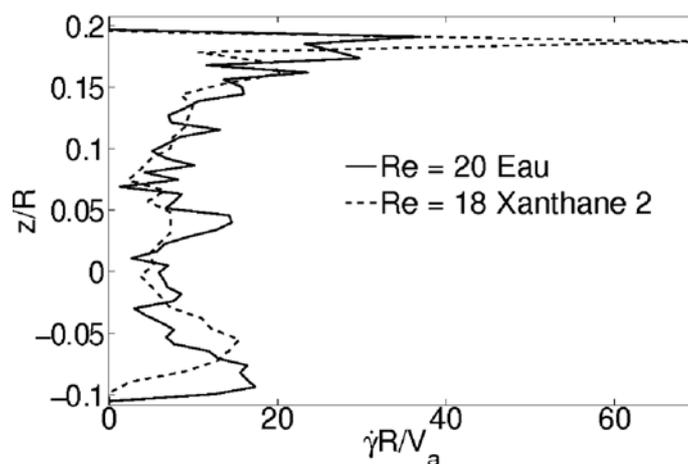


FIG. 4.27 – Profils de vitesse de cisaillement à  $r = 0.44R$  dans l'eau et le Xanthane 2 à un nombre de Reynolds voisin de 20 pour  $\Delta z = R/10$ .

## 8 Estimation de l'efficacité de capture de particules en suspension

Comme cela a été présenté dans le chapitre précédent, deux approches ont été développées pour estimer l'efficacité de capture des particules lorsque deux billes de broyage entrent en collision. La première s'appuie sur la connaissance des champs de vitesse du fluide pour calculer la trajectoire de sphères dont on choisit les propriétés afin qu'elles répondent aux similitudes avec la situation réelle des particules dans le broyeur. La seconde est une mesure directe du déplacement de billes réelles, vérifiant toujours les similitudes avec les particules dans le broyeur.

Un premier aperçu des trajectoires peut être obtenu par superposition de  $n$  images successives, comme le montre la figure 4.28 qui représente la superposition de 500 images, soit 1.25 s et un déplacement de la sphère mobile  $\Delta z = 2.75$  mm. Remarquons que cette intégration sur 500 images représente un laps de temps relativement long au cours duquel le champ de vitesse a fortement évolué.

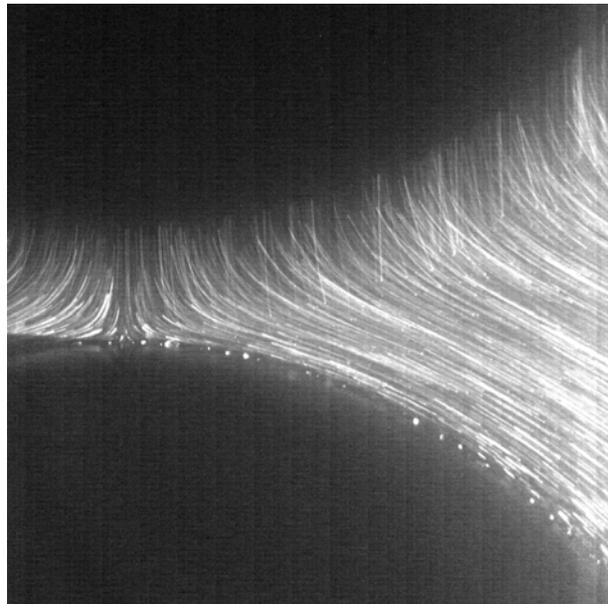


FIG. 4.28 – Visualisation des trajectoires des particules de rhodamine dans l'eau à  $Re = 7$  et  $\Delta z = R/10$ .

### 8.1 Détermination des trajectoires de particules à l'aide des champs de vitesse

Le calcul des trajectoires de particules sphériques inertielles à partir des champs de vitesse a été présenté dans le paragraphe 4.5 du chapitre 3. En utilisant cette démarche, nous avons calculé les trajectoires des particules transportées par le fluide pour ensuite examiner si elles restaient dans la zone de capture, lorsque les sphères arrivent au contact. Cette zone de capture dépend bien évidemment du rayon des sphères  $R$  et du rayon des particules  $R_p$ , et se caractérise par un rayon  $L_a$  tel que représenté sur la figure 4.29.  $L_a$  est la distance maximale à l'axe de symétrie

joignant le centre des sphères en dessous de laquelle les particules sont capturées par les sphères.  $L_a$  s'écrit aisément en fonction du rayon des sphères  $R$  et du rayon des particules  $R_p$  :

$$L_a = \sqrt{R_p^2 + 2RR_p} \quad (4.4)$$

Ainsi, une particule d'un rayon  $R_p$  de  $14 \mu\text{m}$  sera capturée si elle est à moins de  $0.855 \text{ mm}$  de l'axe  $z$  lorsque les billes se touchent. Une particule d'un rayon  $R_p$  de  $140 \mu\text{m}$  devra être à moins de  $2.8 \text{ mm}$ . Le principe de cette zone de capture s'applique aussi dans le cas des chocs décalés à ceci près que  $L_a$  n'est plus définie à partir de l'axe  $z$  mais à partir de l'axe joignant le centre des deux sphères.

Le calcul de ces trajectoires suppose la connaissance du champ de vitesse à tout

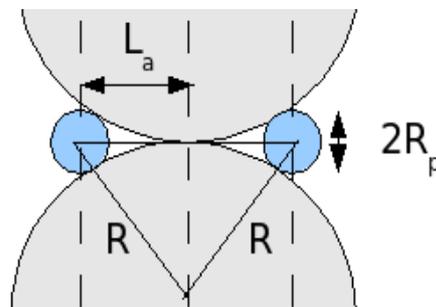


FIG. 4.29 – Schéma représentatif de la zone de capture des particules entre  $r = 0$  et  $r = L_a$  lors d'un choc frontal.

instant lors de la phase étudiée. Le calcul de l'ensemble de ces champs est lourd. Il n'est plus possible dans ce cas de procéder comme pour les champs de vitesse, c'est à dire de calculer puis de traiter pour en extraire un profil moyen, les dix séquences habituellement utilisées pour une configuration donnée. Nous avons donc travaillé ici sur une seule séquence d'acquisition et calculé les champs de vitesse tous les  $1/400\text{s}$  ( $V_a = 10\text{mm/s}$ ) ou les  $3/400\text{s}$  ( $V_a = 3.5\text{mm/s}$ ). Les trajectoires sont donc particulièrement sensibles à la présence de vecteurs faux non détectés et il est bien évident que le calcul d'un champ moyen sur l'ensemble des séquences améliorerait ce suivi de particules. De plus, le calcul a été fait sans déformation pour des gains de temps évidents.

A partir d'une configuration de départ arbitraire où les sphères sont distantes de  $z_o/R$ , nous avons positionné les particules dans différentes sections d'ordonnées  $z_i/R$ . En pratique, dans chacune de ces sections, nous avons positionné des particules en chaque noeud du maillage utilisé pour les mesures PIV. Le calcul des trajectoires de ces particules nous permet de déterminer celles qui seront dans la zone efficace en fin de séquence. Nous accédons ainsi, pour chaque section, au rayon de la zone contenant les particules qui seront dans la zone active lors du broyage par collision de deux billes de broyage.

Nous avons restreint l'étude au suivi de deux types de particules de même masse volumique ( $2700 \text{ kg/m}^3$ ), de diamètre  $28$  et  $280 \mu\text{m}$ , et pour des vitesses de  $3.5\text{mm/s}$  et  $10 \text{ mm/s}$ . En considérant que les sphères qui se rapprochent jouent le rôle de billes de broyage de  $200 \mu\text{m}$  de diamètre, les particules testées correspondent à des particules de  $100 \text{ nm}$  et  $1 \mu\text{m}$  respectivement.

### Dans le cas des chocs frontaux

Tout d'abord, nous avons comparé les trajectoires des deux types de particules pour décrire l'influence de leur diamètre et donc de leur inertie. Il est apparu que celles-ci diffèrent relativement peu tout au long du processus de rapprochement des sphères. En effet, comme le montre la figure 4.30 dans le cas où la vitesse d'approche  $V_a$  est imposée à  $10\text{mm/s}$ , ces trajectoires se distinguent uniquement quand l'entrefer devient faible devant le rayon des sphères, donc lorsque le drainage devient intense et incurve la forme des trajectoires (les particules sont chassées latéralement suivant  $r$ ). C'est à ce moment que les particules les plus inertielles sont un peu plus attirées vers la sphère immobile que les autres particules. C'est un premier indice qui va dans le sens d'une plus grande probabilité de capture pour les particules les plus grosses. Lorsque  $V_a = 3.5\text{mm/s}$ , on n'observe plus aucune différence entre les trajectoires de particules de diamètre  $D_p = 280\mu\text{m}$  et celles de diamètre  $D_p = 28\mu\text{m}$ . A cette vitesse de rapprochement, le diamètre des particules n'a pas d'influence sur les trajectoires. Mais comme il détermine la dimension du volume actif (ou  $L_a$ ), la probabilité de capture sera plus grande pour la particule de plus grand diamètre. La seule raison en est l'encombrement stérique des particules, indépendamment de l'hydrodynamique.

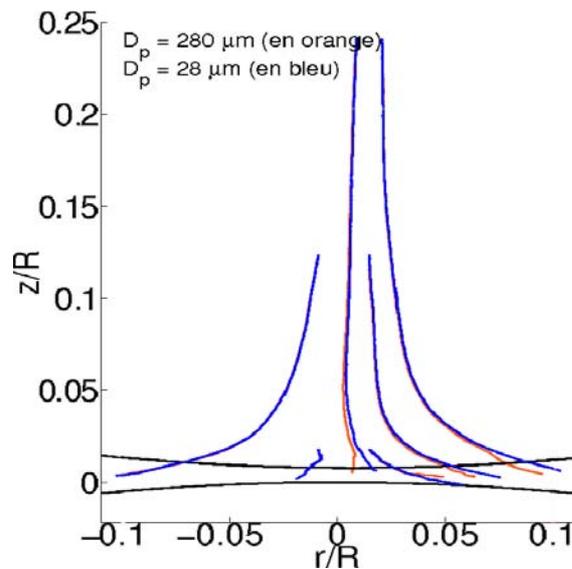


FIG. 4.30 – Comparaison des trajectoires de particules de diamètres  $D_p = 280\mu\text{m}$  et  $D_p = 28\mu\text{m}$  pour une vitesse d'approche  $V_a = 10\text{mm/s}$ .

