



HAL
open science

Rhéologie des pâtes granulaires

Nicolas Huang

► **To cite this version:**

Nicolas Huang. Rhéologie des pâtes granulaires. Analyse de données, Statistiques et Probabilités [physics.data-an]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : . tel-00174291

HAL Id: tel-00174291

<https://theses.hal.science/tel-00174291>

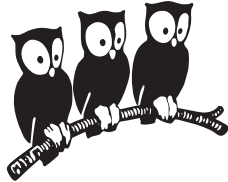
Submitted on 23 Sep 2007

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.

Département de Physique
de l'École Normale Supérieure

LABORATOIRE DE PHYSIQUE STATISTIQUE



THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6 – PIERRE ET MARIE CURIE
Spécialité : Physique des Liquides

présentée par
Nicolas HUANG

en vue d'obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

Sujet de la thèse :

RHÉOLOGIE DES PÂTES GRANULAIRES

Soutenue le vendredi 22 septembre 2006 devant le jury composé de :

D. LHULLIER	Président du jury
C. ANCEY	Rapporteur
O. POULIQUEN	Rapporteur
É. CLÉMENT	Examineur
B. POULIGNY	Examineur
D. BONN	Directeur de thèse

Remerciements

Mes remerciements ouvrent ce manuscrit de thèse et achèvent l'écriture de mon travail. Au fil des rencontres, et que leurs noms figurent sur ces pages ou non, je remercie les compagnons de route qui m'ont accompagné pendant ces moments, et qui ont éclairé mon chemin.

Les directeurs successifs du Laboratoire de Physique Statistique de l'École Normale Supérieure m'ont accueilli au sein du laboratoire, et je les en remercie. Jacques Meunier était directeur du laboratoire lorsque j'ai débuté ma thèse, et Éric Perez est directeur du Laboratoire de Physique Statistique depuis 2006.

Mon directeur de thèse, Daniel Bonn, m'a accepté comme doctorant dans son équipe de recherche. Il a eu la patience de soutenir mon travail jusqu'à son achèvement, et a largement contribué à la réussite de mes travaux de recherches. Merci.

Les membres de mon jury de thèse ont eu la gentillesse d'examiner mon travail, et d'échanger des critiques pertinentes et constructives. Merci aux rapporteurs Christophe Ancy et Olivier Pouliquen, aux examinateurs Éric Clément et Bernard Pouligny, et au président du jury Daniel Lhuillier.

Les chercheurs du LMSGC du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées à Champs-sur-Marne, Guillaume Ovarlez, Stéphane Rodts, François Bertrand, Philippe Coussot, m'ont grandement aidé dans mon travail, grâce notamment à l'utilisation de leur appareil IRM dédié à l'étude des matériaux du génie civil.

J'ai eu l'immense opportunité, grâce à Wladimir Urbach, d'enseigner la Physique en PCEM1 pour le CHU Paris-Île-de-France-Ouest, dans les locaux de la rue des Saints-Pères à Paris : qu'il en soit remercié. Merci également à mes étudiants, de PCEM1 ou d'ailleurs, auprès de qui j'ai acquis et cultivé le goût pour l'enseignement.

À un moment ou à un autre, le personnel du laboratoire et du Département de Physique s'est révélé d'une aide précieuse. Huguette Guérard à la loge a souvent demandé de mes nouvelles. Les secrétaires du laboratoire ont démêlé efficacement les fils enchevêtrés des démarches administratives : Annie Ribaudeau, Marie-Christine Gefflot, Carole Philippe, Nora Sadaoui. Le personnel technique a été indispensable, que ce soit à l'atelier, pour l'électronique, l'électricité, l'informatique, les matériaux, les infrastructures ou pour entretenir les locaux : José Da Silva Quintas, Christophe Hermann, Didier Courtiade, Zaïre Dissi, Xavier Monnin, Marcel Jock...

Les membres de l'équipe de recherche, en salle S11, m'ont accompagné et soutenu pendant les différentes étapes de ma thèse, et je leur en suis reconnaissant : Sébastien Moulinet, Salima Rafai, Geoffroy Guéna, Ulysse Delabre, Christophe Chevallier, Dirk

Aarts, Peder Møller, Didi Derks, Mehdi Habibi, Denis Bartolo, Farid Bouamrirène, Yacine Amarouchène, Julie Drappier, Grégoire Narcy, Abdoulaye Fall,... Merci aux nombreux stagiaires qui sont venus travailler dans l'équipe et qui ont également participé à l'animation du laboratoire : Thomas Garnier, Samuel Lemaire, Thibaut Divoux, Mehdi Banaha, Mehdi Abtroun...

Au LPS ou plus loin, il y a les personnes avec qui j'ai partagé des instants conviviaux : Éric Herbert, Jérôme Wong, Yann Gambin, Christine Guerlin, Frédéric Caupin, Érol Kurtisovski, Chi-Tuong Pham, Julien Husson, Satoshi Sasaki, Stéphanie Moreau, Christophe Chevalier...

Bernard Perrin, professeur à Paris 7, possède une virtuosité incomparable pour raconter et faire aimer la Physique, et en particulier la mécanique des fluides. C'est avec générosité et bienveillance qu'il dispense ses cours. André Heslot, malheureusement parti trop tôt, a enseigné la Physique avec passion, talent et dévouement à l'Université Paris 7. Les grands enseignants, ceux dont on aime à se souvenir, ceux qui nous inspirent, sont rares : merci à eux.

Merci aux personnes venues m'encourager et partager ma joie le jour de la soutenance.

Merci à ma famille. Mes parents et ma tante Marie-Madeleine Luong m'ont beaucoup aidé pour mon pot de thèse. Pour leur aide, leur soutien et leur présence, je pense à eux.

Merci à mes amis.

Table des matières

Introduction	v
1 Notions de rhéologie des fluides complexes	1
1.1 Introduction	1
1.1.1 Viscosité de cisaillement	1
1.1.2 Contraintes et déformations dans un fluide	4
1.1.3 Glissement aux parois	11
1.2 Liquides non-newtoniens	12
1.2.1 Les fluides dont la viscosité dépend du temps	13
1.2.2 Les fluides dont la viscosité dépend du taux de cisaillement	16
1.3 Rhéologie des pâtes granulaires	27
1.3.1 Fraction volumique d'un empilement de grains	27
1.3.2 Viscosité d'une suspension de sphères dures	29
1.3.3 Interactions entre particules et transition frictionnelle-visqueuse	31
1.3.4 Migration	34
2 Techniques expérimentales	37
2.1 Introduction	37
2.2 Techniques de rhéométrie classique	38
2.2.1 Géométrie de Couette cylindrique	38
2.2.2 Géométrie cône-plan	44
2.2.3 Géométrie plan-plan	46
2.2.4 Géométrie double-gap	47
2.2.5 Géométries utilisées dans le cadre du travail de thèse	48
2.3 Application de l'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) à la rhéologie	48
2.3.1 Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)	49
2.3.2 Mesure des profils de vitesse	54
2.3.3 Mesure de densité	55
2.3.4 Intérêt de l'IRM en rhéologie	55
2.3.5 Dispositif utilisé	56

