Appareillage de mesure de la viscosité sous très haute pression

Étienne Charles, Edmond Groubert

► To cite this version:

Étienne Charles, Edmond Groubert. Appareillage de mesure de la viscosité sous très haute pression. *Revue de Physique Appliquée*, 1966, 1 (4), pp.303-307. 10.1051/rphysap:0196600104030300 . jpa-00242753

HAL Id: jpa-00242753

<https://hal.science/jpa-00242753>

Submitted on 1 Jan 1966

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.

APPAREILLAGE DE MESURE DE LA VISCOSITÉ SOUS TRÈS HAUTE PRESSION

Par ÉTIENNE CHARLES et EDMOND GROUBERT,

Laboratoire de Physique Appliquée du Centre d'Études d'Électronique de Montpellier,
associé au C. N. R. S.

Résumé. — Cet appareillage a été réalisé dans le but d'étudier la viscosité des liquides aux très hautes pressions dans le domaine de température situé au-dessous de 30 °C. Il utilise le principe du viscosimètre de Hoppler à bille roulante. La mesure du temps de chute de la bille se fait par détection de variation de l'inductance de bobines placées en deux points de sa trajectoire.

Des résultats ont été ainsi obtenus pour la viscosité du glycérol à la température de 20 °C et jusqu'à 6 000 bars.

Abst.act. — This apparatus was built to study the viscosity of liquids under high pressure in the temperature range below 30 °C. The principle of the Hoppler viscosimeter with rolling ball is used. Measurement of the time of fall is made by detection of the variation of the self induction of coils set at two points in its path.

With this method some results were obtained for the viscosity glycerol of at a temperature of 20 °C and up to 6 000 bars.

Introduction. — Dans le cadre des études de structures liquides poursuivies au laboratoire [16], nous avons été amené à mesurer la viscosité de ces milieux en fonction de la pression. Il y a eu relativement peu d'expériences tentées dans ce domaine à cause des grandes difficultés techniques qu'on y rencontre. Nous citerons par exemple les travaux très importants effectués par Bridgman. Actuellement et à notre connaissance, les plus récents travaux relatifs à la mesure de la viscosité sous pression sont ceux de R. Bessouat et S. Elber (1964), de G. E. Duffie, Jr. et M. V. Kelly (1965). Le problème qui s'est posé à nous fut de construire un appareillage susceptible de mesurer cette viscosité sous très haute pression (au-delà de 6 000 bars) de la façon la plus simple et la plus précise possible simultanément avec des propriétés électriques.

DESCRIPTION DE LA MÉTHODE CHOISIE [1], [2], [3]. — Le viscosimètre est du genre de Hoppler. La bille descend en roulant dans un cylindre rempli d'un liquide, incliné d'un angle fixe par rapport à l'horizontale ; sa vitesse donne la viscosité du fluide.

Le traitement mathématique de la relation vitesse-viscosité est compliqué spécialement dans le cas où, comme ici, la bille a presque le diamètre du tube, Hubbard et Brown (*Ing. Eng. Chem.*, 1943) ont fait des recherches théoriques et pratiques sur ce système et ont en déduit l'équation générale pour un fluide newtonien.

Mais l'on peut en première approximation utiliser une formule empirique contenant une constante de l'appareil.

$$\eta = k(\rho_s - \rho)/v$$

v = vitesse de la bille,

ρ_s = densité de la bille,

ρ = densité du liquide,

k = constante que l'on détermine par étalonnage direct de l'appareil en mesurant la viscosité d'un liquide connu. L'avantage de la méthode du viscosimètre incliné sur celle du viscosimètre vertical est qu'il est plus facile dans la pratique de faire suivre à la bille le même chemin dans le milieu à étudier, d'où une plus grande fidélité de l'appareil.

Réalisation pratique d'un viscosimètre à bille roulante. — A) CHOIX D'UNE MÉTHODE DE MESURE DE LA VITESSE D'UNE BILLE ROULANT LE LONG D'UN TUBE. — Le problème général consiste à mesurer le temps que met la bille pour parcourir dans le tube une distance donnée délimitée par deux repères et en dehors de toutes possibilités d'observation visuelles.

Plusieurs systèmes ont déjà été proposés. Nous allons brièvement les rappeler et indiquer les raisons qui nous ont poussé à les rejeter et à réaliser un nouveau dispositif.