Observons maintenant l'influence de la vitesse d'approche  $V_a$  qui est le second paramètre de contrôle des trajectoires des particules. Une augmentation de  $V_a$  se traduit par une augmentation du nombre de Stokes des particules, c'est à dire une diminution du temps caractéristique des particules ( $\tau_p = R_p/V_a$ ) par rapport au temps de relaxation visqueuse ( $\tau_p = m_p / (3\pi\mu_f D_p)$ ), qui lui reste constant. Dans le cas d'une augmentation du nombre de Stokes, les particules ont tendance à moins suivre le fluide. La figure 4.31 présente des trajectoires conduisant à une capture pour des particules de diamètre  $D_p = 280\mu\text{m}$  aux vitesses d'approche  $V_a = 3.5\text{mm/s}$  et  $V_a = 10\text{mm/s}$ . Sur cette figure, les positions initiales se situent respectivement à  $z_1 = 0.018R$ ,  $z_2 = 0.123R$  et  $z_3 = 0.24R$ . Les traits rouges verticaux matérialisent

les limites du volume actif ( $r = L_a$ ). Pour chacune de ces sections, sont représentées les trajectoires des particules les plus extérieures qui se trouveront dans le volume actif à la fin de la phase d'approche. On observe clairement que plus la vitesse du fluide mis en mouvement par la sphère mobile est importante, plus les particules de diamètres  $D_p = 280\mu m$  se dirigent vers la sphère fixe, quelle que soit la côte  $z$  de départ. Ainsi, pour des particules de taille donnée et dans la gamme de vitesse étudiée, la probabilité de capture augmente quand la vitesse d'approche des sphères augmente.

L'augmentation de la vitesse d'approche induit donc deux effets antagonistes vis à vis de la probabilité de capture : elle renforce le mouvement axial qui tend à favoriser l'impact des particules sur la sphère fixe mais elle renforce aussi le mouvement radial qui, lui, tend à chasser les particules de la zone de broyage. Les résultats obtenus dans le cas présent nous montrent que le mouvement axial reste dominant.

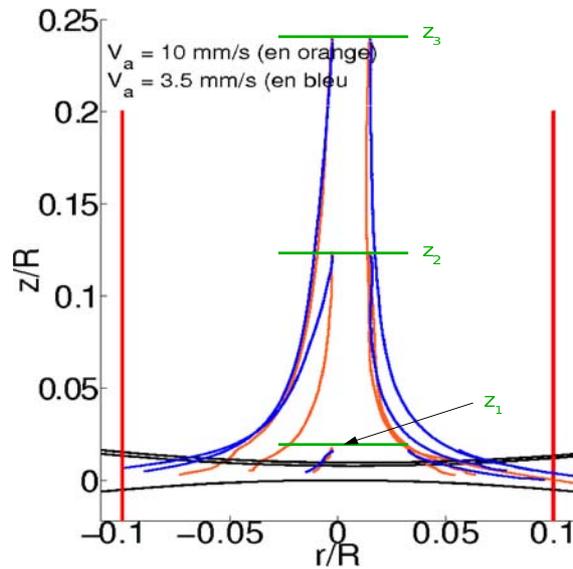


FIG. 4.31 – Comparaison des trajectoires conduisant à une capture d'une particule de diamètre  $D_p = 280\mu m$  aux vitesses d'approche  $V_a = 3.5 \text{ mm/s}$  (en bleu) et  $V_a = 10 \text{ mm/s}$  (en orange) pour des positions initiales situées respectivement à  $z_1 = 0.018R$ ,  $z_2 = 0.123R$  et  $z_3 = 0.24R$ .

Afin d'étayer ces affirmations qualitatives, et pour permettre une comparaison quantitative de l'influence des différents paramètres (diamètre de particules et vitesse d'approche), nous avons défini une efficacité de capture comme étant le rapport du volume de l'enveloppe des points desquels partent les particules restant dans le volume actif à la fin du rapprochement sur le volume actif total. Cette enveloppe, lorsque la vitesse d'approche vaut  $V_a = 10 \text{ mm/s}$  et lorsque les particules ont un diamètre  $D_p = 280\mu m$ , est représentée en pointillés rouges sur la figure 4.32. Les efficacités estimées sont consignées dans le tableau 4.2.

Ces efficacités apparaissent très faibles, puisque comprises entre 1.04% et 2.37%. On constate malgré tout que l'efficacité pour des particules de diamètre  $D_p = 28\mu m$  est quasiment indépendante de la vitesse d'approche et ne dépasse pas 1.05%. Au contraire l'efficacité pour des particules de diamètre  $D_p = 280\mu m$  augmente lorsque la vitesse d'approche augmente. Elle passe de 1.43% lorsque  $V_a$  vaut  $3.5 \text{ mm/s}$  à

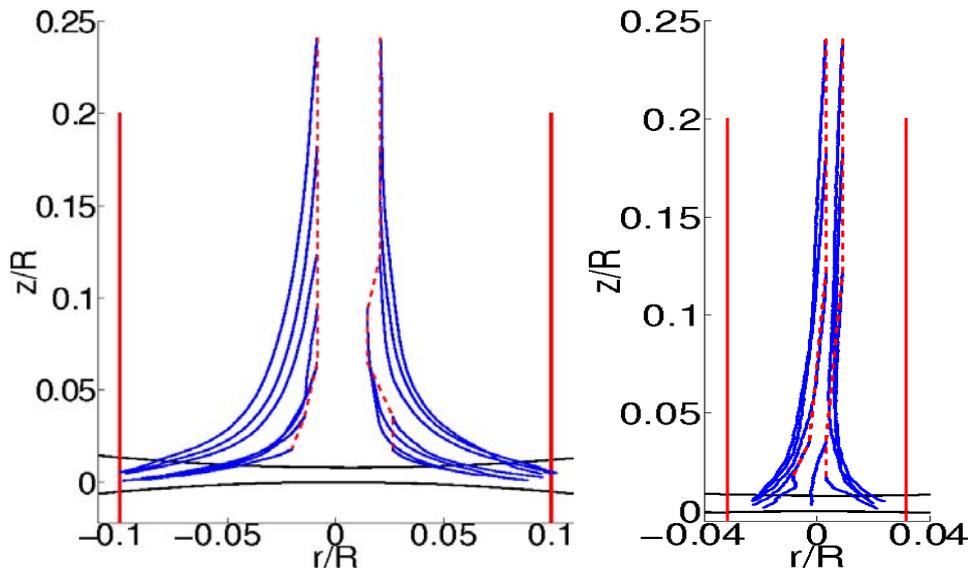


FIG. 4.32 – Représentation de l’enveloppe des trajectoires de particules de diamètre  $D_p = 280\mu m$  à gauche et  $D_p = 28\mu m$  à droite, contenues dans le domaine actif en fin de rapprochement lorsque  $V_a = 10mm/s$  (courbes bleues : trajectoires ; courbes en pointillés rouges : courbe enveloppe).

TAB. 4.2 – Efficacités de capture de particules de diamètres  $D_p = 280\mu m$  et  $D_p = 28\mu m$ , pour des vitesses d’approche  $V_a = 3.5mm/s$  et  $V_a = 10mm/s$ .

		$V_a$ (mm/s)	
		10	3.5
$D_p$ ( $\mu m$ )	280	2.37%	1.43%
	28	1.05%	1.04%

2.37% lorsque  $V_a$  vaut  $10mm/s$ . Ainsi, on vérifie que plus les particules ont une inertie importante, soit grâce à leur taille soit grâce à la vitesse communiquée par la sphère en mouvement, plus elles ont de chance de se faire capturer. C’est pourquoi on peut supposer que la valeur de 1.05% est une valeur asymptotique vers laquelle va aussi tendre la probabilité de capture des particules de diamètre  $D_p = 280\mu m$  si on diminue la vitesse de rapprochement des sphères.

### Dans le cas des chocs décalés

Dans le cas des chocs décalés, l’efficacité de capture n’est plus calculable à partir de nos simples données qui ne concernent que le plan  $\theta = 0$  alors que l’écoulement est tridimensionnel. On va donc ici simplement comparer les effets du diamètre des particules et de la vitesse d’approche des sphères sur les trajectoires dans ce plan avec celles obtenues dans le cas des chocs frontaux. La figure 4.33 présente ainsi une comparaison entre les trajectoires des particules de diamètres  $D_p = 280\mu m$  et les trajectoires des particules de diamètres  $D_p = 28\mu m$  pour une même vitesse d’approche  $V_a = 10mm/s$  et pour les décalages successifs  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$ .

