



**« Effet de la Fraction massique sur la Variation de la Viscosité pour une solution de nanotube de carbone à base du glycérol »**

" LAHLOU Sara <sup>1</sup>, " SEHAQUI Rachid <sup>2</sup>, " LAHLOU Nouha <sup>3</sup>, " OUAZZANI TOUHAMI Mohamed <sup>4</sup>,

<sup>1</sup> " Université Hassan II de casablanca, Faculté des sciences Ain Chock, Laboratoire de Mécanique, Maroc, [sara.lahlou20@gmail.com](mailto:sara.lahlou20@gmail.com) "

<sup>2</sup> " Université Hassan II de casablanca, Faculté des sciences Ain Chock, Laboratoire de Mécanique, Maroc, [rsehaqui@gmail.com](mailto:rsehaqui@gmail.com) "

<sup>3</sup> " Université Hassan II de casablanca, Faculté des sciences Ain Chock, Laboratoire de Mécanique, Maroc, [nouhalahlou10@gmail.com](mailto:nouhalahlou10@gmail.com) "

<sup>4</sup> " Université Hassan II de casablanca, Faculté des sciences Ain Chock, Laboratoire de Mécanique, Maroc, [touazzani2014@gmail.com](mailto:touazzani2014@gmail.com) "

**RÉSUMÉ :**

Dans le domaine des transferts de chaleur, l'utilisation des propriétés de comportements rhéologiques inhérentes à des suspensions de nanoparticules dans des fluides caloporteurs fait l'objet depuis une trentaine d'années de plusieurs travaux. Notre étude concerne le cas particulier des suspensions de nanotubes de carbones multicouches (MNTCs) dans le glycérol. Nous mettons en évidence l'effet de la fraction massique  $\varphi$  des (MNTCs) sur la rhéologie des solutions pour  $0.1\% \leq \varphi \leq 1\%$ . Les résultats expérimentaux obtenus sont décrits par des modèles viscoplastiques pour lesquels la contrainte seuil augmente avec  $\varphi$ . Nous proposons ensuite une loi d'évolution polynomiale de la viscosité apparente en fonction de la fraction volumique pour chaque valeur du taux de cisaillement variant de  $10s^{-1}$  et  $80s^{-1}$ .

## 1. Introduction

Les nanofluides sont des solutions colloïdales qui se composent essentiellement de particules de taille nanométrique dispersées dans un fluide de base qui est constitué d'une seule phase qui peut-être liquide ou gazeuse. Depuis une trentaine d'années, les travaux portant sur ces nanofluides ont connu un progrès considérable au vu des multiples possibilités de développement académiques et technologiques qu'ils génèrent.

Le contrôle de leurs propriétés revêt en effet une importance particulière pour l'optimisation de plusieurs phénomènes physiques dont notamment ceux liés au stockage d'énergie dans les matériaux [1], la conduction électrique ou encore les phénomènes liés au transfert thermique [3]. Cette optimisation représente aujourd'hui un enjeu technologique et économique majeur. Elle permet des innovations très prometteuses dans de nombreux domaines fondamentaux et porte sur des aspects qui peuvent être microscopiques (Fraction volumique, Fluide de base, Température...) ou encore macroscopiques comme ceux liés au comportement rhéologique.

L'étude du comportement rhéologique des suspensions de nanofluides est une démarche certes récente pour ces milieux mais elle devient de plus en plus nécessaire dans la recherche de ces optimisations. La corrélation entre ce comportement et les caractéristiques physico-chimiques s'avère être un moyen utile pour la caractérisation et le contrôle de ces suspensions.

Dans ce cadre, l'étude de l'effet de la fraction volumique des nanoparticules en suspension ou encore de leur taille ou de la nature du fluide de base utilisé sur la viscosité de cette solution a fait l'objet de plusieurs travaux. L.Chen [4] a constaté que le comportement du nanotube de carbone avec le glycérol est Newtonien pour différentes fractions volumiques [0,0.01]. D'autres travaux ont porté sur les propriétés rhéologiques des graphènes (Il s'agit d'un feuillet de carbone) dispersés dans le glycérol. Pour ce cas, M.B.Moghaddam [5] a mis en évidence leur comportement newtonien pour différentes fractions massiques [0.0025-0.02]. S.Halelfadl [6] a constaté que le comportement rhéologique des nanofluides est indépendant du type de surfactant utilisé et du rapport d'aspect.