1° *Viscosimètre à contact* [11], [13], [12]. — C'est le genre de celui utilisé par Bridgman dans son viscosimètre à bille tombante. La bille en tombant ouvre et ferme un circuit électrique. Ce viscosimètre présente l'inconvénient de mesurer le temps de chute pendant lequel la bille n'a pas encore sa vitesse limite et de ne pas tenir compte des effets de bouts à l'extrémité du tube viscosimétrique. De plus la bille commence sa chute avant qu'on ait atteint la position désirée pour l'inclinaison du tube.

2° *Utilisation de fenêtre ou de cellule photoélectrique.*

— Très difficile à réaliser aux pressions que nous désirions atteindre.

3° *Utilisation d'une source de rayonnement γ .* — Cette méthode a été utilisée par Glaser et Gebbhardt [9], [10]. Nous n'en avons pas étudié en détail les possibilités, car elle demande un appareillage encombrant et peu souple et un premier examen avait fait apparaître les difficultés qu'il y aurait à se procurer les éléments nécessaires à sa réalisation. Il est notamment difficile d'avoir des billes marquées ayant les diamètres et la précision demandés.

4° *Variation de la capacité d'un conducteur* [6], [7]. — Cette méthode a été utilisée par G. E. McDuffie, Jr et M. V. Kelly (*The Journal of Chemical Physics*, 1964), elle comporte les deux inconvénients suivants à savoir :

— Les deux anneaux de capacité doivent être insérés dans le tube viscosimétrique de telle sorte que leurs bords intérieurs affleurent avec la paroi intérieure du tube, ce qui rend très délicate la fabrication des tubes viscosimétriques.

Par ailleurs l'appareillage servant à détecter le passage de la bille c'est-à-dire la variation de la capacité et qui comprend un détecteur et un enregistreur (ou une pendule) est assez important.

5° *Variation de la réductance d'un circuit magnétique* [14], [4], [5]. — Cette méthode a été décrite et utilisée par R. Bessouat et S. Elber (Centre d'Étude de Grenoble, *J. Physique*, mars 1964), mais elle n'était absolument pas adaptée au travail que nous voulions faire. En effet, elle présente les inconvénients suivants : le cylindre haute pression doit être en acier amagnétique, ce qui limite le choix du matériau que l'on peut utiliser pour celui-ci ; d'autre part, les trous réalisés dans les parois du cylindre pour loger les pièces polaires des électroaimants, auraient trop affaibli la chambre haute pression. En outre, les bobines des électroaimants (11 000 et 280 000 spires) produisent un échauffement par conduction qu'il est nécessaire de contrebalancer et rendent par leur présence l'appareil encombrant. Nous signalerons enfin que le plongeur est en deux parties.

6° *Variation de l'inductance d'une bobine* [8], [15] ; Kuss (*Naturwiss.*, 1964) s'était déjà servi de bobines pour détecter le passage d'une bille, mais son système de détection (modification d'un son quand la bille se trouve dans une bobine) assez imprécis de l'aveu même de l'auteur, n'est pas automatique et ne se prête pas bien à la mesure de temps trop long. La nécessité d'avoir trois sorties électriques distinctes est une complication pour la chambre haute pression.

L'auteur signale en outre que son système est sujet à des perturbations lorsqu'on l'introduit dans la chambre haute pression en acier.

La méthode que nous avons choisie, qui elle aussi fait appel à des inductances, remédie à tous ces défauts et présente l'avantage de demander un ap-

pareillage annexe très réduit, dont tous les éléments se trouvent d'une façon courante dans le commerce.

Elle rend plus facile en second lieu la réalisation de la chambre haute pression en ne demandant qu'un seul passage électrique isolé.

D'autre part la réalisation des tubes viscosimétriques se trouve simplifiée par ce moyen par rapport à l'emploi de capacité (voir paragraphe C), ce qui contribue à améliorer la précision du système qui jusqu'à présent nous a donné pleine satisfaction.

B) DESCRIPTION ET FONCTIONNEMENT DE L'APPAREILLAGE UTILISÉ (fig. 1).

FIG. 1. — Schéma du montage.

I. Transformateur moyenne fréquence. — II. Relais à une seule position stable. — III. Relais pas à pas. — IV. Horloge électrique au $1/10^6$ de seconde.