Il apparaît que les décalages n’engendrent pas plus de différences de comporte-

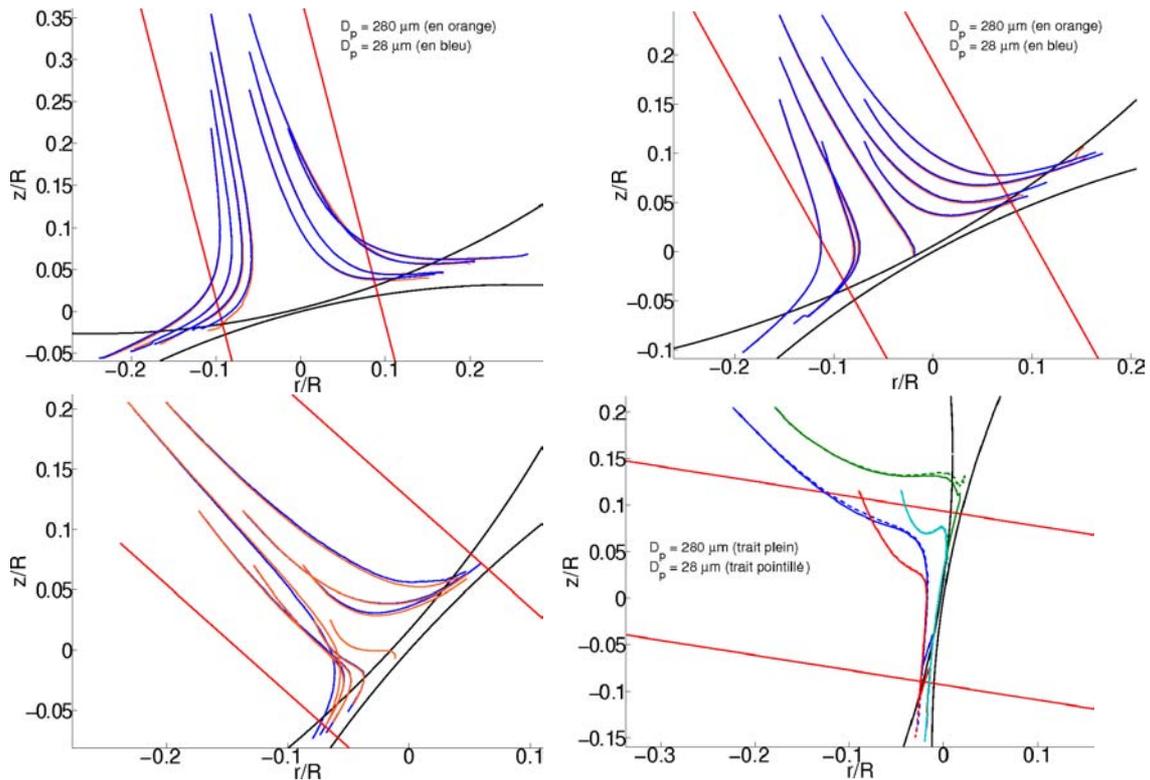


FIG. 4.33 – Comparaison entre les trajectoires des particules de diamètres  $D_p = 280\mu m$  et les trajectoires des particules de diamètres  $D_p = 28\mu m$ , pour une même vitesse d'approche  $V_a = 10mm/s$  et pour les décalages successifs  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$  de la gauche en haut vers la droite en bas.

ment entre les deux populations de particules qu'il n'y en a pour des chocs frontaux : leurs trajectoires respectives sont relativement superposées pour une vitesse d'approche  $V_a$  de  $10mm/s$ .

Par contre, l'effet de la vitesse d'approche pour une même population de particules est bien plus marqué que dans le cas des chocs frontaux, comme en témoigne la figure 4.34. Cette dernière expose les trajectoires de particules de diamètre  $D_p = 280\mu m$  aux vitesses d'approche  $V_a = 10mm/s$  et  $V_a = 3.5mm/s$ . Notons tout de suite que pour le décalage de  $0.5R$ , la présence de vecteurs faux nous a obligé à stopper le tracé des trajectoires pour  $V_a = 3.5mm/s$  sur la partie droite du graphe. Logiquement, là où comme on l'a vu précédemment le mouvement de drainage est renforcé, c'est à dire pour les coordonnées radiales  $r$  positives, les écarts de trajectoires  $y$  sont plus importants que ceux observés dans les mêmes conditions (même taille et même vitesse d'approche) lors d'une approche frontale : les particules se déplaçant avec une plus grande vitesse sont davantage déviées vers la sphère fixe. On remarque de plus que ces écarts sont les plus importants lorsque le décalage entre les sphères atteint  $1.5R$ .

## 8.2 Suivi de particules déposées sur la sphère fixe

Le principe de cette expérience complémentaire a été décrit dans le chapitre 3 (cf. section 5). Les acquisitions et le traitement des données ont été réalisés dans le cadre de deux stages IUT (A. Nuri et F. Naib) et nous proposons dans ce paragraphe

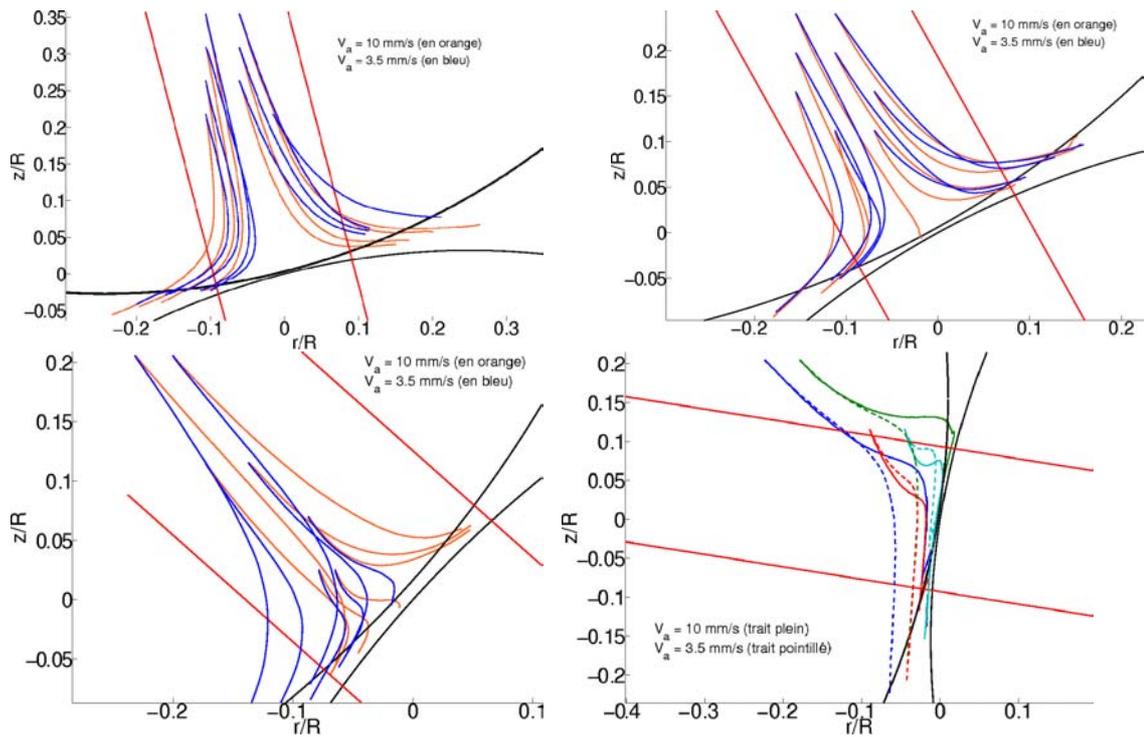


FIG. 4.34 – Comparaison des trajectoires des particules de diamètre  $D_p = 280\mu\text{m}$  à des vitesses d’approche  $V_a = 10\text{mm/s}$  et  $V_a = 3.5\text{mm/s}$ , pour les décalages successifs  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$  de la gauche en haut vers la droite en bas.

un exemple des résultats obtenus avec des billes-particules de  $250\mu\text{m}$ .

La figure 4.35 présente deux séquences de visualisation obtenues pour deux vitesses

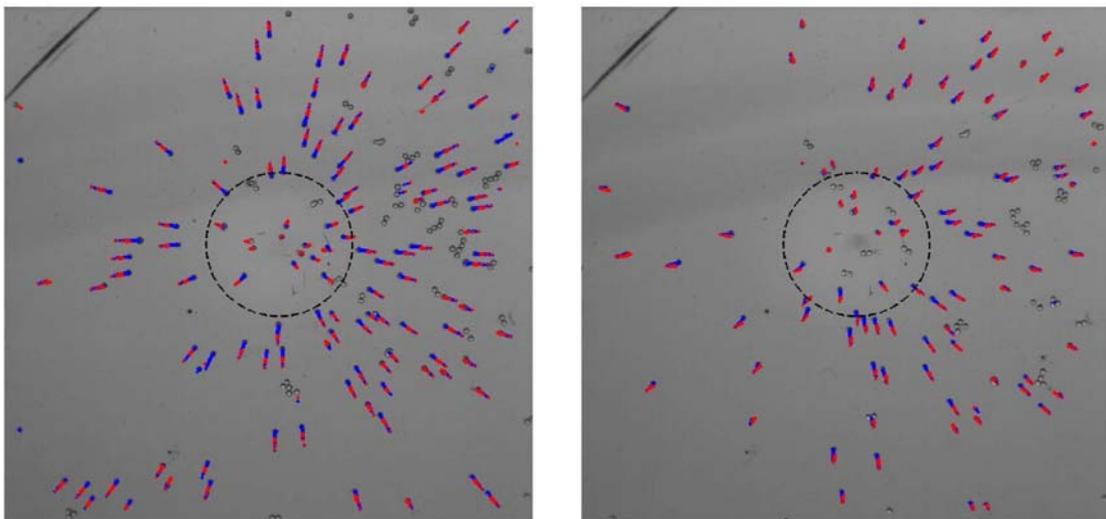


FIG. 4.35 – Visualisation des trajectoires de billes de  $250\mu\text{m}$  pour des vitesses de  $5 \text{ mm/s}$  (à gauche) et  $10 \text{ mm/s}$  (à droite). En bleu : positions successives lors de la phase de descente de la sphère supérieure, en rouge : lors de la phase de remontée. En trait pointillé : limite de la zone efficace, de rayon  $L_a$ .

de la sphère mobile :  $5$  et  $10\text{mm/s}$ . Les particules ont été détectées sur chacune des photos prises lors de la séquence, c’est-à-dire lors de la phase de descente de

la sphère mobile jusqu'à un écartement donné entre sphères (entre 150 et 600 $\mu m$  selon les expériences et la taille des billes) puis lors de la phase de remontée. Les différentes positions de chaque bille sont représentées, avec des couleurs différentes pour les phases de descente et de remontée, et l'ensemble de ces tracés est superposé à la photographie de la configuration initiale. Seules ont été représentées les trajectoires des particules qui ont été suivies sur l'ensemble de la séquence et qui sont restées isolées. Les particules constituées en amas, ou s'agrégeant au cours de la séquence, ont été éliminées lors du traitement des images puisque leurs trajectoires sont perturbées par la présence de leurs voisines. On remarquera ces amas sur les photographies de la figure 4.35. Sur cette figure est également représentée la zone efficace qui est le cercle de rayon  $L_a$ . Rappelons que le rapport  $L_a/R_b$  est égal à 0.129 pour des billes de 250  $\mu m$ .