3	Bifurcation de viscosité dans une pâte granulaire : existence de deux régimes d'écoulement	57
3.1	Introduction	57
3.2	Système étudié et technique expérimentale	59
3.2.1	Système étudié : pâte granulaire	59
3.2.2	Technique expérimentale pour la caractérisation rhéologique	62
3.3	Bifurcation de viscosité des pâtes granulaires	62
3.4	Courbes d'écoulement des pâtes granulaires à contrainte imposée	66
3.5	Courbes d'écoulement d'une pâte granulaire à taux de cisaillement imposé et à contrainte imposée	67
3.6	Transition entre les régimes frictionnel et visqueux	68
3.7	Contraintes normales	72
3.8	Mesure des propriétés locales	74
3.8.1	Dispositif expérimental	76
3.8.2	Profils de vitesse	76
3.8.3	Lien entre mesures microscopiques et macroscopiques	79
3.9	Conclusion	81
4	Définition de la viscosité pour une suspension concentrée	83
4.1	Introduction	83
4.2	Évolution de la viscosité dans la pâte	84
4.3	Profil de concentration dans l'entrefer en cellule de Couette IRM	87
4.4	Comparaison entre viscosité globale et locale en fonction de la fraction volumique solide	89
4.5	Conclusion	92
5	Rhéoépaississement dans une suspension de fécule de maïs	95
5.1	Introduction	96
5.2	Système étudié et technique expérimentale	98
5.3	Expériences macroscopiques avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité	99
5.3.1	Aspect qualitatif	99
5.3.2	Courbes de viscosité et d'écoulement	102
5.3.3	Contraintes normales	103
5.3.4	Évolution du taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et de la contrainte critique σ_c en fonction de l'entrefer e	104
5.4	Expériences macroscopiques avec un solvant de 10 mPa.s de viscosité	106
5.4.1	Comportement rhéologique	106
5.5	Expériences en IRM avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité	107
5.5.1	Temps d'établissement d'un état stationnaire	107
5.5.2	Évolution temporelle du profil de vitesse	108
5.5.3	Profils de vitesse à l'état stationnaire	108
5.5.4	Ajustement des profils de vitesse	111
5.6	Interprétation	113

5.6.1	Origine possible des instabilités	113
5.6.2	Comparaison avec les pâtes granulaires	116
Conclusion		119
Bibliographie		122

Introduction

Cette thèse porte sur *la rhéologie des pâtes granulaires*. *La rhéologie* est l'étude de l'écoulement et de la déformation de la matière ; *les pâtes granulaires* sont des mélanges composés de particules en concentration élevée immergées dans un fluide.

Le terme « rhéologie » a été inventé le 29 avril 1929 par Eugène Cook Bingham, sur les conseils d'un collègue professeur de lettres classiques [Doraiswamy, 2002, Barnes *et al.*, 1989]. Ce terme provient de deux racines grecs : $\rho\acute{\epsilon}\omicron$ (*rhéo*) qui signifie « s'écouler », et $\lambda\acute{o}\gamma\omicron\varsigma$ (*logos*) qui signifie « raison », et par extension, « explication ».

La rhéologie s'est développée dès la première moitié du XX^e siècle avec le développement de l'industrie des polymères, et les premières conférences de rhéologie concernaient les caoutchoucs, les plastiques, les peintures, les lubrifiants et l'asphalte. La rhéologie est donc née de l'existence de matériaux de natures très différentes, à la déformation et à l'écoulement très éloignés de ceux d'un solide hookéen élastique ou d'un liquide newtoniens visqueux¹. Toutefois, les comportements de matériaux aussi divers sont parfois très similaires ; il est par exemple frappant de noter que le *British Rheologists' Club* (Club des Rhéologues Britanniques), créé en 1940 et devenu la *British Society of Rheology* (Société Britannique de Rhéologie), a été fondé à l'initiative de scientifiques qui étudiaient, les uns les encres d'imprimerie, les autres les sécrétions cervicales de vache, tant les problèmes d'écoulement rencontrés dans l'étude de ces fluides étaient les mêmes [Coussot and Grossiord, 2001]. Déjà, les expériences de Weber en 1835 avaient montré que la déformation des fils de soie était différente de celle d'un solide hookéen élastique.

Par définition, le sujet d'étude de la rhéologie porte sur la matière en général, des solides élastiques hookéens aux liquides newtoniens visqueux. En pratique, la rhéologie s'intéresse plus particulièrement aux matériaux dits « complexes » dont le comportement se situe entre ces deux extrêmes. Le dentifrice, par exemple, s'écoule en appuyant sur le tube qui le contient, mais reste figé une fois déposé sur les poils de la brosse à dents : ce matériau est un fluide à seuil, qui est liquide lorsque la contrainte appliquée dépasse un certain seuil de contrainte, mais solide si la contrainte ne dépasse pas ce seuil. Autre exemple, la sauce tomate voit sa viscosité diminuer avec le temps (thixotropie) et avec le taux de cisaillement (rhéofluidification), au contraire de l'eau dont la viscosité reste

¹Pour un solide élastique hookéen, la déformation est proportionnelle à la contrainte appliquée. Pour un liquide visqueux newtonien, le taux de déformation est proportionnel à la contrainte appliquée. Voir chapitre 1.

constante. De nombreux matériaux ont un comportement rhéologique complexe : les cristaux liquides, le vernis à ongle, le dentifrice, la mayonnaise, les yaourts, les mousses, les crèmes cosmétiques et pharmaceutiques, le sang, les ciments, les laves, la neige, les boues... La rhéologie est donc un sujet vaste et largement pluridisciplinaire puisqu'elle a ainsi recours à la physique, à la chimie, aux mathématiques ou encore à la biologie. Enfin, les applications de la rhéologie sont nombreuses, de la fabrication des produits industriels aux avalanches géophysiques, en passant par le comportement des fluides biologiques ou le génie civil.

Le sujet de cette thèse sont les pâtes granulaires, ainsi dénommées à cause de leur consistance. Ces pâtes sont des fluides à seuil : selon les conditions de l'expérience, elles présentent un comportement solide ou liquide. Comment se passe la transition entre les deux états ? Le béton autoplaçant², les peintures ou les fluides de forage se solidifient au repos, empêchant les particules de sédimenter, mais s'écoulent immédiatement sous l'application d'une contrainte suffisamment forte. De même, lors d'un glissement de terrain, la boue passe abruptement d'un état solide à un état liquide, déclenchant alors une avalanche [Coussot *et al.*, 2005]. C'est également le cas du sable mouvant, qui forme un gel colloïdal fragile au repos ; ce gel est détruit lors du dépassement d'une contrainte seuil, et piège les personnes imprudentes qui s'aventureraient dessus³ [Khaldoun *et al.*, 2005]. Ces faits contredisent la description idéale d'un fluide à seuil pour lequel l'écoulement peut être aussi lent que l'on veut, du moment que la contrainte appliquée est au-dessus de la contrainte seuil d'écoulement [Bird *et al.*, 1982, Nguyen and Boger, 1992, Barnes, 1999]. En réalité, les fluides à seuil s'écoulent brusquement dès la contrainte seuil franchie ; la viscosité passe d'une valeur infinie à une valeur finie et basse : il y a bifurcation de viscosité [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b]. On parle d'état bloqué pour de tels systèmes, et de transition de blocage pour le passage solide-liquide [Liu and Nagel, 1998, Trappe *et al.*, 2001].