On réalise avec l'un des éléments d'une double triode 12 AT 7 un oscillateur E. C. O. O. légèrement modifié par l'introduction d'une polarisation automatique sur la cathode et non sur la grille. Une partie de la bobine constituant le circuit oscillant placé sur la grille sert à former deux inductance que l'on dispose le long du tube viscosimétrique.

L'impédance Z placée dans le circuit plaque est constituée par un transformateur moyenne fréquence ce qui est accordé sur le circuit oscillant situé sur la grille. La tension recueillie au secondaire du transformateur est redressée par une diode à semi-conducteur et envoyée sur la grille d'une seconde triode 12 AT 7 qu'elle bloque. Lorsque la bille du viscosimètre se trouve à l'intérieur d'un des enroulements situé sur le tube viscosimétrique les conditions d'oscillations ne sont plus remplies, l'oscillateur décroche. La seconde triode est alors débloquée et il apparaît aux bornes de la résistance placée dans son circuit plaque un signal.

Un circuit comprenant une capacité et l'enroulement magnétique d'un relai à une seule position stable est placé en dérivation sur cette résistance. Lorsque le signal plaque apparaît il est parcouru

pendant le temps de charge du condensateur par un courant qui commande successivement l'ouverture et la fermeture du circuit d'alimentation d'un chronomètre électrique au $1/10''$ de seconde. Ce dispositif rend la mesure du temps de chute automatique. Nous avons dû étudier les conditions d'oscillations et de décrochage de notre oscillateur pour placer le point de fonctionnement dans la région limite.

Conditions d'oscillation. — Écrivons les conditions d'accrochage de l'oscillateur et plus particulièrement du circuit oscillant donné par les schémas 1 et 2.

FIG. 2. — Circuit oscillant.

Nous avons :

$$L \frac{dI}{dt} + RI + \frac{1}{C} \int I dt = L' \frac{d(I_C - I)}{dt} + R'(I_C - I)$$

d'où :

$$(L + L') \frac{dI}{dt} + (R + R') I + \frac{1}{C} \int I dt = L' \frac{dI_C}{dt} + R' I_C$$

Nous avons :

$$I_C = S_0 V \quad \text{et} \quad V = \frac{1}{C} \int I dt$$

où S_0 est la pente de la triode.

D'où :

$$(L + L') C \frac{d^2 V}{dt^2} + (R + R') C \frac{dV}{dt} + V = L' S_0 \frac{dV}{dt} + R' S_0 V$$

en posant :

$$\left\{ \begin{array}{l} L + L' = L_T \\ R + R' = R_T \\ \alpha = \frac{R_T}{2L_T} \text{ coefficient d'amortissement} \\ \omega_0^2 = \frac{1}{L_T C} \text{ fréquence.} \end{array} \right.$$

Nous obtenons :

$$\frac{d^2 V}{dt^2} + (2\alpha - \omega_0^2 L' S_0) \frac{dV}{dt} + (\omega_0^2 - \omega_0^2 R' S_0) V = 0.$$

Pour que des oscillations puissent naître il faut que dans cette équation différentielle le coefficient d'amortissement soit négatif ou nul.

$$2\alpha - \omega_0^2 L' S_0 \leq 0$$

donc

$$L' \geq \frac{2\alpha}{\omega_0^2 S_0} \quad \text{ou} \quad L' \geq \frac{R_T}{\omega_0^2 L_T S_0} \quad \text{ou} \quad L' \geq \frac{R_T C}{S_0}.$$

Nous avons

$$\frac{L'}{R} > \frac{C}{S_0}.$$

Or l'introduction d'un noyau de fer dans la bobine diminue son coefficient de surtension $Q = L/R$ pour une fréquence donnée. Nous aurons donc lors du passage de la bille une diminution de L'/R et, si les dimensions des enroulements et de la bille sont bien choisies, décrochage de l'oscillateur à ce moment.

Remarque : Nous pouvons tracer en fonction de l'amplitude de la tension dans le circuit oscillant la puissance fournie au système par la source d'énergie et la puissance dissipée par la résistance R_T .

$$P \text{ (puissance dissipée)} = \frac{k^2}{2} \frac{V_m}{R} \text{ (fig. 3).}$$

FIG. 3.

I. Énergie fournie par la source. — II et II'. Énergie perdue. — III. Point de fonctionnement stable.

Il faut que cette puissance dissipée soit inférieure à la puissance fournie par la source d'énergie (HT).