Lors de la phase de descente (traits bleus de la figure 4.35), on observe bien des trajectoires dirigées vers l'extérieur, c'est-à-dire des particules qui sont chassées vers l'extérieur de la zone active de broyage. Par contre, lors de la phase de remontée de la sphère (qui correspond à un rebond après le choc), on remarque que ces particules sont ramenées partiellement vers le centre. Ceci est cohérent avec l'évolution observée dans un voisinage proche de la sphère fixe lors d'un rapprochement périodique comme on le verra dans le paragraphe suivant (cf. section 9). Le retour vers la position initiale étant partiel, ce processus ne participera pas à l'alimentation en particules de l'entrefer.

Sur la figure 4.36, les trajectoires des billes observées sur trois séquences d'acquisitions et pour une vitesse donnée (5, 10 ou 20  $m/s$ ) ont été superposées. Seule la phase de descente de la sphère a été représentée et on observe que les trajectoires des billes sont radiales. La position la plus proche du centre correspond à la position initiale et la plus éloignée à la position de la bille lorsque la sphère mobile est à son point bas. La zone efficace est également matérialisée sur ces figures (cercle de rayon  $L_a$ ) et il est aisé de scinder les particules en deux catégories, à savoir celles qui resteront dans la zone efficace au cours de l'approche et seront donc soumises à l'impact de la sphère mobile, et celles qui en seront chassées avant l'impact. Les premières sont celles situées, à l'instant initial, dans un cercle de rayon  $R_{eff}$  et les résultats de la figure 4.36 nous permettent d'évaluer ce rayon. Pour des vitesses d'approche de 5, 10 et 20 $mm/s$ , on obtient des valeurs de  $R_{eff}/L_a$  respectivement égales à 0.89, 0.87 et 0.83. Ce rayon efficace diminue donc, mais faiblement, lorsque la vitesse d'approche augmente.

## 9 Evolution du champ de vitesse lors d'un rapprochement périodique

Jusqu'à maintenant, que les sphères soient décalées ou non, nous nous sommes intéressés à une collision unique. Or, dans le broyeur, la concentration extrêmement élevée en billes de broyage fait qu'une bille subit plusieurs impacts en même temps, ou avec des intervalles de temps très courts, impacts de la part de billes voisines ayant des vitesses différentes, autant en module qu'en direction. Les nombreux drainages qui en résultent interagissent vraisemblablement. Pour prendre la mesure de ce confinement, on peut estimer la distance moyenne  $\delta_m$  entre des billes formant

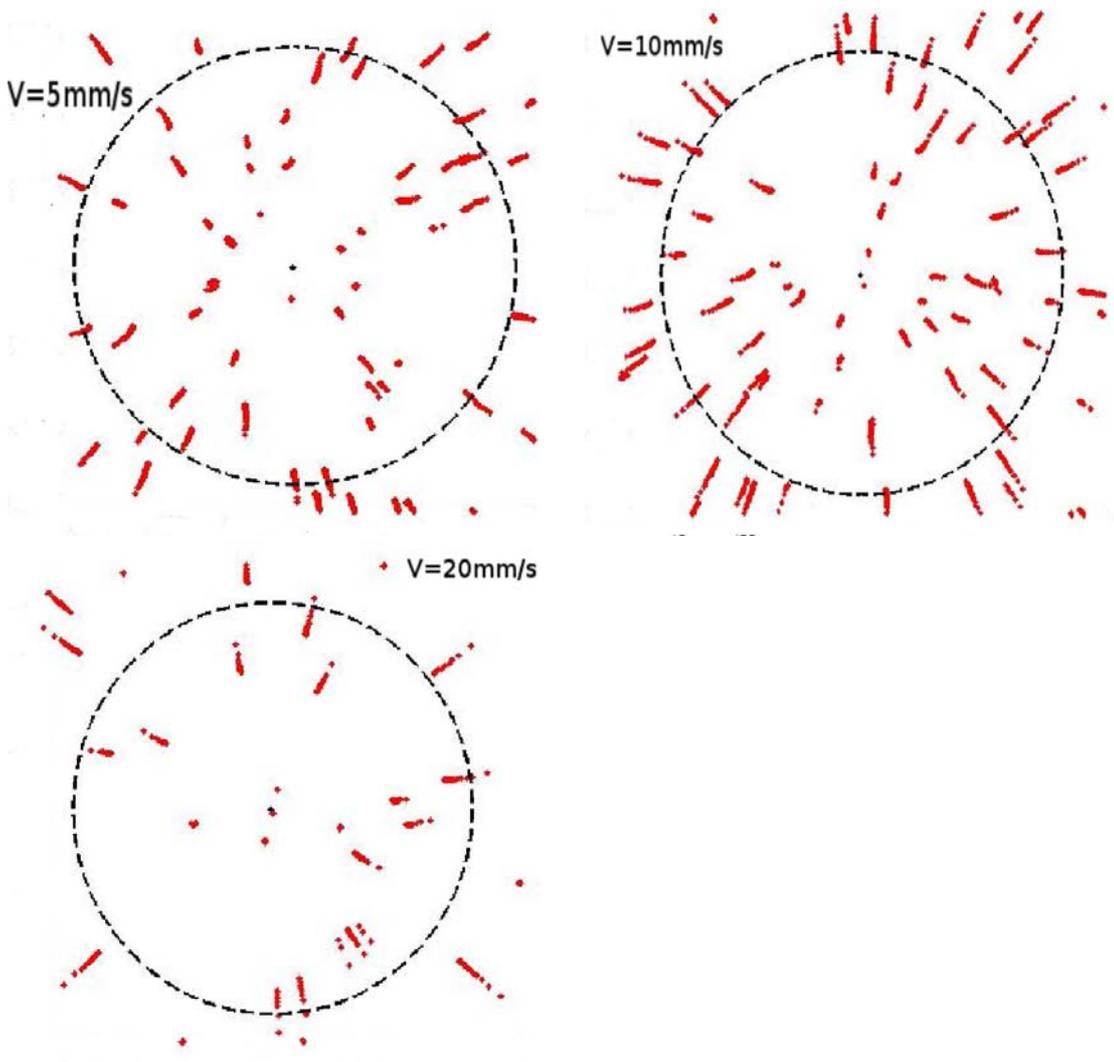


FIG. 4.36 – Visualisation des trajectoires de billes de  $250\mu\text{m}$  lors de la phase de rapprochement des sphères pour différentes vitesses d'approche. En trait pointillé : limite de la zone efficace, de rayon  $L_a$ .

un arrangement aléatoire. En considérant une répartition homogène des billes de rayon  $R$ , en concentration volumique  $c_V$  et en appelant  $c_{lim}$  la fraction volumique correspondant à la compaction maximale (0.63 pour un réseau aléatoire de sphères dures), on obtient :

$$\delta_m = 2R \left[ \left( \frac{c_{lim}}{c_v} \right)^{1/3} - 1 \right] \quad (4.5)$$

Pour une fraction volumique réelle en billes de 0.5 (conditions usuelles dans le broyeur), on obtient  $\delta_m = 3.5\text{mm}$  dans notre cas, soit un peu plus de  $0.12R$ . Il nous a donc paru intéressant d'étudier un rapprochement périodique des deux sphères afin de simuler une bille qui impacte plusieurs fois une même bille du fait de son rebond sur les autres sphères environnantes, ou bien qui, après le rebond, laisse la place à une autre bille qui impacte à son tour la sphère immobile. Evidemment, ce phénomène a une faible probabilité de se produire périodiquement de manière frontale. Mais c'est une première étape indispensable vers une étude plus sophistiquée.

Nous avons privilégié l'étude d'un rapprochement périodique en fonction de multiples de  $\delta_m$  pour une même fraction volumique. En effet, la force centrifuge, malgré une très forte concentration en billes de broyage, crée vraisemblablement des gradients de concentration en billes de broyage dans le broyeur. Autrement dit, la distance moyenne séparant les billes varie d'un endroit à l'autre du broyeur. L'expérience a consisté à réaliser des séquences successives rapprochement-éloignement pour deux vitesses d'approche, 3.5 et 10 mm/s, et pour des entrefers variant de 0.5 à  $3\delta_m$  pour la première vitesse et de 1 à  $3\delta_m$  pour la seconde.

Ces deux vitesses d'approche induisent des nombres de Stokes de collision  $St_{coll}$  suffisants pour qu'il y ait rebond, c'est à dire supérieurs à 15. Pour mémoire,  $St_{coll} = \frac{2R\rho_{bille}V_a}{9\mu_{eau}}$  où  $R$  est le rayon des sphères,  $\rho_{bille}$  la densité des billes réelles,  $V_a$  la vitesse d'approche et  $\mu_{eau}$  la viscosité dynamique de l'eau dans laquelle a lieu l'expérience. Même en remplaçant la densité des billes par celle de l'eau puisque dans notre cas la densité des billes ne peut pas intervenir (mouvement imposé de la sphère supérieure),  $St_{coll}$  vaut 20 lorsque  $V_a = 3.5mm/s$  et 62 lorsque  $V_a = 10mm/s$ .