Les expressions décrivant l'évolution de cette viscosité sont de nature empirique ou semi empirique basée en partie sur la relation d'Einstein [2]. Dans ce domaine, la viscosité de la suspension n'est plus essentiellement gouvernée par la viscosité du fluide de base et par la fraction volumique des suspensions mais elle dépend également de l'organisation optimale de cette fraction des suspensions à sec, caractérisée par la compacité maximale d'empilement granulaire  $\phi_m$ . Trois relations sont fréquemment utilisées dans le domaine des suspensions concentrées (Mooney [7], Krieger-Dougherty [8], Quémada [9]) et diffèrent les unes des autres en fonction d'un ensemble de paramètres dont notamment la forme, la fraction volumique ou encore la nature du fluide de base....

Pour cette étude, nous considérons le cas d'un nanofluide résultant de la dispersion de Nanotube de carbone dans le glycérol. L'ajout de ces nanoparticules engendre une augmentation de la viscosité dynamique [6]. Au-delà des relations déjà décrites, cette modification peut être simplement modélisée en première approche par des modèles empiriques permettant de prédire l'évolution de la viscosité dynamique en fonction de la fraction volumique des nanoparticules.

Notre étude s'inscrit dans ce cadre et se fixe pour objectifs essentiels :

- La détermination des modalités d'élaboration des solutions de nanotubes de carbone dispersés dans le glycérol ainsi que les différents protocoles de mesure pour l'analyse du comportement rhéologique des suspensions.
- La mise en évidence de l'impact de la fraction volumique des nanoparticules en suspension sur le comportement rhéologique de cette solution à différentes concentrations.

- La mise en relation, pour le cas des suspensions à fraction massique supérieure à 0.5 entre les valeurs des viscosités apparentes pour des taux de cisaillement donnés et les valeurs des viscosités de ces suspensions déduites de formules empiriques. Nous proposons dans ce cadre une relation de type polynomiale.
- La mise en évidence de la viscoélasticité et la détermination de l'évolution de la fréquence critique (point de croisement du module de perte et de conservation) en fonction de la concentration.

## 2. Matériels et méthodes :

### 2.1 Matière première:

Le nanotube de carbone multicouche MWCNT (pureté > 95%) est défini par une longueur de 5 µm et un diamètre qui varie entre 6-9 nm. Le fluide de base utilisé est le glycérol (99.5% en poids) dans lequel les nanoparticules peuvent rester en suspension stable grâce à sa viscosité relativement importante et à la faible masse des nanoparticules [6]. Le choix de ce fluide est basé sur deux raisons ; d'une part, il est chimiquement inerte vis à vis du nanotube de carbone. D'autre part, aucun agent chimique ne sera utilisé pour stabiliser les nanoparticules en suspension dans le glycérol ce qui évite toute influence qui pourrait masquer les effets à étudier.

Un nanotube de carbone est une structure cristalline de carbone qui se compose d'un feuillet de graphène enroulé sur lui-même formant un cylindre creux fermé à ses extrémités, ce sont des nanoparticules non sphériques « cylindrique » qui illustrent les changements dans la rhéologie de la suspension, les mêmes processus microstructuraux se produisent également dans des suspensions de particules sphériques, la principale différence réside dans le grand volume occupé par les particules non sphériques et par l'existence d'une contrainte seuil pour ces milieux

$$\tau_0 = \tau^* \left( \left( 1 - \frac{\varphi}{\varphi_m} \right)^{-2} - 1 \right) \quad (1)$$

Où  $\tau^*$  : un paramètre approprié physiquement, c'est la valeur de la contrainte seuil lorsque :  $\varphi = \varphi_m$  (1 -  $\sqrt{2}/2$ ). Il est lié à la taille des sphères.

### 2.2 Procédés d'élaboration :

La suspension subit une agitation magnétique à température maintenue 30°C à l'aide d'un bain thermostaté des nanotubes de carbone dispersés dans le glycérol. Huit échantillons ont été préparés à différentes fractions massiques ; 0.1%, 0.2%, 0.3%, 0.4%, 0.5%, 0.6%, 0.7%, 1%.