Pour des pâtes granulaires, la représentation classique est qu'à bas cisaillement, les interactions frictionnelles entre particules prédominent et le comportement est alors similaire à des matériaux granulaires secs, alors qu'à haut cisaillement les interactions sont lubrifiées, rendant le matériaux visqueux. Quelle sont alors les paramètres physiques qui gouvernent la transition frictionnelle-visqueuse ? Peut-on définir une viscosité pour le matériau ? Cette thèse tente de répondre à ces questions. De nouvelles expériences en IRM (Imagerie par Résonance Magnétique) permettront notamment d'avoir des mesures locales de la vitesse, afin de calculer des viscosités locales.

Un des problèmes qui se présente lors de l'écoulement de pâtes granulaires est la migration de particules. Comme l'ont montré les observations précurseurs de Leighton et Acrivos [Leighton and Acrivos, 1987], les particules d'une pâte sous cisaillement migrent

²Béton de grande fluidité qui, à l'image des fluides newtoniens, épouse la forme d'un récipient et possède une interface fluide-air plane au repos.

³Toutefois, la viscosité apparente augmente au cours du temps à cause de la sédimentation des particules une fois le sable liquéfié. Une personne ne peut couler complètement dans un sable mouvant grâce à la poussée d'Archimède, mais peut se retrouver prisonnier de cette couche de sédiment très compacte.

des régions fortement cisailées aux régions faiblement cisailées. Ce phénomène mène donc à une inhomogénéité de la pâte et à l'établissement d'un profil de concentration de particules au sein de la pâte, dont il faudra tenir compte.

Le plan de ce mémoire est comme suit :

Le chapitre 1 rappelle les notions de rhéologie utilisées dans le cadre du travail de thèse. Nous discuterons notamment des phénomènes de vieillissement et de rajeunissement qui gouvernent la façon dont s'écoule la pâte.

Le chapitre 2 présente les différentes techniques de rhéologie employées pour étudier les pâtes granulaires et leurs écoulements. Ce chapitre présente également la technique de l'IRM utilisée pour les mesures locales.

Le chapitre 3 étudie la transition frictionnelle-visqueuse pour les pâtes granulaires modèles étudiées, qui sont composées de particules sphériques macroscopiques de polystyrène ($\approx 290 \mu\text{m}$) immergées dans des fluides newtoniens de viscosités différentes. Ce chapitre identifie les paramètres physiques gouvernant la bifurcation de viscosité (contrainte et taux de cisaillement critique, viscosité du fluide interstitiel). Les résultats de ce chapitre ont fait l'objet d'une publication [Huang *et al.*, 2005].

Le chapitre 4 poursuit l'étude initiée dans le chapitre 3 et répond à la question de la définition d'une viscosité dans une pâte granulaire. Une loi constitutive, composée d'une équation reliant la contrainte au taux de cisaillement, d'une équation reliant la viscosité à la concentration en particules, et d'une équation faisant intervenir la première différence de contraintes normales, est établie. Un article fondé sur les résultats de ce chapitre est en cours de préparation.

Le chapitre 5 étend l'étude à une autre pâte granulaire : la suspension concentrée de Maïzena ©. La Maïzena est de la fécule de maïs ; le mélange étudié constitue un fluide rhéoépaississant courant. Un parallèle avec les pâtes granulaires des chapitres précédents est suggéré.

Chapitre 1

Notions de rhéologie des fluides complexes

Sommaire

1.1	Introduction	1
1.1.1	Viscosité de cisaillement	1
1.1.2	Contraintes et déformations dans un fluide	4
1.1.3	Glissement aux parois	11
1.2	Liquides non-newtoniens	12
1.2.1	Les fluides dont la viscosité dépend du temps	13
1.2.2	Les fluides dont la viscosité dépend du taux de cisaillement	16
1.3	Rhéologie des pâtes granulaires	27
1.3.1	Fraction volumique d'un empilement de grains	27
1.3.2	Viscosité d'une suspension de sphères dures	29
1.3.3	Interactions entre particules et transition frictionnelle-visqueuse	31
1.3.4	Migration	34

1.1 Introduction

1.1.1 Viscosité de cisaillement

Les expériences de Robert Hooke¹ en 1678 ont mené à la loi qui porte son nom et qui constitue une équation constitutive pour un solide élastique, pour de petites déformations. Cette loi exprime que la force de traction est proportionnelle à la déformation, soit :

$$\sigma = G \varepsilon$$

¹En accrochant des masses à l'extrémité d'un ressort vertical, Robert Hooke suggère que la force appliquée f est proportionnelle à l'allongement du ressort ΔL : $f \propto \Delta L$.

où σ est la contrainte de traction appliquée mesurée en Pascal (force par unité de surface), ε est la déformation relative, définie comme étant l'allongement du solide divisée par sa longueur initiale (donc sans dimension), et E le module d'Young, ou module élastique longitudinal, mesurée en Pascal (abréviation : Pa), et qui est intrinsèque au solide.

En 1687, quelques années après les expériences de Hooke, Issac Newton exprime intuitivement dans ses *Philosophiae Naturalis Principia Mathematica*² l'idée de viscosité pour un liquide visqueux : la contrainte appliquée est proportionnelle au gradient de vitesse, et le coefficient de proportionnalité est la viscosité³.

L'équation correspondante s'écrit :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma}$$

où σ est la contrainte de cisaillement (mesurée en Pa dans le Système International (SI) de mesure), $\dot{\gamma}$ le gradient de vitesse dans l'épaisseur du fluide (mesuré en s^{-1}), et η la viscosité dynamique (mesurée en Pa.s). L'unité de la viscosité dynamique est parfois appelée Poiseuille (1 Poiseuille = 1 Pa.s = 1 kg.m⁻¹.s⁻¹). Dans le système CGS (centimètre, gramme, seconde), la viscosité dynamique s'exprime en Poise (1 Poise = 0,1 Poiseuille = 0,1 Pa.s).

On définit également la viscosité cinématique ν , qui est le rapport entre la viscosité dynamique η et la masse volumique ρ du liquide. Elle est mesurée en m².s⁻¹ (dans le système CGS, l'unité de mesure est le Stokes, St en abrégé, avec la correspondance suivante : 1 St = 100 cSt = 10⁻⁴ m².s⁻¹ = 1 cm².s⁻¹). ν joue le rôle d'un coefficient de diffusion de la quantité de mouvement à travers les différentes couches de fluides qui glissent imparfaitement les unes par rapport aux autres lors de l'écoulement. Dans la suite de l'exposé, nous n'utiliserons que la viscosité dynamique η .

Quelques ordres de grandeur : la viscosité dynamique de l'eau à 20 °C est de 1 mPa.s, soit 1 cP (centipoise). L'air est à peu près 100 fois moins visqueux ; sa viscosité est de 1,8.10⁻⁵ Pa.s. La viscosité de l'huile d'olive à 20 °C est d'environ 80 mPa.s.

Les vérifications expérimentales n'arrivent que bien plus tard, avec les travaux de Poiseuille en 1856 et de Couette en 1890. L'équation de proportionnalité $\sigma = \eta \dot{\gamma}$ est ainsi vérifiée pour de nombreux liquides, que l'on qualifie alors de « newtonien ». Historiquement, un liquide newtonien est donc un liquide non élastique dont la viscosité ne varie pas suivant le gradient de vitesse⁴.