De plus, une seule expérience a été menée à chaque fois, dans l'eau uniquement, excluant toute étude de reproductibilité ainsi que toute étude quantitative.

Les images destinées à illustrer le propos résultent d'une moyenne d'un ensemble de photographies PIV. Ainsi se mettent bout à bout les points lumineux révélant la présence d'une particule de rhodamine sur chacune des photographies pour former des traits continus matérialisant leurs trajectoires, sur un laps de temps important.

Pour distinguer les sept cas qui sont rappelés dans la table 4.3, nous utilisons le même nombre de Reynolds que celui défini depuis le début de ce chapitre, c'est à dire basé sur la vitesse d'approche  $V_a$ , la viscosité cinématique de l'eau  $\nu_{eau}$  et la largeur de l'entrefer qui est un multiple  $\alpha$  de  $\delta_m$  :

$$Re = \frac{V_a \alpha \delta_m}{\nu_{eau}} \quad (4.6)$$

TAB. 4.3 – Cas des collisions périodiques traitées et nombres de Reynolds correspondants.

$V_a$ (mm/s)	Entrefer ( $\delta_m = 3.5mm$ )	Reynolds
3.5	$0.5\delta_m = 0.06R$	6.1
	$1\delta_m = 0.12R$	12.2
	$2\delta_m = 0.25R$	24.5
	$3\delta_m = 0.37R$	36.7
10	$1\delta_m = 0.12R$	35
	$2\delta_m = 0.25R$	70
	$3\delta_m = 0.37R$	105
	$7\delta_m = 0.87R$	246

La figure 4.37a représente les positions successives des particules de rhodamine lors du mouvement de descente, pour un nombre de Reynolds  $Re = 246$  et un entrefer  $\delta = 0.87R$  (ou  $7\delta_m$ ), grâce à une moyenne sur 200 images PIV (pour mémoire avec

une cadence de 400 images par seconde et  $V_a = 10\text{mm/s}$ ). Ces visualisations ne diffèrent évidemment pas de celles obtenues pour un rapprochement unique. Mais elles sont à comparer à celles mesurées lors de la remontée de la sphère mobile (fig. 4.37b). A la descente, les particules de rhodamine contournent la sphère fixe, en laissant au niveau du futur point d'impact un petite zone de quelques centaines de microns (les particules de rhodamine font au maximum 20 microns de diamètre et la tache lumineuse qu'elles émettent est bien plus grande), où les particules se déplacent très peu puisque la vitesse du fluide s'y annule (point d'arrêt au sommet de la sphère immobile). Par contre, lors de la remontée, le fluide vient occuper l'espace libéré par la sphère mobile, engendrant un effet d'aspiration. Les particules sont donc ramenées vers la zone d'impact comme cela a été vu dans l'expérience précédente (cf. § 8.2). Arrivée en position haute, à  $\delta = \delta_m$ , la sphère mobile redescend et impose un courant contraire qui donne lieu à l'apparition de boucles de recirculation symétriques par rapport à l'axe des deux sphères. Aux plus forts nombres de Reynolds, l'écoulement n'est donc pas réversible. Les boucles toriques sont clairement mise en évidence sur la figure 4.37b. Par conséquent, ce type d'écoulement est favorable au broyage en alimentant la zone d'impact en particules ou en fragments de particules.

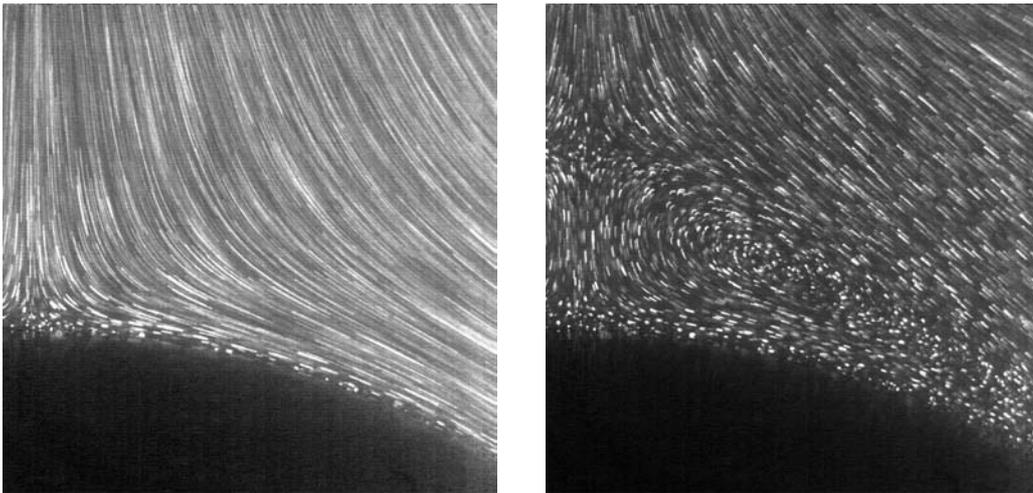


FIG. 4.37 – Visualisation des trajectoires des particules de rhodamine dans l'eau grâce à une moyenne sur 200 images PIV à  $Re = 246$  et  $\delta = 0.87R$  lors du mouvement de descente à gauche et de remontée à droite ( $V_a = 10\text{mm/s}$  et  $\Delta t = 1/400$ ).

L'existence de ces tourbillons est contrôlée par l'amplitude du pseudo-rebond. Lorsque l'entrefer maximal passe de  $\delta = 7\delta_m$  à  $\delta = 3\delta_m$  pour la vitesse d'approche la plus élevée, autrement dit lorsque le nombre de Reynolds varie de 246 à 105, les recirculations disparaissent presque : elles ne sont perceptibles que lorsque la sphère mobile finit sa course montante, et seulement dans le voisinage du point d'arrêt. Il subsiste néanmoins une zone de faible vitesse autour de ce point, comme on peut le voir sur la figure 4.38a qui expose des visualisations de trajectoires à  $Re = 105$  et  $\delta = 0.37R$ , preuve que des particules y restent en permanence. Pour fixer les idées, la hauteur de cette zone morte vaut  $0.25\delta$  environ, soit un peu moins de  $0.1R$ . Elle semble indépendante du nombre de Reynolds.

En deçà de  $Re = 105$ , il n'y a plus aucune trace de ces boucles de recirculation. On constate simplement l'effet d'aspiration et la modification de la direction des

trajectoires. La figure 4.38b qui montre un champ de trajectoires pour  $Re = 70$  et  $\delta = 0.25R$ , en témoigne.

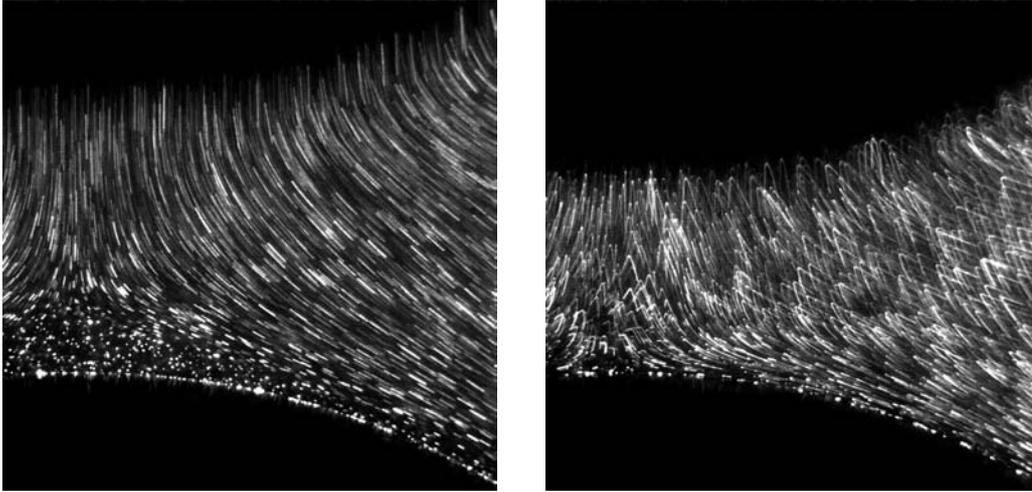


FIG. 4.38 – Visualisation des trajectoires des particules de rhodamine dans l'eau grâce à une moyenne sur 60 images PIV lors du mouvement de remontée à gauche pour  $Re = 105$  et  $\delta = 0.37R$ , et grâce à une moyenne sur 120 images PIV lors du mouvement de descente à droite pour  $Re = 70$  et  $\delta = 0.25R$ .

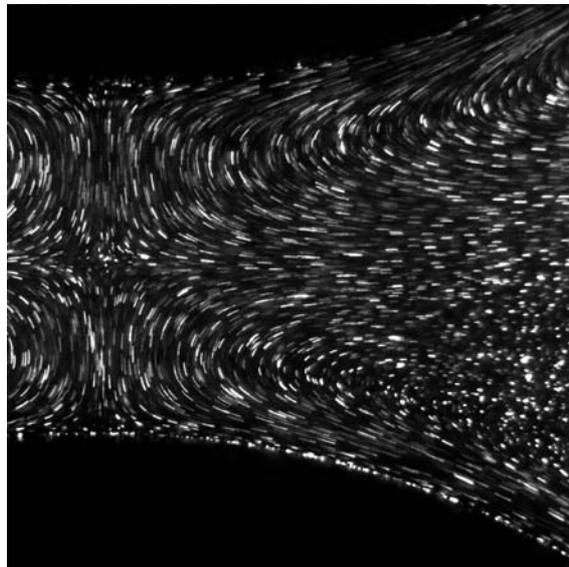


FIG. 4.39 – Visualisation des trajectoires des particules de rhodamine dans l'eau grâce à une moyenne sur 120 images PIV à  $Re = 105$  et  $\delta = 0.37R$  lors du mouvement de descente.