Les tests rhéologiques sont menés dans le cadre de cette étude à l'aide d'un rhéomètre rotatif HAAKE RHEOSTRESS 1 avec une géométrie plan-plan.

### 2.3 Protocoles expérimentaux :

Les propriétés rhéologiques des nanotubes de carbone dans le glycérol ont été mesurées à l'aide d'un rhéomètre rotatif HAAKE RHEOSTRESS 1 disponible au Laboratoire mécanique de la faculté des sciences Aïn Chock de Casablanca, la technologie utilisée dans cet appareil permet de tirer les propriétés visqueuses et viscoélastiques des substances au cours des mesures à l'aide du logiciel de pilotage Rhéowin III. Dans notre cas, la géométrie utilisée est le plan-plan, son principal avantage est la mise en place d'une faible quantité de fluide à mesurer et un nettoyage aisé. De plus, on peut régler l'entrefer de cette géométrie à l'épaisseur souhaitée. Cela permet donc de tester des matériaux contenant des particules de tailles

diverses. Par ailleurs, deux types de régimes d'écoulement sont retenus ; le régime quasi-stationnaire à vitesse imposée allant de 0 à 100s<sup>-1</sup>, il s'agit d'un signal triangulaire avec un temps de montée de 300s. Le régime oscillatoire à contrainte imposée de 1 Pa avec un balayage en fréquence entre 1 et 10 Hz.

### 3. Résultats et discussions :

#### 3.1 En régime quasi-stationnaire :

Nous nous sommes intéressés initialement à suivre l'évolution de la contrainte de cisaillement et de la viscosité en fonction du taux de cisaillement. Des courbes d'écoulement ont été donc obtenues. (fig.1)

Nous allons relever à partir de RheoStress 1 un ensemble de rhéogrammes qui permettent de mettre en évidence l'effet de la concentration sur la viscosité apparente. (fig.2)

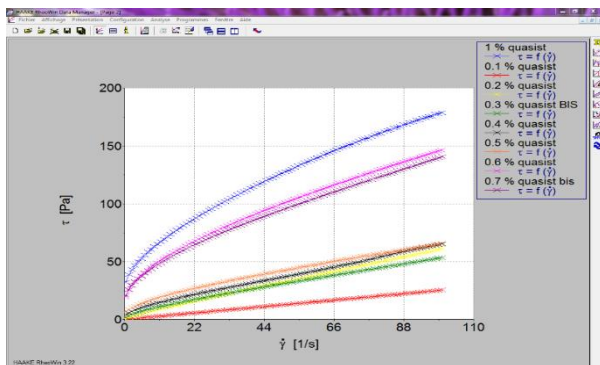


Figure 2: Les rhéogrammes des différentes concentrations de nanofluides

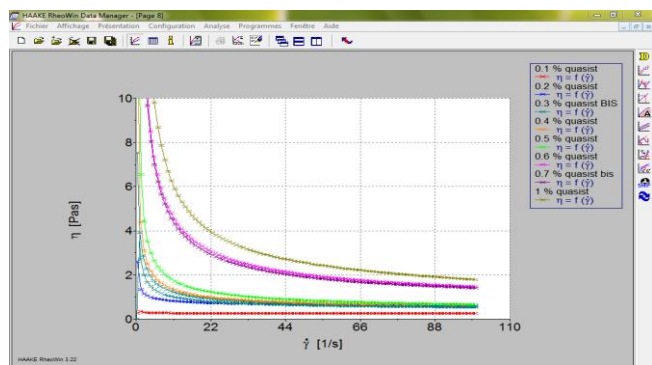
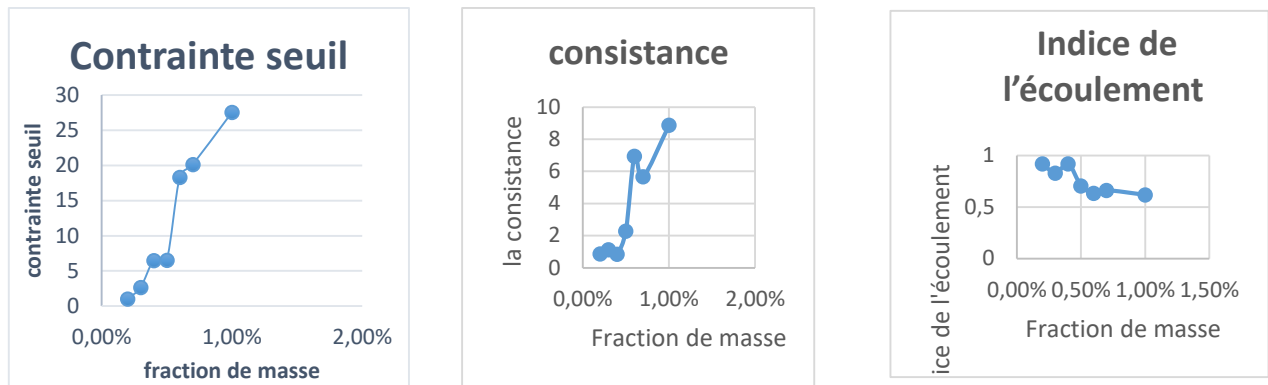