Précisons la signification physique de l'équation $\sigma = \eta \dot{\gamma}$. Soit un liquide entre deux plans parallèles (voir fig. 1.1). Le plan inférieur est fixe, et on exerce sur le plan supérieur

²Principes mathématiques de la philosophie naturelle.

³Newton formule l'hypothèse suivante [Newton, 1687] : « *La résistance qui vient du défaut de lubricité des parties d'un fluide doit être, toutes choses égales, proportionnelle à la vitesse avec laquelle les parties de ce fluide peuvent être séparées les unes des autres* ». La « résistance » est la viscosité, c'est-à-dire la réaction à la contrainte appliquée, et la « vitesse avec laquelle les parties de ce fluide peuvent être séparées les unes des autres » est le gradient de vitesse. Le « défaut de lubricité » des couches de fluides, c'est-à-dire le glissement imparfait des couches entre elles, provient des échanges de quantité de mouvement entre les différentes couches du fluide. Le mot « lubricité » est à prendre ici dans le sens de « lubrification »...

⁴Nous donnerons plus loin une définition plus complète et plus moderne d'un liquide newtonien.

une contrainte σ : le plan supérieur se meut alors à une vitesse V . On parle, pour une telle configuration, de géométrie plan-plan ou de Couette plan. En régime laminaire, le liquide peut être modélisé par une succession de couches infiniment minces parallèles aux plaques et parallèles les unes aux autres. La déformation du fluide se fait par glissement successif des couches les unes sur les autres par frottement, sans transport de matière d'une couche à l'autre mais avec transport de la quantité de mouvement. Les conditions aux limites sont la vitesse nulle sur le plan inférieur immobile, et la vitesse V sur le plan supérieur.

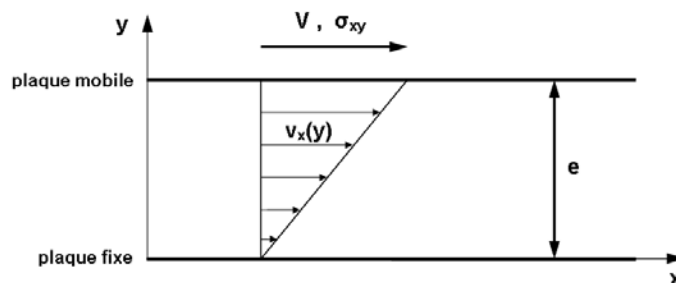


FIG. 1.1 – Profil de vitesse pour un écoulement de cisaillement simple d'un liquide newtonien entre deux plans. Le plan supérieur est en mouvement à vitesse V constante. Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est constant suivant y pour un liquide newtonien, et vaut $\dot{\gamma} = \partial v_x / \partial y = V/e$. La contrainte tangentielle σ_{xy} (ici indépendante de x et de y) s'applique suivant x sur une surface de couche de fluide dont la normale est suivant y .

La déformation γ est le rapport entre la longueur parcourue $l(t)$ par un élément de liquide du plan supérieur et l'épaisseur e entre les deux plaques (épaisseur appelée entrefer) :

$$\gamma = \frac{l(t)}{e}.$$

La déformation dépend du temps t puisque le liquide se déforme continûment au cours du temps : plus $l(t)$ est grand pour e fixé, plus γ est grand ; de même plus e est petit pour un même $l(t)$, plus γ est grand. Le liquide n'arrête cependant pas de se déformer avec le temps. À la place de la déformation, on s'intéresse donc à une grandeur physique plus pertinente : la déformation par unité de temps $d\gamma/dt = \dot{\gamma}$, que l'on appelle également taux de déformation ou encore taux de cisaillement⁵. L'unité SI est le s^{-1} . Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ n'est autre que la variation de la vitesse du plan supérieur en fonction de l'épaisseur e : il s'agit donc également du gradient de vitesse⁶, qui s'écrit V/e . On a donc :

$$\dot{\gamma} = \frac{V}{e}.$$

⁵Le taux est défini ici comme étant la variation d'une quantité considérée par unité de temps, et non pas simplement comme le rapport entre deux grandeurs.

⁶Les expressions « taux de cisaillement », « taux de déformation », « vitesse de déformation », « vitesse de cisaillement » et « gradient de vitesse » sont donc ici synonymes, en tout cas pour le cisaillement simple. En rhéologie, on utilise habituellement plus souvent l'expression « taux de cisaillement ».

Le concept est identique pour une couche infiniment mince qui compose le liquide, et on définit donc un taux de cisaillement local $\dot{\gamma}(y) = \partial v_x(y)/\partial y$. La contrainte σ_{xy} est la contrainte appliquée par une couche de fluide sur la couche de liquide inférieure. En géométrie plan-plan, σ_{xy} est constante dans l'épaisseur e par équilibre mécanique entre les différentes couches de fluide, et par conséquent, à l'état stationnaire, le gradient de vitesse $\dot{\gamma}$ est également constant dans l'épaisseur e . D'où la relation pour un liquide quelconque en géométrie plan-plan, qui définit la viscosité de cisaillement $\eta(\dot{\gamma})$ pour le liquide (constante dans l'épaisseur e en géométrie plan-plan à l'état stationnaire) :

$$\sigma_{xy} = \eta(\dot{\gamma}) \dot{\gamma},$$

ou encore plus explicitement :

$$\sigma_{xy} = \eta(\dot{\gamma}) \frac{\partial v_x}{\partial y}.$$

Pour un liquide newtonien, la viscosité η ne dépend pas du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$: la contrainte σ_{xy} est proportionnelle au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$.

1.1.2 Contraintes et déformations dans un fluide

Tenseur des contraintes

La relation $\sigma_{xy} = \eta(\dot{\gamma}) \dot{\gamma}$ relie la contrainte de cisaillement à la vitesse de déformation, ou taux de cisaillement, avec comme coefficient de proportionnalité la viscosité. Pour un liquide non-newtonien, il est nécessaire de tenir compte des contraintes perpendiculaires à l'écoulement, plus communément appelées contraintes normales. Nous introduirons le tenseur des contraintes à cet effet.

Le tenseur des contraintes fait apparaître toutes les contraintes qui peuvent s'exercer sur un matériau⁷, c'est-à-dire non seulement les contraintes tangentielles à l'origine des cisaillements, mais également les contraintes à l'origine des compressions et des élongations du matériau.

Considérons un élément de surface dS placé à l'horizontale : la normale \mathbf{n} à la surface dS est suivant l'axe y (voir fig. 1.2a). Une contrainte σ appliquée à cette surface peut être décomposée en trois composantes suivant les axes x , y et z : ce sont respectivement σ_{xy} , σ_{yy} et σ_{zy} . Plus généralement, dans la notation σ_{ij} , i est la direction de la contrainte et j la direction de la normale n à la surface dS . σ_{xy} et σ_{zy} sont des contraintes tangentielles et σ_{yy} est une contrainte normale.