Enfin, la figure 4.39 rend compte de la complexité des écoulements qui peuvent être générés lors de rapprochements périodiques : on n'observe non plus deux boucles de recirculation mais quatre. L'écoulement observé correspond au moment où la sphère mobile atteint la position haute. Durant un court instant, cette sphère est immobilisée avant de reprendre son rapprochement de la sphère fixe.

Il est donc difficile dans cette configuration d'estimer une probabilité de capture, quel que soit le nombre de boucles de recirculation entre les sphères. On peut simplement supposer que ces vortex alimentent l'entrefer en particules pour des nombres de Reynolds grands et des concentrations suffisamment faibles en billes de broyage dans le broyeur. La zone stagnante au sommet de la sphère fixe laisse aussi penser que des particules restent dans la zone active malgré le drainage.

## 10 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exploré de façon expérimentale l'hydrodynamique entre deux sphères se rapprochant à vitesse imposée, dans un contexte qui est celui du broyage, et qui a été définie à l'aide de l'étude numérique du chapitre 2. Nous nous sommes intéressés au drainage du film fluide séparant les deux sphères, en approche frontale dans un premier temps puis en approche décalée, afin de rendre compte des diverses situations de choc qui existent dans le broyeur.

Dans le cas d'une approche frontale, nous avons observé une dissymétrie des profils de la vitesse radiale pour des nombres de Reynolds, basés sur l'entrefer et sur la vitesse de rapprochement des sphères, supérieurs à 10. La perte de la forme parabolique du profil s'explique par le fait qu'une seule des sphères était en mouvement.

Lorsque l'approche des deux sphères n'est plus frontale mais décalée (décalage de  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  et  $2R$ ), nous avons observé une augmentation du débit éjecté, accompagnée d'une augmentation de la vitesse de cisaillement, du côté des abscisses  $r$  positives (pour un décalage de la sphère mobile vers les abscisses  $r$  négatives). La vitesse de cisaillement peut alors atteindre des valeurs de l'ordre de  $150 \text{ s}^{-1}$  pour un écart minimal entre les sphères de  $\Delta z = R/10$ . Il est intéressant d'observer que ces approches décalées amorcent un contre-courant dans l'entrefer aux abscisses  $r$  positives : en effet, le fluide propulsé par la sphère mobile vient impacter la sphère fixe et doit s'évacuer verticalement, donc face au fluide descendant. Ce phénomène semble propice à une meilleure capture des particules puisque des particules piégées dans l'entrefer se retrouvent avec une vitesse nulle à l'interface des deux courants. Elles restent donc dans la zone active de broyage. Le contre-courant le plus intense se produit pour un décalage de  $1.5R$ . En ce qui concerne les vitesses de cisaillement, il apparaît que les situations les plus favorables au broyage semblent être les décalages intermédiaires de  $R$  et  $1.5R$ . En outre, dans la gamme de vitesse d'approche et d'entrefers étudiés, ces vitesses de cisaillement sont approximativement proportionnelles à la vitesse d'approche des sphères.

Nous avons également examiné l'influence de la nature du fluide puisque le comportement des suspensions est très souvent rhéofluidifiant, notamment lorsque le broyage est effectué à de fortes concentrations en particules. Il s'avère que, pour les entrefers où nous pouvions les étudier ( $\Delta z \geq R/10$ ), les valeurs atteintes par la vitesse de cisaillement en approche frontale (au maximum  $40 \text{ s}^{-1}$ ) ne conduisent qu'à de faibles variations de la viscosité et ne permettent donc pas de faire apparaître l'influence du caractère rhéofluidifiant. Il est toutefois vraisemblable que le comportement non newtonien prenne de l'importance dans les derniers instants pré-

cédant le choc, lorsque l'entrefer devient très faible, puisque nous avons montré que les vitesses de cisaillement augmentaient rapidement lorsque l'entrefer diminuait. Cette influence doit être également plus importante dans le cas des approches décalées puisque nous avons montré que les vitesses de cisaillement y sont plus grandes.

Dans la seconde partie de ce chapitre nous avons estimé, à l'aide de deux approches différentes, l'efficacité du processus de capture des particules en suspension entre deux sphères qui se rapprochent de manière frontale : la première est basée sur l'exploitation des champs de vitesse PIV pour reconstruire les trajectoires des particules, et la seconde a consisté à réaliser un suivi de particules réelles déposées sur la sphère fixe. Dans la première méthode, nous avons donc calculé la trajectoire de particules fictives, de propriétés déterminées (diamètre, masse volumique), dont le mouvement est décrit par les seules forces d'inertie, de traînée et de portance induites par le champ de vitesse dans le fluide. Nous avons ainsi déterminé la position, à un instant de référence, des particules qui allaient être dans la zone efficace au moment de la collision. Ceci nous permet de quantifier l'efficacité de ces chocs et de les comparer entre eux en fonction des différents paramètres que sont le rapport de taille billes-particules, la vitesse d'approche des sphères et la configuration du choc. On montre en particulier que cette efficacité croît avec l'inertie des particules, soit par augmentation de la vitesse d'approche, soit par augmentation de la taille des particules au delà de la taille limite d'une particule-traceur ( $28 \mu m$  dans notre cas).

Enfin, nous avons reproduit, pour l'étudier de façon qualitative, un rapprochement périodique et frontal des deux sphères en examinant l'influence de l'amplitude de l'entrefer. Lorsque celui-ci est suffisant, il apparaît alors entre les sphères des boucles de recirculation. On attend de celles-ci qu'elles améliorent la probabilité de capture en maintenant les particules à broyer plus longtemps dans la zone active de broyage, voire en la réalimentant.



# Conclusion

Ce travail de Thèse s’insère dans une thématique de recherche centrée sur le nanobroyage en voie humide. Son objectif était d’étudier le rôle de l’hydrodynamique dans ce procédé et d’apporter des éléments de réponse dans la compréhension des mécanismes intervenant lors du broyage. Pour cela, nous avons exploité des simulations de l’hydrodynamique dans le broyeur complétées par une approche locale de l’écoulement de la suspension de particules entre deux billes de broyage dans les instants précédant le choc qui conduit à la fragmentation des particules.

Le broyage en voie humide est l’une des rares technologies à permettre l’obtention de particules nanométriques par fragmentation de produits plus grossiers. Après avoir défini les principales grandeurs utilisées pour caractériser l’efficacité de ce procédé, nous avons présenté une revue bibliographique sur l’écoulement de drainage entre deux sphères. En effet, dans les broyeurs à billes agités, la fragmentation des particules en suspension résulte des contraintes qu’elles subissent lors des collisions de billes de broyage mises en mouvement grâce au système d’agitation.

La première partie de notre travail a consisté à simuler numériquement l’écoulement dans le broyeur. Nous avons pour cela défini un fluide équivalent. En effet le fluide réel, composé des billes de broyage, des particules à broyer et du fluide porteur, est complexe par son hétérogénéité. C’est pourquoi il a été modélisé à partir de la viscosité de suspensions réelles de particules et de la relation de Krieger et Dougherty, qui modélise la présence des billes de broyage. A partir des champs de vitesses obtenus dans la chambre de broyage, nous avons calculé les champs de gradient de vitesse. Ceux-ci nous ont ensuite permis de calculer les champs de vitesse relative d’approche de billes de broyage. Pour la fréquence de rotation utilisée ( $1000tr/min$ ), nous avons identifié les chocs les plus énergétiques : il s’agit des chocs créés par cisaillement dans un plan perpendiculaire à l’axe de rotation. Ils sont localisés préférentiellement autour du disque et à proximité de la paroi de la chambre de broyage. Leur intensité est pratiquement indépendante d’un débit axial imposé dans le réacteur. Nous avons également examiné l’influence de la rhéologie du fluide équivalent en effectuant des simulations en fluide rhéofluidifiant et en fluide rhéoépaississant. Il s’avère que le caractère non newtonien change la distribution spatiale des chocs sans modifier leur intensité. Les simulations mettent aussi en évidence le fait que les collisions se caractérisent par de faibles nombres de Stokes et de faibles nombres de Reynolds (basés sur le diamètre des billes et la vitesse d’impact). Cela signifie que les écoulements autour des billes de broyage sont faiblement inertiels et que les collisions se font sans rebond ; le nombre de Stokes est effectivement inférieur au nombre de Stokes critique compris entre 10 à 15 selon les auteurs.

L’étude globale du broyeur nous a permis de dimensionner une expérience reproduisant le mouvement d’approche entre deux billes de broyage. Le drainage du fluide

séparant deux sphères a ainsi pu être étudié. Le champ de vitesse a été mesuré avec une méthode de vélocimétrie par image de particules (PIV). Dans cette expérience, décrite dans le chapitre 3, deux sphères jouent le rôle des billes de broyage. L'une est fixe, l'autre est actionnée par une plateforme de translation de haute précision. Conformément aux types de chocs réels attendus dans le broyeur et caractérisés lors des simulations de l'hydrodynamique globale, les modes d'approche étudiés sont soit frontaux, soit obliques.

Les résultats issus de cette expérience sont présentés dans le chapitre 4. Nous y avons analysé les profils de vitesse radiale caractérisant le drainage induit par le rapprochement des sphères. Ainsi, dans le cas d'un choc frontal, nous avons mis en évidence l'augmentation de la vitesse radiale à mesure que l'entrefer diminue. Etant donné qu'une seule des sphères est mobile, nous avons obtenu un profil de vitesse radiale dissymétrique pour des nombres de Reynolds (basés sur la vitesse de rapprochement, le diamètre des sphères  $2R$  et la viscosité de la suspension de traceurs *PIV*) supérieur à 10, avec un maximum décalé vers la paroi de la sphère mobile. Ce seuil d'existence des effets inertiels est présent pour tous les entrefers supérieurs ou égaux au dixième du rayon des sphères.