Figure 1: La viscosité des nanofluides en fonction du taux de cisaillement À différentes fractions de masse

On remarque, d'après ces courbes que pour une concentration de 0.1% le fluide possède une viscosité constante. L'apparition d'une contrainte seuil pour des concentrations allant de 0.2% à 1% affecte leur comportement rhéologique. En plus, la viscosité diminue en fonction du taux de cisaillement. Le comportement dans ce cas est décrit par le modèle de Herschel-bulkley. (tab.1).

Fraction massique	Comportement rhéologique	Propriétés rhéologiques
0.1%	Newtonien	$\eta = 0,2543 \text{ Pa.s}$
0.2%	Fluide à seuil de type Herschel Bulkley	$\tau_0 = 0.9959 \text{ Pa}$ $K = 0.8679 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.9191$
0.3%		$\tau_0 = 2.648 \text{ Pa}$ $K = 1.119 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.8270$
0.4%		$\tau_0 = 6.462 \text{ Pa}$ $K = 0.8446 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.9189$
0.5%		$\tau_0 = 6.510 \text{ Pa}$ $K = 2.279 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.7055$
0.6%		$\tau_0 = 18.32 \text{ Pa}$ $K = 6.951 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.6320$
0.7%		$\tau_0 = 20.13 \text{ Pa}$ $K = 5.663 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.6618$
1%		$\tau_0 = 27.54 \text{ Pa}$ $K = 8.869 \text{ Pa.s}^n$ $n = 0.6174$

Tableau 1: le comportement rhéologique en fonction de la fraction massique



L'effet de la fraction massique affecte fortement la contrainte seuil, la consistance et l'indice de l'écoulement. Les graphes ci-dessus montrent que la contrainte seuil et la consistance augmentent avec l'augmentation de la fraction de masse par contre l'indice de l'écoulement diminue.

### 3.2 Expression empirique d'évolution de la viscosité:

La recherche empirique publiée sur les particules en suspensions s'est concentrée sur la détermination de la relation entre la viscosité apparente et la fraction volumique des particules.

Plusieurs modèles théoriques ont été développés pour prédire l'évolution de la viscosité dynamique des suspensions sous certaines conditions. Dans cette partie, nous nous intéresserons aux modèles théoriques les plus adaptés à nos différentes fractions massiques.

- Loi d'évolution de la viscosité apparente en fonction de la fraction volumique pour chaque valeur du taux de cisaillement variant de  $10\text{s}^{-1}$  et  $80\text{s}^{-1}$ . L'évolution sur le temps de cisaillement de  $10\text{s}^{-1}$  (fig.3) est identique pour les autres taux de cisaillement.