Pour une force $d\mathbf{f}$ de direction quelconque appliquée à la surface dS de normale n (voir fig. 1.2b), la contrainte $\boldsymbol{\sigma}_n$ appliquée à dS s'écrit :

$$\boldsymbol{\sigma}_n = \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = \frac{d\mathbf{f}}{dS},$$

⁷Dans cet exposé, il est fait usage, sans doute de manière abusive, des termes « fluide », « liquide » et « matériau » pour signifier le même objet. Il ne sera de toute façon pas question de gaz, mais plutôt de liquide pouvant parfois posséder des caractéristiques d'un solide. Matériau est un terme plus général pour une substance ou matière quelconque, mais il recouvre ici la même notion que liquide et fluide, et il n'y a pas d'ambiguïté quant à l'objet étudié.

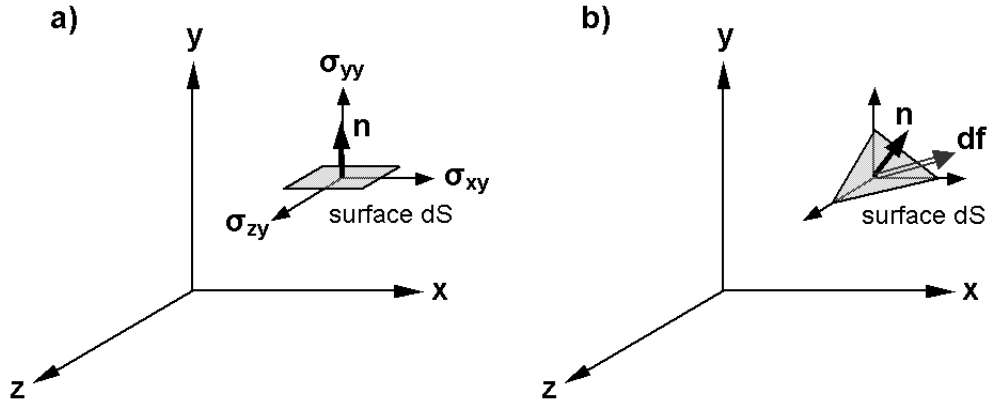


FIG. 1.2 – a) Composantes σ_{xy} , σ_{yy} , σ_{zy} de la contrainte s'exerçant sur une surface dS de normale orientée suivant l'axe y . b) Force de contrainte \mathbf{df} s'exerçant sur une surface dS dont la normale \mathbf{n} est orientée de façon quelconque.

soit, en notation matricielle,

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xn} \\ \sigma_{yn} \\ \sigma_{zn} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_x \\ n_y \\ n_z \end{pmatrix} = \frac{1}{dS} \begin{pmatrix} df_x \\ df_y \\ df_z \end{pmatrix}.$$

σ est le tenseur total des contraintes ; il peut se décomposer sous la forme :

$$\sigma = \tau - p \delta,$$

p étant la pression hydrostatique, δ le delta de Kronecker ($\delta = \delta_{ij}$, avec $\delta_{ij} = 1$ si $i = j$, 0 si $i \neq j$) et τ le tenseur des contraintes de viscosité qui apparaît lorsque le fluide est en mouvement. Par convention, le signe négatif de la pression p traduit le fait que le liquide est en compression : la pression est de sens opposé à la normale n de l'élément de surface dS considéré (un signe positif traduirait une traction). Pour un fluide au repos, les seules contraintes non nulles du tenseur des contraintes sont les termes diagonaux, et on a : $\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_{zz} = -p$, le fluide étant uniquement soumis à la pression hydrostatique. Notons que pour les contraintes de cisaillement, on a : $\sigma_{ij} = \tau_{ij}$, $i \neq j$. Enfin, seules les composantes du tenseur total des contraintes sont mesurables expérimentalement.

En rhéologie, le matériau étudié est souvent considéré comme étant incompressible. Or, pour de tels fluides, on ne parvient pas à différencier la pression p des contraintes normales de déformation τ_{ii} , lors de la mesure de $\sigma_{ii} = \tau_{ii} - p$ [Bird *et al.*, 1987, Morrison, 2001]. On cherche alors à s'affranchir de la contribution de la pression isotrope p . Ceci est possible en considérant les différences de contraintes normales, qui s'écrivent pour un écoulement de direction x (y étant la direction normale aux surfaces entre lesquelles le fluide est cisailé et z une direction neutre, comme pour le cisaillement plan : voir fig. 1.1) :

$N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy} = \tau_{xx} - \tau_{yy}$ première différence de contraintes normales ,

$N_2 = \sigma_{yy} - \sigma_{zz} = \tau_{yy} - \tau_{zz}$ deuxième différence de contraintes normales .

Pour l'eau, les différences de contraintes normales N_1 et N_2 sont nulles. L'absence de différences de contraintes normales est donc pris comme une autre caractéristique des fluides newtoniens. Pour des fluides non newtoniens présentant des différences de contraintes normales, généralement, N_1 est positif tandis que N_2 est négatif. N_1 est au moins une fois plus grand en ordre de grandeur que N_2 [Larson, 1999, Bird *et al.*, 1987].

L'existence de différences de contraintes normales dans certains liquides non-newtoniens est à l'origine de phénomènes spectaculaires tels que l'effet Weissenberg ou le gonflement de jets (« die swell » en anglais). Considérons un liquide qui présente une différence importante de contraintes normales lors d'un écoulement de cisaillement (par exemple une solution de polyacrylamide dans du glycérol [Bird *et al.*, 1987]). Pour observer l'effet Weissenberg, on fait tourner une tige cylindrique plongée dans ce liquide : on constate alors que le liquide remonte le long de la tige. Au contraire, dans un liquide newtonien tel que l'eau, le liquide se creuse autour de la tige par inertie [Barnes *et al.*, 1989]. Dans le gonflement de jets, un liquide sortant d'un tuyau à une certaine vitesse d'écoulement voit son diamètre augmenter à la sortie du tuyau [Guyon *et al.*, 2001]. Ce dernier phénomène affecte le procédé de fabrication industrielle des tiges, tuyaux ou fils de polymères qui sont obtenus par extrusion et influe sur l'épaisseur des produits finis. On cherche dans ce cas à limiter ce phénomène, ce qui nécessite sa connaissance et sa compréhension, ainsi qu'un contrôle étroit des procédés de fabrication.

Équation constitutive

L'étude d'un écoulement d'un fluide nécessite de déterminer la relation qu'il existe entre les contraintes, explicitées par le tenseur $\boldsymbol{\tau}$, et les taux de déformation qui en résultent. Les déformations sont données par les coefficients du tenseur \mathbf{G} des gradients de vitesse :

$$\mathbf{G} = G_{ij} = \frac{\partial v_i}{\partial x_j} .$$

Le tenseur \mathbf{G} peut être décomposé en deux parties : une partie symétrique \mathbf{D}_{ij} , et une partie antisymétrique $\boldsymbol{\omega}_{ij}$ [Guyon *et al.*, 2001]. On a alors :

$$G_{ij} = D_{ij} + \omega_{ij} ,$$

$$\text{avec } D_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \text{ et } \omega_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} - \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) .$$

La partie symétrique D_{ij} est la somme de deux tenseurs : le tenseur diagonal t_{ij} , représentant la variation de volume des éléments du fluide (variation nulle pour un fluide incompressible), et le tenseur symétrique de trace nulle d_{ij} , traduisant les déformations des éléments de fluide, sans variation de volume [Guyon *et al.*, 2001]. La partie antisymétrique ω_{ij} traduit la rotation en bloc des éléments du fluide (rotation dite pure ou solide). La

rotation solide ne faisant pas intervenir d'interactions entre éléments voisins, elle n'est pas liée aux contraintes appliquées au fluide. On ne s'intéresse donc qu'à la partie symétrique de \mathbf{G} : le tenseur des déformations $\mathbf{D} = D_{ij}$, qui caractérise la déformation du fluide.