D'autre part, les suspensions de particules présentant souvent un caractère rhéofluidifiant, nous avons réalisé les mêmes expériences avec deux solutions de Xanthane à deux concentrations différentes. Il s'est avéré que les vitesses de cisaillement atteintes, au plus petit entrefer disponible ( $\Delta z = R/10$ ), ne sont pas suffisantes (au maximum  $40 R/V_a$  avec  $R$  le rayon des sphères et  $V_a$  leur vitesse relative d'approche) pour engendrer une baisse significative de la viscosité, et par conséquent modifier le champ de vitesse interstitiel par rapport au cas newtonien.

La configuration de choc frontal étant généralement associée à des chocs moins énergétiques dans le broyeur, les drainages en configuration de choc décalé ont également été analysés en fluide newtonien. Dans ce cas, la sphère mobile descend toujours verticalement. La distance horizontale entre les centres des sphères est de  $0.5R$ ,  $1R$ ,  $1.5R$  ou  $2R$ . Par rapport à l'approche frontale, à  $\Delta z = R/10$ , les décalages  $0.5R$ ,  $1R$  et  $1.5R$  sont marqués par un renforcement du drainage au niveau des portions de surface de chacune des sphères qui se font face. Cela s'accompagne naturellement d'une augmentation de la vitesse de cisaillement dans l'entrefer, jusqu'à  $150R/V_a$ . On peut donc supposer que pour un entrefer plus faible, la vitesse de cisaillement est susceptible de pouvoir modifier sensiblement la viscosité d'une suspension à caractère rhéofluidifiant.

L'un des objectifs de la thèse étant de mieux appréhender la probabilité de capture des particules selon leurs tailles, nous avons utilisé les champs de vitesse obtenus expérimentalement pour calculer les trajectoires de particules de diamètre donné et disposées initialement à chaque noeud du maillage *PIV*. Ce calcul de trajectoire a été effectué pour tous les décalages. Mais le calcul d'une efficacité de capture n'est possible que pour la configuration de choc frontal, seule configuration pour laquelle l'écoulement est axisymétrique. Dans les autres cas, nous connaissons le champ de vitesse du fluide uniquement dans le plan vertical passant par les centres des sphères. L'étude des trajectoires a montré que l'augmentation de l'effet de l'inertie des particules, soit à travers leur diamètre, soit à travers la vitesse de rapprochement des sphères, favorisait leur capture : plus une particule est petite, plus facilement elle est emportée par le fluide chassé de l'entrefer.

---

Afin de compléter ces calculs de trajectoires, un autre type d'expérience a été mené. Il a consisté à suivre le mouvement de particules réelles déposées au sommet de la sphère fixe lorsque la sphère mobile s'approche de manière frontale. A l'inverse des particules fictives réparties initialement dans tout l'entrefer dans la première méthode exposée, ici, les particules posées sur la sphère fixe, qui ont une inertie faible, augmentent leur chance d'être broyées quand la vitesse d'approche des billes augmente.

Les perspectives à l'issue de ce travail de Thèse sont nombreuses, tant du point de vue numérique que du point de vue expérimental. Il serait ainsi intéressant d'étendre le calcul de l'hydrodynamique globale du broyeur à des gammes de nombres de Reynolds plus étendues, afin de prendre en compte la diversité des suspensions traitées en nanobroyage. Les simulations pourraient également être réalisées en prenant en compte l'hétérogénéité du milieu, c'est-à-dire en différenciant la suspension et les billes de broyage. Ces dernières ont parfois des densités très élevées et l'hypothèse d'écoulement monophasique peut alors devenir critique. Des expérimentations de type PIV permettant de dissocier vitesse de la suspension et vitesse des billes seraient certainement riches d'enseignement et permettraient d'affiner l'estimation des vitesses relatives d'approche. Cela permettrait une comparaison entre lignes de courant de l'écoulement monophasique et les trajectoires des billes de broyage dans un écoulement solide-liquide (suspension de particules en tant que fluide porteur et billes de broyage) afin de conforter le mode de calcul de la vitesse d'approche des billes à partir des champs de gradient de vitesse dans le fluide équivalent.

En ce qui concerne l'étude expérimentale d'une collision élémentaire, puisque les chocs décalés se sont révélés être les plus efficaces, il serait intéressant d'effectuer des mesures PIV 3D. Cela permettrait d'analyser plus finement l'efficacité de capture et d'identifier précisément le type de choc le plus efficace vis à vis du broyage. Pour affiner le calcul des efficacités, il serait en outre souhaitable de multiplier le nombre de points de départ des trajectoires et surtout de faire ces calculs de trajectoires sur des champs moyennés et non instantanés, comme le manque de temps nous a contraint à le faire. Il serait également intéressant de réaliser des expériences qui prennent en compte la force de lubrification. Dans les expériences qui ont été menées, le rapprochement des sphères est contrôlé par le CharlyRobot et la vitesse de consigne est constante. Le fait de libérer la sphère mobile, d'une manière ou d'une autre, permettrait d'étudier le drainage jusqu'à ce que les sphères se touchent.

Enfin, la simulation numérique du rapprochement de deux sphères doit être possible. L'emploi d'un maillage qui se déforme à chaque pas de temps n'a pas donné satisfaction. Par contre l'utilisation de méthodes chimères, qui sont en plein essor et dans lesquelles la frontière des sphères est indépendante du maillage, semble prometteuse.



# Bibliographie

- [1] Barnes, H. A., 1989. Shear-thickening (dilatancy) in suspensions of non-aggregating solid particles dispersed in Newtonian liquids. *Journal of Rheology*, 33, pp 329-366.
- [2] Barnes, H. A., Hutton, J. F., Walters, K., 1989. *An Introduction to Rheology* Elsevier, Amsterdam, pp 128-131.
- [3] Barnocky G., Davis R.H., 1989. The influence of pressure-dependent density and viscosity on the elasto-hydrodynamic collision and rebound of two spheres. *J. Fluid Mech.* 209, 501-519.
- [4] Becker M., Schwedes J., 1999. Comminution of ceramics in stirred media mills and wear of grinding media beads. *Powder Tech.* 105, 374-381.
- [5] Belfadhel H., Frances C., Mamourian A., 1999. Investigations on ultra fine grinding of titanium dioxide in a stirred media mill. *Powder Tech.* 105, 362-373.
- [6] Bel Fadhel H., 1998. Approche expérimentale et modélisation du broyage fin et ultrafin de solides en voie humide dans un broyeur à billes agité. Thèse de doctorat de l'INPT.
- [7] Bernhardt C., Reinsch E., Husemann K., 1999. The influence of suspension properties on ultra-fine grinding in stirred ball mills. *Powder Tech.*, 105, 357-361.
- [8] Bernotat S., Schönert K., 1988. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, fifth ed., VCH Verlagsgesellschaft, Weinheim, Chapter 5.
- [9] Bird R.B., Armstrong R.C., Hassager O., 1987. *Dynamics of polymeric liquids*. Wiley, New York.
- [10] Blecher L., Schwedes J. 1996. Energy distribution and particle trajectories in a grinding chamber of a stirred media mill. *Int. J. Mineral Processing*, 44-45, 617-627.
- [11] Blecher L., Kwade A., Schwedes J., 1996. Motion and stress intensity of grinding beads in stirred media mill Part 1 : Energy density distribution and motion of single grinding beads. *Powder Tech.* 86, 59-68.
- [12] Cate T., Nieuwstad, Derksen C.H., Van den Akker H.E.A, 2002. Particle velocimetry experiments and lattice-Boltzmann simulations on a single sphere settling under gravity. *Phys. of Fluids* 14, 4012-4025.
- [13] Cheung A.K.W., Tan B.T., Hourigan K., M.C. Tompson M.C., 2001. Interference drag between spherical and cylindrical particles in Stokes flow. 14<sup>th</sup> Australian Fluid Mechanics Conference, Adelaide, Australia 10-14 dec 2001.
- [14] Chhabra R.P., 2003. *Fluid Mechanics and Heat Transfer with Non-Newtonian Liquids in Mechanically Agitated Vessels*. *Advances in Heat Transfer*, 37, 77-178.

- [15] Chu P.S.Y., Cameron A., 1962. Pressure viscosity characteristics of lubricating oils. *J. Inst. Petrol.* 49, 147–155.
- [16] Cleary P.W., Sinott M., Morrison R., 2006. Analysis of stirred mill performance using DEM simulation : Part 2 - Coherent flow structures, linear stress and wear, mixing and transport. *Minerals Engineering* 19, 1551-1572.
- [17] Climent E., Simonnet M., Magnaudet J., 2007. Preferential accumulation of bubbles in Couette-Taylor flow patterns. *Physics of Fluids*, 19, 083301.
- [18] Collomb J., Chaari F., Chaouche M., 2004. Squeeze flow of concentrated suspensions of spheres in Newtonian and shear-thinning fluids. *J. Rheology* 48, 405-416.
- [19] Davis R.H., Serayssol J-M, Hinch E.J., 1986. The elastohydrodynamic collision of two spheres. *J. Fluid Mech.* 163, 479-497.
- [20] Davis R.H., Rager D.A., Good B.T, 2002. Elastohydrodynamic rebound of spheres from coated surface. *J. Fluid Mech.* 468, 107-119.
- [21] Delhaye N., Poitou A., Chaouche M., 2000. Squeeze flow of highly concentrated suspensions of spheres. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* 94, 67-74.
- [22] Eskin D., Zhupanska O., Hamey R., Moudgil B., Scarlett B., 2005a. Microhydrodynamics of stirred media milling. *Powder Tech.* 156, 95-102.
- [23] Eskin D., Zhupanska O., Hamey R., Moudgil B., Scarlett B., 2005b. Microhydrodynamics analysis of nanogrinding in stirred media mills. *AIChE Journal* 51, n<sup>o</sup>5, p1346-1358.
- [24] Frances, C., Anne-Archard, D., 2004. Propriétés physiques de suspensions denses de particules microniques obtenues par nanobroyage en voie humide. 4ième Colloque Sciences et Technologie des poudres 4-6 Mai, Compiègne, France, Récents progrès en Génie des Procédés, 91 ISBN 2-910239-65-9
- [25] Frances C., 2004. Elaboration de suspensions microniques par broyage en voie humide. *Méthodes de Génie des Procédés : étude de cas.* Chap. 1, Lavoisier Ed. Hermes Science, 27-50.
- [26] Garcia F., Le Bolay N., Trompette J.L., Frances C., 2004. On fragmentation and agglomeration phenomena in a ultrafine wet grinding process : the role of polyelectrolyte additives. *Int. J. Miner. Process*, 745, 543-554.
- [27] Garcia F., Le Bolay N., Frances C., 2003. Rheological behaviour and related granulometric properties of dense aggregated suspensions during an ultrafine comminution process. *Powder Tech.* 130, 407-414.
- [28] Garcia F., 2001. Elaboration de suspensions de particules à propriétés contrôlées par broyage en voie humide. Analyse des phénomènes d'agglomération. Thèse INPT.
- [29] Gondret P., Lance M., Petit L., 2002. Bouncing motion of spherical particles in fluids. *Phys. of Fluid*, 14, n<sup>2</sup>, 643-652.
- [30] Gondret P., Lance M., Halloin E., Petit L., 1999. Experiments on the motion of a solid sphere toward a wall : from viscous dissipation to elastohydrodynamic bouncing. *Phys. of Fluids* 11, n9.