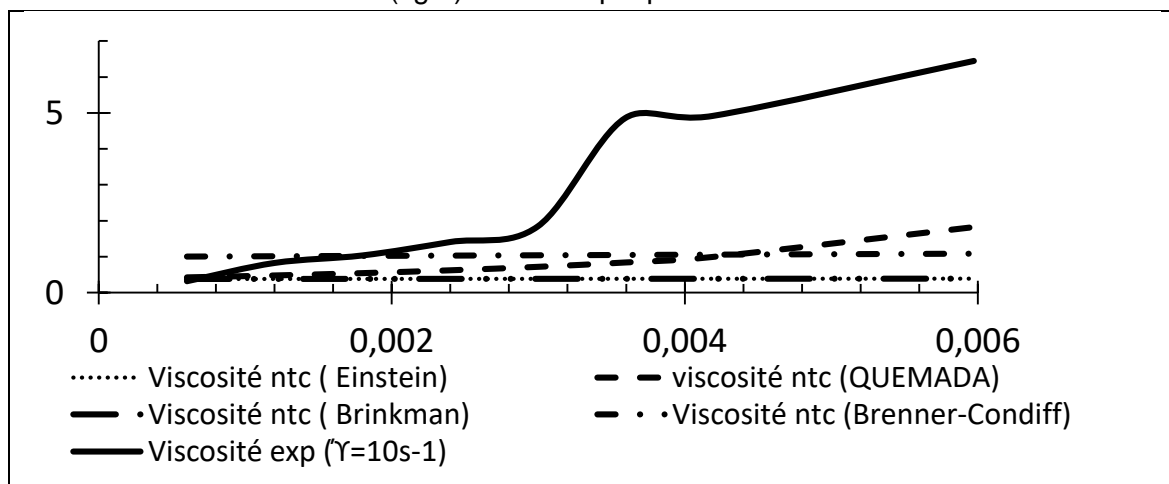


Figure 3: Estimation de la viscosité apparente en fonction de la fraction volumique

En proposant des améliorations et des interprétations selon les tendances obtenues et selon différentes vitesses de cisaillement qui résument le modèle qui rapproche le plus à notre cas dans différentes vitesses de cisaillement, il s'agit du modèle de QUEMADA selon des calculs théoriques pour des fraction volumique qui varient entre 0,000600591 et 0,00299576.

Au-delà de 0.003 jusqu'à 0.006, plusieurs modèles théoriques ont été développés qui quantifient le comportement non-newtonien observé des suspensions de particules non sphériques sur un large éventail de fractions volumiques, et d'expliquer le comportement rhéologique pour prédire l'évolution de la viscosité dynamique des suspensions sous certaines conditions.

Il est à noter que pour les nanofluides à base de NTC, il existe très peu de modèles théoriques permettant d'estimer l'évolution de la viscosité de ces nanofluides pour cette gamme de concentration.

Les résultats publiés à ce jour, concernant les suspensions de nanoparticules de géométrie non sphérique démontrent que les modèles précédents sont souvent insuffisants pour expliquer les fortes augmentations de la viscosité des nanofluides avec la concentration en nanoparticules, et ceci pour des solutions diluées ou plus concentrées. De plus, la différence des résultats expérimentaux et théoriques augmentent avec la concentration des suspensions.

La relation (2) établie qui décrit l'expression empirique de l'évolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique est donnée comme suit :

$$\eta = a \varphi_v^2 + b \varphi_v + c \quad (2)$$

Les coefficients du polynôme ont été déterminés :

$\Upsilon(\text{s}^{-1})$	10	20	30	40	50	60	70	80
a	-745170	-541882	-421686	-351825	-321629	-269690	-243461	-222298
b	8105,3	5761	4484,5	3748,6	3359,7	2888,8	2612,1	2389,9
c	-15,437	-10,93	-8,4435	-7,014	-6,1833	-5,3355	-4,7894	-4,3547
c/a	2,0716E-05	2,017E-05	2,0023E-05	1,9936E-05	1,9225E-05	1,9784E-05	1,9672E-05	1,9589E-05
b/a	-0,01087712	-0,01063147	-0,01063469	-0,01065473	-0,01044589	-0,01071156	-0,01072903	-0,01075088

Tableau 2: Valeurs des coefficients du polynôme d'ordre (2)

On prend :  $\sigma = b/a \approx -0.01$  et  $\beta = c/a \approx 2 \text{ E-}05$