Une équation constitutive d'un fluide est une équation qui relie les tenseurs $\boldsymbol{\tau}$ et \mathbf{D} , c'est-à-dire une relation qui relie les contraintes (en dehors des contraintes liées à la pression du fluide au repos) et les déformations du fluide. L'équation constitutive pour un fluide newtonien est [Larson, 1999] :

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta \mathbf{D} .$$

Cette équation se réduit, pour le cisaillement plan de la figure 1.1, à :

$$\sigma_{xy} = \eta \frac{\partial v_x}{\partial y} .$$

L'équation constitutive, ou loi de comportement, permet de caractériser l'écoulement d'un fluide en indiquant quelle est la réponse d'un fluide à une contrainte imposée, ou quelle contrainte doit être appliquée afin d'obtenir une déformation donnée. Pour un fluide réel, il est difficile d'explicitier une équation constitutive pour un écoulement quelconque qui serait à la fois de cisaillement et élongationnel, et pour lequel par ailleurs les coefficients du tenseur des contraintes dépendraient du temps. C'est pourquoi on se contente de déterminer une équation constitutive pour des écoulements spécifiques : de tels écoulements, plus simples à étudier, mettront en évidence une ou plusieurs caractéristiques, non-newtoniennes ou non, du fluide.

L'équation constitutive est ainsi un des éléments permettant d'étudier un écoulement. Pour résoudre complètement un problème d'écoulement, il est nécessaire de connaître :

- l'équation constitutive du fluide :

$$\boldsymbol{\tau} = f(\mathbf{D}), \text{ ce qui permet d'explicitier le tenseur des contraintes : } \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\tau} - p \boldsymbol{\delta} ;$$

- l'équation du mouvement (pour un fluide compressible ou non) :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{grad} \mathbf{v} \right) = \text{div} \boldsymbol{\sigma} + \rho \mathbf{f} ,$$

soit, puisque : $\text{div} \boldsymbol{\sigma} = \text{div} (\boldsymbol{\tau} - p \boldsymbol{\delta}) = \text{div} \boldsymbol{\tau} - \mathbf{grad} p$,

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{grad} \mathbf{v} \right) = -\mathbf{grad} p + \text{div} \boldsymbol{\tau} + \rho \mathbf{f} ,$$

ρ étant la masse volumique du fluide et \mathbf{f} les forces extérieures (gravitation, etc.) [Guyon *et al.*, 2001];

- l'équation de conservation (ou de continuité) :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div}(\rho \mathbf{v}) = 0,$$

soit $\operatorname{div} \mathbf{v} = 0$ pour un fluide incompressible ;

- les conditions aux limites.

Dans la cas d'un fluide newtonien, $\operatorname{div} \boldsymbol{\tau}$ devient [Guyon *et al.*, 2001, Morrison, 2001] :

$$\operatorname{div} \boldsymbol{\tau} = \eta \Delta \mathbf{v} + \left(\varsigma + \frac{\eta}{3} \right) \mathbf{grad} (\operatorname{div} \mathbf{v}),$$

où ς est la « viscosité de volume », dont les contraintes associées (termes diagonaux du tenseur $\boldsymbol{\tau}$) correspondent aux variations de volume par compression. Si de plus le fluide est incompressible ($\operatorname{div} \mathbf{v} = 0$), on obtient : $\operatorname{div} \boldsymbol{\tau} = \eta \Delta \mathbf{v}$. L'équation du mouvement pour un fluide newtonien incompressible, appelée équation de Navier-Stokes, est donc :

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{grad} \mathbf{v} \right) = -\mathbf{grad} p + \eta \Delta \mathbf{v} + \rho \mathbf{f}.$$

Lorsque le nombre de Reynolds Re est petit⁸, on peut négliger le terme non linéaire $\mathbf{v} \cdot \mathbf{grad} \mathbf{v}$. C'est le cas dans nos expériences, et on négligera donc ce terme par la suite. En se plaçant par ailleurs en régime permanent, l'équation de Navier-Stokes se réduit à l'équation de Stokes :

$$\mathbf{grad} p - \rho \mathbf{f} = \eta \Delta \mathbf{v}.$$

Un cas simple : le cisaillement plan

Dans le cas du cisaillement simple d'un liquide newtonien (voir fig. 1.1), les vitesses s'écrivent :

$$v_x = \dot{\gamma} y, \quad v_y = v_z = 0,$$

v_x, v_y, v_z étant les composantes de la vitesse suivant x, y et z respectivement, et $\dot{\gamma} = \frac{\partial v_x}{\partial y}$ est le taux de cisaillement, ici constant puisque le liquide est supposé newtonien.

Le tenseur des déformations \mathbf{D} s'écrit donc pour un cisaillement plan :

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma} & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

⁸On rappelle la définition du nombre de Reynolds : $Re = \rho \frac{UL}{\eta}$, avec ρ la masse volumique du fluide, U la vitesse de l'écoulement, L une longueur caractéristique du système et η la viscosité du fluide. Le nombre de Reynolds Re caractérise la transition d'un écoulement laminaire ($Re \ll 1$) à un écoulement turbulent ($Re \gg 1$).

Le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ s'écrit ainsi, sachant que, pour un fluide newtonien, $\boldsymbol{\tau} = 2\eta\mathbf{D}$:

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\tau} - p\boldsymbol{\delta} = \begin{pmatrix} -p & \eta\dot{\gamma} & 0 \\ \eta\dot{\gamma} & -p & 0 \\ 0 & 0 & -p \end{pmatrix}.$$

Les contraintes non nulles qui s'appliquent à ce fluide sont donc :

$$\sigma_{xy} = \sigma_{yx} = \eta\dot{\gamma},$$

$$\text{et } \sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \sigma_{zz} = -p.$$

Les autres contraintes σ_{xz} , σ_{yz} , σ_{zx} , σ_{zy} , ainsi que les différences de contraintes normales N_1 et N_2 , sont nulles.

Pour un liquide non-newtonien, en l'absence de la connaissance de la relation constitutive reliant $\boldsymbol{\tau}$ et \mathbf{D} , le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ s'écrit pour un écoulement de cisaillement simple [Morrison, 2001] :

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\tau} - p\boldsymbol{\delta} = \begin{pmatrix} \tau_{xx} - p & \tau_{xy} & 0 \\ \tau_{yx} & \tau_{yy} - p & 0 \\ 0 & 0 & \tau_{zz} - p \end{pmatrix}.$$

Pour des écoulements stationnaires, le tenseur des contraintes est constant au cours du temps et les trois quantités pouvant être mesurées sont τ_{xy} , N_1 et N_2 . La définition de la viscosité demeure la même : $\eta = \tau_{xy}/\dot{\gamma}_{xy}$.