- 
- [31] He M., Wang Y., Forssberg E., 2005. Parameters effects on wet ultrafine grinding of limestone through slurry rheology in a stirred media mill. *Powder Tech.* 161, 10-21.
- [32] Hsu H.-C., Capart H., 2007. Enhanced upswing in immersed collisions of tethered spheres. *Physics of Fluids* 19, 101701.
- [33] Jenkins J.T., Koenders M.A., 2005. Hydrodynamic interaction of rough spheres. *Granular Matter* 7, 13-18.
- [34] Joseph G.G., Zenit R., Hunt M.L., Rosenwinkel A.M., 2001. Particle-wall collision in a viscous fluid. *J. Fluid Mech.* 433, 329-346.
- [35] Joseph G.G., 2003. Collisional dynamics of macroscopic particles in a viscous fluid. PhD Thesis.
- [36] Joseph G.G., Hunt M.L., 2004. Oblique particle-wall collision in a liquid. *J. Fluid Mech.* 510, 71-93.
- [37] Kim S., Karrila S.J., 1991. *Microhydrodynamics : principles and selected applications*. Butterworth-Heinemann.
- [38] Kytomäa H.K., Schmid P.J., 1992. On the collision of rigid spheres in a weakly compressible fluid. *Phys. of Fluid A* 4, 12.
- [39] Kwade A., Schwedes J., 2002. Breaking characteristics of different materials and their effect on stress intensity and stress number in stirred media mills. *Powder Tech.* 122, 109-121.
- [40] Kwade A., 1999. Determination of the most important grinding mechanism in stirred media mills by calculating stress intensity and stress number. *Powder Tech.*, 105, 382-388.
- [41] Kwade A., Schwedes, J., 1997. Wet comminution in stirred media mills. *KONA*, 15.
- [42] Kwade A., Blecher L., Schwedes J., 1996. Motion and stress intensity of grinding beads in a stirred media mill. Part 2 : Stress intensity and its effect on comminution. *Powder Tech.*, 86, 69-76.
- [43] Lane G.L., 1999. CFD modelling of a stirred bead mill for fine grinding. Second International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries, CSIRO, Melbourne, Australia, 6-8 Decembre 1999.
- [44] B. Lecordier, M. Trinite, 2003. Advanced PIV algorithms with image distortion validation and comparison from synthetic images of turbulent flows. PIV03 Symposium, Busan, Korea.
- [45] B. Lecordier, 1997. Etude de l'interaction de la propagation d'une flamme préméangée avec le champ aérodynamique, par association de la tomographie laser et de la vélocimétrie par images de particules. Thèse de doctorat, Université de Rouen.
- [46] Lee J., Ladd A.J.C., 2002. A computer simulation study of multiphase squeezing flows. *Physics of Fluids* vol. 14, n°5.
- [47] Legendre D., Magnaudet J., 1998. The lift force on a spherical body in a viscous linear shear flow. *J. Fluid Mech.*, 368, 81-126.
- [48] Legendre D., Magnaudet J., 1997. A note on the lift force on a spherical bubble or drop in a low-Reynolds-number shear flow. *Phys. Fluid* 9, 3572-3574.

- [49] Legendre D., Magnaudet J., Mougin G., 2003. Hydrodynamic interactions between two spherical bubbles rising side by side in a viscous liquid. *J. Fluid Mech.*, 497, 133-166.
- [50] Legendre D., Zenit R., Daniel C., Guiraud P., 2006. A note on the modelling of the bouncing of spherical drops or solid spheres on a wall in viscous fluid. *Chemical Engineering Science*, 61, 3543-3549.
- [51] Lian G., Xu Y., Huang W., Adams M.J., 2001. On the squeeze flow of a power-law fluid between rigid spheres. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* 100, 151-164.
- [52] Magnaudet J., Rivero M., Fabre J., 1995. Accelerated flows past a rigid sphere or a spherical bubble. Part 1. Steady straining flow. *J. Fluid Mech.*, 284, 97-135.
- [53] Mende G., Bernotat S., Schwedes J., 2004. Displacement flow and particle motion between grinding beads. *PARTEC 2004*.
- [54] Mende G., 2005. Das Einfangen von Mahlgutpartikeln durch Mahlkugeln. Dissertation, T.U. Braunschweig. ISBN 3-86537-758-0 Cu villier Verlag Göttingen.
- [55] Mende S., Stenger F., Peukert W., Schwedes J., 2004. Production of sub-micron particles by wet comminution in stirred media mills. *J. of Material Science* 39, p5223-5226.
- [56] Mende S., Stenger F., Peukert W., Schwedes J., 2003. Mechanical production and stabilization of submicron particles in stirred media mills. *Powder Tech.*, 132, 64-73.
- [57] Merisko-Liversidge E., Liversidge G.G., Cooper E.R., 2003. Nanosizing : a formulation approach for poorly-water-soluble compounds. *European Journal of Pharmaceutical Sciences*, 18, 113-120.
- [58] S. Maurel, 2000. Etude par imagerie laser de la génération et de la rupture d'un écoulement tourbillonnaire compressé. Situation modèle pour la validation de simulations aux grandes échelles dans les moteurs. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- [59] Nagata S., 1975. *Mixing, Principles and Applications*. Halsted Press, John Wiley and Sons, New York.
- [60] M. Raffel, C. Willert, and J. Kompenhans, 2000. *Particle Image Velocimetry*. Ed. Springer.
- [61] Schiller L., Naumann A., 1933. Über die grundlegenden berechnungen bei der schwerkraftaufbereitung. *Zeitung des vereins deutscher Ingenieure*, 77-318.
- [62] Schönert K., 1988. Size Reduction (Fundamentals). Chap. 1, Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, vol. B2, Vch Verlagsgesellschaft, Weinheim, 5.1-5.14.
- [63] Shook C.A., Rocco M.C., 1991. *Slurry flow*. Butterworth-Heinemann, London.
- [64] Singh P., Hesla T.I., Joseph D.D., 2003. Distributed Lagrange multiplier method for particulate flows with collisions. *Inter. Journal of Multiphase flow* 29, 495-509.
- [65] Sinott M., Cleary P.W., Morrison R., 2006. Analysis of stirred mill performance using DEM simulation : Part 1 - Media motion, energy consumption and collisional environment. *Minerals Engineering* 19, 1537-1550.
- [66] Smart J.R, Leighton D.T., 1989. Measurement of the hydrodynamic surface roughness of noncolloidal particles. *Phys. Fluids A* 1, 52.

- 
- [67] Stenger F., Mende S., Schwedes J., Peukert W., 2005a. The influence of suspension properties on the grinding behaviour of alumina particles in the submicron range in a stirred media mill. *Powder Tech.*, 156, 103-110.
- [68] Stenger F., Mende S., Schwedes J., Peukert W., 2005b. Nanomilling in stirred media mills, *Chemical Engineering Science*, 60, 4557-4565.
- [69] Tabor D., 1949. Collision through fluid layers. *Engineering* 2, 145.
- [70] Theuerkauf J., Schwedes J., 2000. Investigation of motion in stirred media mills. *Chem. Eng. Technol.*, 23, 203-209.
- [71] Theuerkauf J., Schwedes J., 1999. Theoretical and experimental investigation on particle and fluid motion in stirred media mills. *Powder Tech.* 105, 406-412.
- [72] Thompson M.C., Hourigan K., Cheung A., Leweke T., 2006. Hydrodynamics of particle impact on a wall. *Applied Mathematical Modelling* 30, 1356-1369.
- [73] Vital A., Zürcher S., Dittman R., Trottmann M., Lienemann P., Bommer B., Graule T., Apel E., Höland W., 2008. Ultrafine comminution of dental glass in a stirred media mill. *Chem. Eng. Science*, 63, 484-494.
- [74] Walker W.H., Lewis W.K., McAdams W.H., Gilliland E.R., 1937. *Principles of Chemical Engineering*. McGraw-Hill, New-York, p255.
- [75] Weller K.R., Spencer S.J., Gao M.-W., Liu Y., 2000. Tracer studies and breakage testing in pilot-scale stirred mills. *Minerals Engineering*, 13, n°4, 429-458.
- [76] Zeng L., Balachandar S., Fischer P., 2005. Wall-induced forces on a rigid sphere at finite Reynolds number. *J. Fluid Mech.* 536, 1-25.
- [77] Zhang J., Fan L-S, Zhu C., Pfeffer R., Qi D., 1999. Dynamic behaviour of collision of elastic spheres in viscous fluids. *Powder Tech.* 106, 98-109.