Et :  $\eta = a \varphi_v^2 + b \varphi_v + c \quad (3)$

$$\eta = a(\Upsilon) (\varphi_v^2 + \sigma \varphi_v + \beta) \quad (4)$$

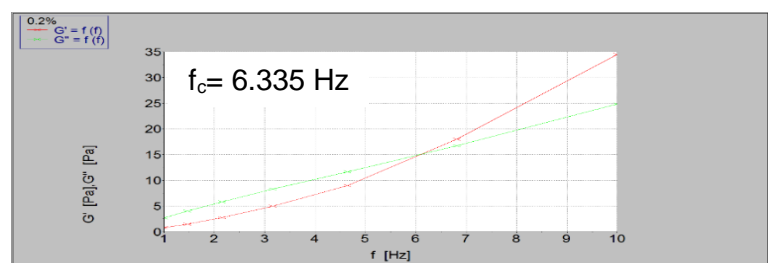
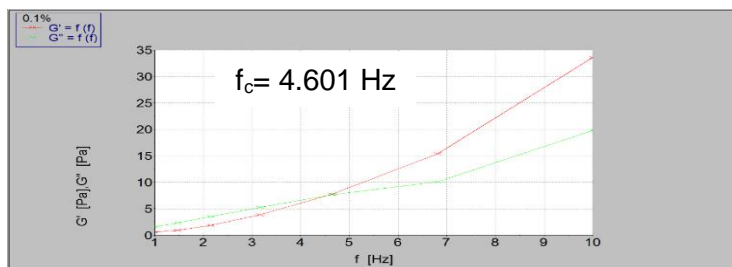
Donc : la loi polynomiale d'ordre 2 pour les fractions volumique au-delà de 0.003 établie est:

$$\eta = a(\Upsilon) (\varphi_v^2 - 0.01 \varphi_v + 2 \text{ E-}05) \quad (5)$$

D'où :  $\varphi_v$  : Fraction volumique ;  $\eta$  : Viscosité ;  $a$  : Coefficient du polynôme d'ordre 2

### 3.3 En régime oscillant :

On présente, pour ce régime, l'évolution des modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$  et de la fréquence critique  $f_c$  (fréquence pour laquelle  $G' = G''$ ) en fonction de la concentration.