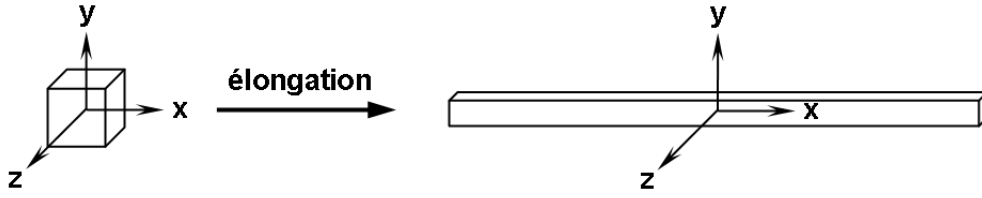
Pour de bas taux de cisaillements, N_1 et N_2 , lorsqu'ils existent, varient quadratiquement avec le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$. On définit ainsi le premier et le deuxième coefficient de contraintes normales, respectivement Ψ_1 et Ψ_2 , tels que :

$$N_1 = \Psi_1\dot{\gamma}^2 \quad \text{et} \quad N_2 = \Psi_2\dot{\gamma}^2.$$

On remarque en particulier que ces relations vérifient bien le fait que, quel que soit le sens de l'écoulement, les contraintes normales sont de même signe. Ainsi, dans l'effet Weissenberg, que l'on tourne la tige dans un sens ou dans l'autre, le fluide remonte toujours la tige.

Viscosité élongationnelle d'un liquide newtonien

Dans la partie 1.1.1, nous avons défini la viscosité de cisaillement η résultante des contraintes de cisaillement. Nous montrons à titre d'information un autre type de déformation : l'élongation, qui nous amène à définir la viscosité élongationnelle. Un écoulement élongationnel est un écoulement dans lequel les éléments de fluide sont étirés sans rotation ni cisaillement. La figure 1.3 montre l'élongation simple d'un matériau dans la direction x .

FIG. 1.3 – Élongation simple dans la direction x .

Pour un tel écoulement, l'élongation $\varepsilon(t)$ dans la direction x est la déformation relative à l'instant t dans cette direction. L'élongation $\varepsilon(t)$ et le taux d'élongation $\dot{\varepsilon}$ s'écrivent :

$$\varepsilon(t) = \frac{x(t+dt) - x(t)}{x(t)} = \frac{dx}{x(t)} \quad \text{et} \quad \dot{\varepsilon} = \frac{1}{dt} \left(\frac{dx}{x(t)} \right),$$

d'où, en posant la vitesse $v_x = \frac{dx}{dt}$, l'obtention de la relation : $v_x = \dot{\varepsilon} x$. Que valent v_y et v_z ? Par symétrie, $v_y = v_z$. En tenant compte de l'équation de conservation pour un fluide incompressible ($\text{div } \mathbf{v} = 0$), on obtient finalement :

$$v_x = \dot{\varepsilon} x, \quad v_y = -\frac{1}{2} \dot{\varepsilon} y \quad \text{et} \quad v_z = -\frac{1}{2} \dot{\varepsilon} z.$$

Le tenseur des déformations \mathbf{D} s'écrit donc :

$$\mathbf{D} = D_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \dot{\varepsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2} \dot{\varepsilon} & 0 \\ 0 & 0 & -\frac{1}{2} \dot{\varepsilon} \end{pmatrix}.$$

Le tenseur total des contraintes $\boldsymbol{\tau}$ s'écrit donc, pour un fluide newtonien (pour lequel l'équation constitutive est $\boldsymbol{\tau} = 2\eta \mathbf{D}$) :

$$\boldsymbol{\tau} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 2\eta \dot{\varepsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -\eta \dot{\varepsilon} & 0 \\ 0 & 0 & -\eta \dot{\varepsilon} \end{pmatrix}.$$

On définit la viscosité élongationnelle comme étant :

$$\eta_e \equiv \frac{\tau_{xx} - \tau_{zz}}{\dot{\varepsilon}}.$$

Pour un fluide newtonien, d'après les coefficients τ_{ij} du tenseur des contraintes de déformation $\boldsymbol{\tau}$, la viscosité élongationnelle η_e vaut :

$$\eta_e = 3\eta.$$

La viscosité élongationnelle η_e est donc une constante pour un fluide newtonien. Le coefficient de proportionnalité est appelé rapport de Trouton Tr : $Tr \equiv \eta_e/\eta$, et vaut donc 3 pour un fluide newtonien. Cela signifie en particulier que, pour un fluide newtonien, la connaissance de la viscosité de cisaillement η permet de déterminer la viscosité élongationnelle η_e . La viscosité élongationnelle $\eta(\dot{\varepsilon})$ d'un fluide non-newtonien dépend, elle, du taux d'élongation $\dot{\varepsilon}$.

1.1.3 Glissement aux parois

En mécanique des fluides, on considère en général qu'une paroi qui se déplace à une vitesse v impose la même vitesse v à la couche de fluide qui lui est directement en contact : c'est la condition de glissement nulle (ou de non-glissement) aux parois (« no-slip boundary condition » en anglais). En particulier, la couche de fluide directement en contact avec une paroi immobile possède une vitesse nulle. Le glissement aux parois est le plus souvent indétectable pour des liquides composés de petites molécules comme l'eau [Larson, 1999], mais peut devenir important pour des fluides complexes comme par exemple la mousse, les gels ou les suspensions.

Lorsqu'il y a glissement aux parois (« wall slip » en anglais), le profil de vitesse présente une discontinuité près des parois des plaques entre lesquelles le fluide est cisailé [Coussot and Ancy, 1999b]. La figure 1.4 illustre ce phénomène.

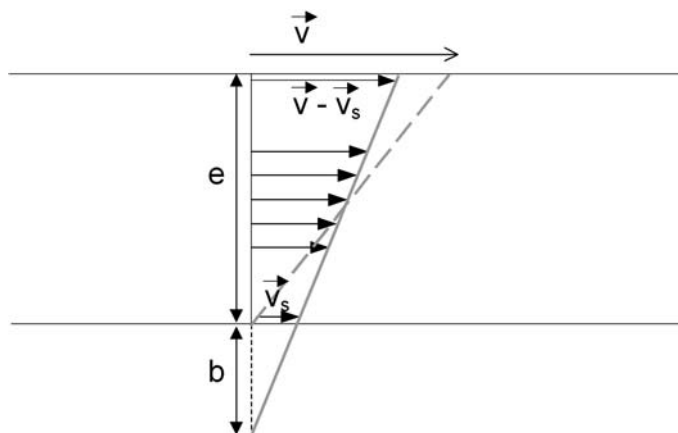


FIG. 1.4 – Glissement aux parois dans un écoulement de Couette plan.

En cas de glissement aux parois, on s'attend à ce que la vitesse de glissement (« slip velocity » en anglais) v_s dépende de la contrainte de cisaillement σ , mais pas de l'entrefer e . Or, dans un Couette plan, la contrainte σ est répartie uniformément sur tout l'entrefer e . Il en résulte que, pour une même contrainte σ et quel que soit l'entrefer e , il y a une discontinuité de la vitesse sur chacune des deux parois égale à v_s . À cause du glissement, le gradient de vitesse réel $\dot{\gamma}_{réel}$ (trait plein oblique sur la figure 1.4) est différent du gradient de vitesse apparent $\dot{\gamma}_{app}$ (trait tiret oblique) mesuré par le rhéomètre⁹. La vitesse v mesurée (ou imposée) par le rhéomètre vaut :

$$v = 2v_s + \dot{\gamma}_{réel} e .$$

D'où les gradients de vitesse réel $\dot{\gamma}_{réel}$ et apparent $\dot{\gamma}_{app}$:

$$\dot{\gamma}_{réel} = \frac{v - 2v_s}{e} \quad \text{et} \quad \dot{\gamma}_{app} = \frac{v}{e} = \dot{\gamma}_{réel} + \frac{2v_s}{e} .$$

⁹Le rhéomètre est l'appareil de mesure des grandeurs rhéologiques : viscosité, contraintes normales, etc.