Si l'énergie fournie par le circuit est supérieure à l'énergie perdue par effet Joule, le système reçoit plus d'énergie qu'il n'en dépense, l'amplitude des oscillations augmente, si c'est l'inverse, les oscillations s'amortissent et il y a un décrochage.

C) TUBE VISCOSIMÉTRIQUE, RÉALISATION PRATIQUE ET ÉTALONNAGE (fig. 4). — Pour réaliser le tube viscosimétrique nous avons utilisé différents

FIG. 4. — Schéma du tube viscosimétrique.

matériaux tels que le chlorure de polyvinyle et le polyméthacrylate d'éthyle. Sa fabrication est très simple. Nous réalisons un trou central dans un rondin du matériau choisi et nous aléons ce trou de façon à le rendre parfaitement cylindrique. Sur sa surface externe nous pratiquons deux gorges comme l'indique le schéma, fig. 4, qui sont destinées à recevoir les bobines que nous noierons ensuite dans l'alradite pour que leurs coefficients d'inductance L ne varient pas par tassement lorsqu'elles seront soumises à la pression. Les extrémités de ces bobines montées en série sont reliées à deux fiches microminiatures encastrées dans la paroi du tube permettant d'enficher le système à la suite d'une autre cellule, pour la mesure simultanée de la permittivité. Enfin les extrémités du tube sont fermées, après introduction de la bille, par deux bouchons percés de trou pour permettre la libre circulation du liquide étudié. L'étalonnage de ce viscosimètre a été fait en séparant en deux parties le même échantillon d'un liquide en l'occurrence du glycérol. La première partie de cet échantillon a servi à remplir un viscosimètre Hoppler placé à une température de 20 °C et étalonné. La seconde partie a servi à remplir le tube viscosimétrique maintenu à la même température de 20 °C.

Nous avons donc :

$$\eta = k(\rho_s - \rho) t$$

donné par la mesure au viscosimètre Hoppler.

Nous avons effectué des mesures de densité de la bille et du liquide et le temps t a été déterminé sur notre viscosimètre.

Nous avons donc obtenu la constante k de notre viscosimètre pour une pente donnée de celui-ci.

La détermination de k a été faite pour plusieurs angles. Le contrôle au moyen des courbes de viscosité a donné des résultats satisfaisants.

Avantages présentés par le système. — Il fonctionne dans les deux sens après retournement de l'appareil c'est-à-dire que l'on peut faire des mesures lorsque la bille parcourt le tube dans un sens comme dans l'autre ce qui entraîne un gain de temps appréciable.

— A part le retournement du viscosimètre qui est manuel, le système se déclenche et s'arrête automatiquement sans intervention de l'opérateur, d'où sa grande commodité d'utilisation même pour la mesure des grandes viscosités qui correspondent à des temps très longs.

— Le changement du tube viscosimétrique est très rapide.

— Appareillage de détection réduit au minimum. La transitoration du système de détecteur pourrait même réduire encore plus cet encombrement.

— Grande précision sur la mesure des temps.

Défauts du système choisi. — Le principal est inhérent à tous les appareils soumis à de grandes pressions : Il y a variation des caractéristiques du tube viscosimétrique entraînant une variation de la constante k du viscosimètre.

Si nous nous rapportons à l'étude faite par Hubbard et Brown [2] sur le viscosimètre à bille roulante nous avons l'expression

$$\eta = \frac{5\pi}{42} \cdot g \cdot \sin \theta \cdot \frac{\rho_s - \rho}{l} \cdot t \cdot K \cdot d \cdot (D - d)$$

dans laquelle

g = accélération de la pesanteur,

θ = angle du viscosimètre par rapport à l'horizontale,

ρ_s = densité de la bille,

ρ = densité du fluide,

l = distance entre les deux bobines,

K = facteur de corrélation sans dimension,

d = diamètre de la bille,

D = diamètre du tube,

t = temps de chute,

alors

$$k = \frac{5\pi}{42} \cdot g \cdot \sin \theta \cdot K \cdot \frac{d(D - d)}{l}$$

Nous voyons que la pression et la température vont avoir une action sur K , d , D , l et aussi sur ρ_s .