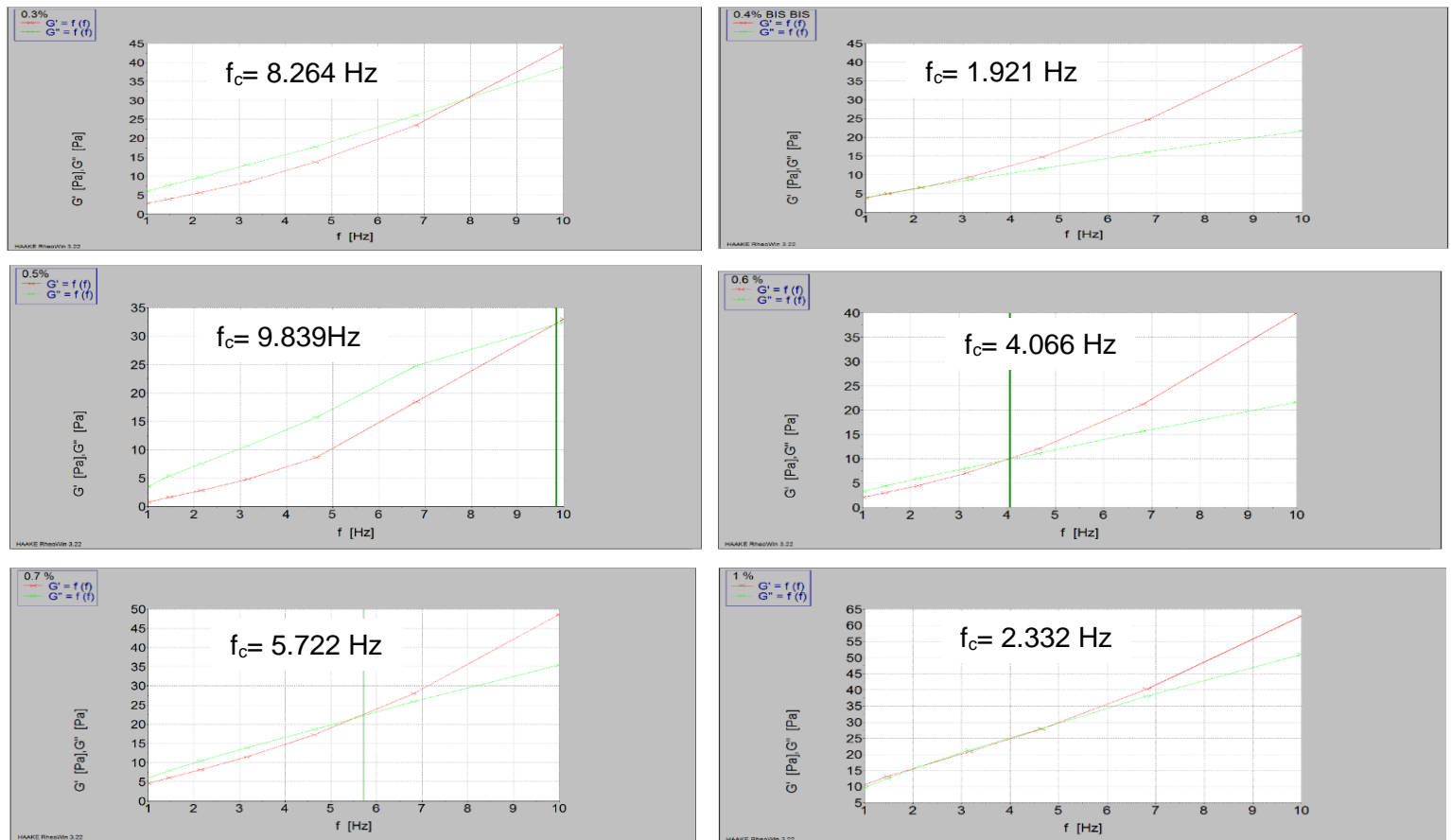


Figure 4: Evolution des modules de perte et de conservation en fonction de la fréquence pour différentes concentrations

Il ressort de cette analyse que l'évolution de la valeur de  $f_c$ , qui correspond au cas où  $G'$  et  $G''$  sont comparables, est polynomiale par rapport à la concentration ( $x$ ). Ceci vient consolider les protocoles de contrôle des solutions aqueuses de nanotube de carbone avec le glycérol en régime oscillant et permet d'optimiser les processus de leur utilisation en milieu industriel.

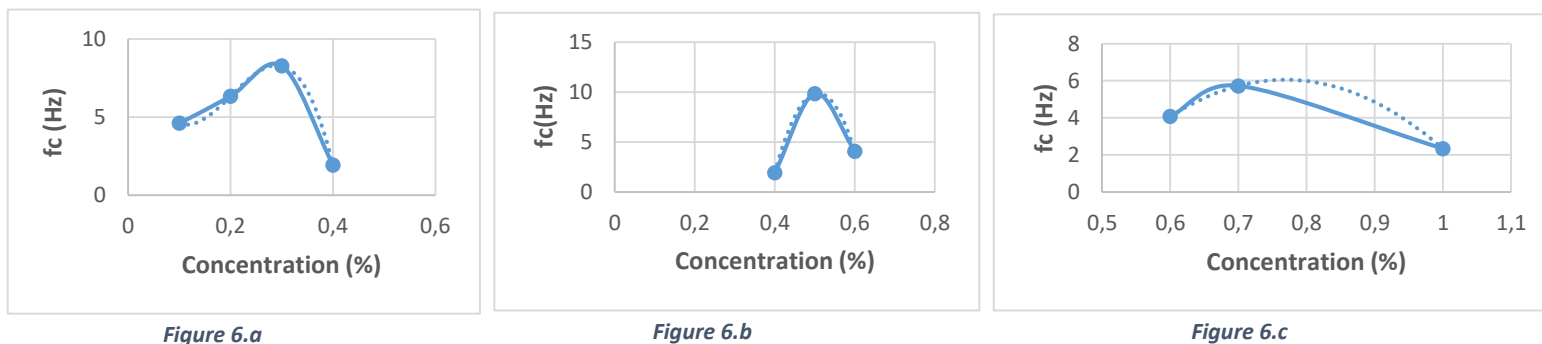


Figure 5: Modélisation mathématique de la fréquence critique en fonction de la concentration