Pour que l'appareil soit acceptable il faut que

$$\frac{\Delta k}{k} = \frac{\Delta K}{K} + \frac{\Delta D}{D} + \frac{\Delta l}{l} \quad \text{et} \quad \frac{\Delta \rho_s}{\rho_s}$$

soient négligeables.

Cette erreur est difficile à évaluer exactement. Nous voyons toutefois qu'il est nécessaire d'utiliser des matériaux à grande dureté pour la fabrication du tube.

Une comparaison des résultats obtenus avec des tubes de différentes matières nous indiquera pratiquement l'importance des variations de k avec la pression.

Il nous est donc apparu souhaitable d'utiliser des matériaux thermodurcissables pour la fabrication des tubes.

Résultats. — Nous avons étudié au moyen du viscosimètre décrit ci-dessus un échantillon de glycérol ordinaire contenant 1,84 % d'eau (cette mesure a été effectuée par la méthode de Karl Fischer) à

la température de 20 °C et pour des pressions allant de 1 à 6 000 bars.

La viscosité a été mesurée pour deux pentes différentes et nous avons obtenu des résultats semblables à 3 % près.

La variation de la viscosité en fonction de la pression est en première approximation de la forme prévue par la théorie d'Eyring.

TABLEAU DE LA DENSITÉ ET VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA PRESSION

T °C	P (kg/cm ²)	ρ (g/cm ³)	η (poise)		Log ¹⁰ η	
			1	2	1	2
20 °C	1	1,25	10,03138	10,03138	1,00130	1,00130
	715	1,277	15,00	15,00	1,17609	1,17609
	1 430	1,314	25,539	24,325	1,40722	1,38614
	2 145	1,354	41,932	41,902	1,62252	1,62221
	2 860	1,386	67,089	66,688	1,82659	1,82400
	3 575	1,415	112,512	107,388	2,05115	2,03100
	4 290	1,442	177,76	175,50	2,24993	2,24428
	5 005	1,474	262,043	267,72	2,41830	2,42765
	5 720	1,507	412,632	402,984	2,61553	2,60531

Conclusion. — L'appareil décrit ci-dessus doit nous permettre, dans un proche avenir, de réaliser des mesures dans la plage de pression allant de 1 à 10 000 bars, lorsque nous aurons terminé la réalisation de la chambre haute pression qui est en

cours. Parallèlement aux mesures de viscosité et de densité, nous effectuons simultanément sur le même échantillon des mesures de pertes diélectriques et de conductibilité avec une cellule appropriée.

Manuscrit reçu le 25 juin 1966.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] HERSEY, *J. Wash. Acad. Sc.*, 1916, **6**, 525.
- [2] HUBBARD et BROWN, *Ind. Eng. Chem.*, 1943, **15**, 212.
- [3] LEWIS, *Ann. Chem.*, 1953, **25**, 507.
- [4] CHARRON (F.), *Publication Scientifique et Technique du Ministère de l'air*, 1951, **247**.
- [5] ROUX et MALOUBIER, *Rev. Inst. Français Pétrole*, 1959, **14**, 1211.
- [6] McDUFFIE (G. E.) et JELLY (M. V., Jr.), *J. Chem. Physics*, 1^{er} novembre 1964, vol. **41**, n° 9.
- [7] SUGE (Yoshio), *Scient. Papers Inst. Phys. Chem. Res.*, Tokyo, 1938, **34**, 1244.
- [8] JOBLING (A.) et LAWRENCE (A. S. C.), *Proc. Roy. Soc.*, 1951, **106**, A 256.
- [9] FLASER (F.) et GABBARDT (F.), *Chem. Ing. Technik*, 1959, **39**, 743.
- [10] HEIKS (John R.) et ORBAN (Edward), *J. Physical Chemistry*, 1956, **60**, 1025.
- [11] BRIDGMAN (P. W.), *The physics of high pressure*, G. Bell and Sons, Ltd, London, 1949.
- [12] GRIEST, WEBB et SCHIESSLER, *J. Chem. Physics*, 1958, **29**, 711.
- [13] RUSKA, *Viscosité and flow measurement*, 1960, 279.
- [14] BESSOUAT (R.), CHAVANEL (H.) et ELBER (S.), *J. Physique (Physique Appliquée)*, 1964, **23**, A 3.
- [15] KUSS, *Naturwissenschaften*, 1945, **33**, 312.
- [16] CHARLES (Étienne), *Diplôme d'Études Supérieures*, Montpellier, 1966.