- |                    |  |
|--------------------|--|
| a- Pour [0.1-0.4%] | $f_c = -1411,2 x^3 + 856,45x^2 - 140,81x + 11,529$ |
| b- Pour [0.4-0.6%] | $f_c = -684,55 x^2 + 695,28x - 166,66$             |
| c- Pour [0,6-1%]   | $f_c = -69,65 x^2 + 107,11x - 35,123$              |

## 4. Conclusion

Au cours de ce travail nous avons étudié le comportement rhéologique des solutions du nanofluide à base de nanotube de carbone, Le comportement rhéologique du nanotube de carbone dépend de la fraction massique. La viscosité des nanotubes de carbone augmente avec l'augmentation de la fraction massique et l'évolution de la valeur de  $\mu_c$ , il évolue sous une forme polynomiale en fonction de la concentration.

Le modèle adapté aux résultats expérimentales sont QUEMADA selon des calculs théoriques pour des fractions volumiques qui varient entre 0,000600591 et 0,00299576 et au-delà de cette valeur jusqu'à 0.006 c'est l'expression polynomiale d'ordre 2, qui décrit la variation de la viscosité en fonction de la fraction massique.

L'originalité de notre travail réside dans la détermination du comportement rhéologique des nanotubes de carbone avec différentes fractions massiques et l'introduction d'une expression mathématique pour une meilleure corrélation et contrôle des résultats expérimentaux.

Ces résultats prometteurs montrent que l'utilisation des nanofluides à base de nanotubes de carbone offre clairement une amélioration des performances rhéologiques par rapport aux fluides de base classiques. Ces nanofluides peuvent constituer ainsi un débouché prometteur des transferts thermiques et présentent de bonnes perspectives et développement.

## 5. Bibliographie

- [1]: R.P. Vidano, D.B. Fischbach, L.J. Willis, T.M. Loehr, Observation of Raman Band Shifting with Excitation Wavelength for Carbons and Graphites., Solid State Commun. , 39 (1981) 341-344.
- [2]: M. Zhou, Y.M. Zhai, S. Dong, Electrochemical Sensing and Biosensing Platform Based on Chemically Reduced Graphene Oxide. , J. Anal. Chem., 81 (2009) 5603–5613.
- [3]: Hong, H. P., Wensel, J., & Peterson, S. (2007). Efficiently lowering the freezing point in heat transfer coolants using carbon nanotubes. Journal of Thermophysics and Heat Transfer, 21, 446–448.
- [4]: Chen, L., Xie, H., Yu, W., & Li, Y. (2011). Rheological behaviors of nanofluids containing multi-walled carbon nanotube. Journal of Dispersion Science and Technology, 550-554.
- [5]: Moghaddam, M. B., Goharshadi, E. K., Entezari, M. H., & Nancarrow, P. (2013). Preparation, characterization, and rheological properties of graphene–glycerol nanofluids. Chemical engineering journal, 231, 365-372.
- [6]: Aladag B, Halefadi S, Doner N, Mare T, Duret S, Estelle P. Experimental investigations of the viscosity of nanofluids at low temperatures. Appl Energy 2012; 97:876–80.
- [7] : G. V. Casquillas. Contrôle de température et étude des transferts thermiques dans des dispositifs microfluidiques. These de doctorat, Faculté des sciences d'Orsay, effectuée au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures, (2008).
- [8]: Y. Yang, Z. G. Zhang, A. E. Grulke, W. B. Anderson, G. Wu. Heat transfer properties of nanoparticle-in-fluid dispersions (nanofluids) in laminar flow. International Journal of Heat and Mass Transfer 48 (2005) 1107-1116.
- [9]: W. Daungthongsuk, S. Wongwises. A critical review of convective heat transfer of nanofluids. Renewable and Sustainable Energy Reviews 11 (2007) 797-817.
- [11]: Hadaoui, A. (2010). Effets de taille et de concentration sur les propriétés thermiques et rhéologiques des nanofluides (Doctoral dissertation, Université d'Orléans).