Il est possible de détecter indirectement le glissement aux parois et de mesurer avec les relations que l'on vient d'établir la vitesse de glissement v_s . Pour une contrainte σ donnée, $\dot{\gamma}_{app}$ (et donc la viscosité mesurée) varie en fonction de l'entrefers e . En mesurant les gradients de vitesse apparents $\dot{\gamma}_{app1}$ et $\dot{\gamma}_{app2}$ pour deux entrefers différents e_1 et e_2 , on peut déterminer v_s :

$$\dot{\gamma}_{app1} - \dot{\gamma}_{app2} = 2 v_s \left(\frac{1}{e_1} - \frac{1}{e_2} \right),$$

$$\text{soit } v_s = \frac{1}{2} (\dot{\gamma}_{app1} - \dot{\gamma}_{app2}) \frac{e_1 e_2}{e_1 - e_2}.$$

1.2 Liquides non-newtoniens

Qu'est ce qu'un liquide non-newtonien ? Il convient préalablement, pour répondre à cette question, de définir précisément les caractéristiques d'un comportement newtonien. D'après Barnes *et al.*, un comportement newtonien est un comportement dans lequel, à température et pression constantes [Barnes *et al.*, 1989] :

- 1) la viscosité de cisaillement η est indépendante du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$;
- 2) pour un cisaillement simple, la seule contrainte générée est la contrainte de cisaillement σ , les différences de contraintes normales N_1 et N_2 étant nulles ;
- 3) la viscosité est constante en fonction du temps et la contrainte est nulle lorsque le cisaillement est arrêté ; si on reprend le cisaillement ultérieurement, la viscosité doit être la même que précédemment ;
- 4) les viscosités correspondantes aux différents types de déformations sont proportionnelles entre elles, et le rapport de proportionnalité est simple : par exemple la viscosité élongationnelle vaut 3 fois la viscosité de cisaillement.

Un fluide non-newtonien est par conséquent un fluide qui ne satisfait pas à une ou plusieurs de ces caractéristiques. Toutefois, des fluides non-newtoniens peuvent satisfaire à certaines de ces caractéristiques des fluides newtoniens sous certaines conditions (de taux de cisaillement, de temps de cisaillement, etc.). Ainsi, par exemple, si un fluide non-newtonien présente une viscosité de cisaillement η constante pour une certaine gamme de taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, on dira que ce fluide présente dans cette gamme un plateau newtonien sur la courbe de $\eta = f(\dot{\gamma})$.

L'allure de la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement) d'un fluide newtonien est montrée sur la figure 1.5. Cette courbe met en exergue la première propriété newtonienne suivant laquelle la viscosité η est la constante de proportionnalité entre la contrainte σ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$.

De nombreux matériaux tels que des solutions de polymères, des émulsions, des suspensions, présentent des propriétés non-newtoniennes. Nous allons étudier différentes catégories de fluides non-newtoniens suivant les caractéristiques qu'ils présentent.

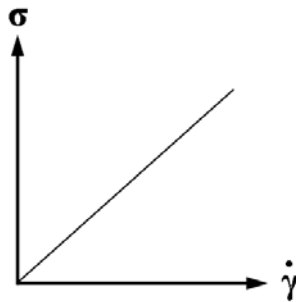


FIG. 1.5 – Courbe d'écoulement (courbe de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$) pour un fluide newtonien.

1.2.1 Les fluides dont la viscosité dépend du temps

Au cours du cisaillement, la structure interne du fluide, et par conséquent sa viscosité, peut évoluer. Nous étudions ici différentes caractéristiques d'un fluide dont la viscosité dépend du temps de cisaillement.

Les fluides thixotropes et anti-thixotropes

Les fluides thixotropes voient leur viscosité diminuer avec le temps lorsqu'ils sont soumis à un cisaillement constant ou à une contrainte constante. À l'arrêt du cisaillement, la viscosité augmente avec le temps, ce qui indique une réversibilité (au moins partielle) du phénomène [Mewis, 1979, Barnes, 1997]. Une évolution typique de la viscosité en fonction du temps pour un fluide thixotrope sous cisaillement est représenté sur la figure 1.6.

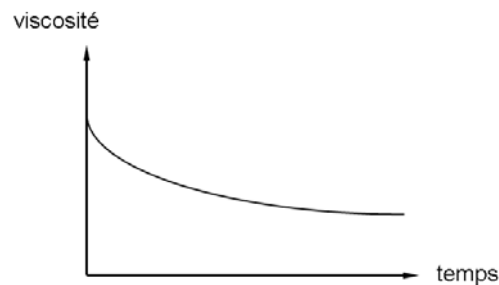


FIG. 1.6 – Évolution typique de la viscosité d'un fluide thixotrope en fonction du temps sous cisaillement. À $t = 0$, le fluide est au repos. Le fluide atteint un équilibre avec le temps et la viscosité est alors constante. Notons que la viscosité à $t = 0$ dépend du temps de repos du fluide avant l'expérience, de la préparation de l'échantillon et de la manière dont elle a été éventuellement versée dans le récipient du rhéomètre.

De très nombreux fluides sont thixotropes : peintures, encres, suspensions d'argile, boues de forage, crèmes cosmétiques ou pharmaceutiques, produits alimentaires (yahourts, sauce tomate concentrée par exemple), sang, solutions concentrées de polymères, etc.

Une interprétation est que la thixotropie reflète la destruction progressive, en fonction du temps et sous cisaillement, d'une microstructure interne du fluide. La microstructure

peut signifier par exemple, suivant le fluide étudié, des enchevêtrements d'amas de macromolécules pour les polymères, ou des configurations spatiales de particules pour les suspensions ou de gouttelettes pour des émulsions. La modification de cette microstructure résulte de la compétition entre les contraintes dues à l'écoulement qui détruisent la microstructure, et les collisions et le mouvement brownien qui amènent les éléments composant le fluide à se rencontrer et à reformer la microstructure [Barnes, 1997]. Lorsque la microstructure est détruite, la viscosité du fluide diminue ; on parle alors de « rajeunissement » (« rejuvenation » en anglais). Lorsque la microstructure se reforme, la viscosité augmente ; on parle alors de « vieillissement » (« aging » en anglais). Si le rajeunissement l'emporte sur le vieillissement, il y a thixotropie. La compétition entre rajeunissement et vieillissement est ainsi le mécanisme à l'origine de la bifurcation de viscosité [Coussot *et al.*, 2002a] (voir paragraphe sur les fluides à seuil). Un tel mécanisme est analogue à la dynamique des systèmes vitreux, et se retrouve pour de nombreux matériaux « mous » comme les mousses ou les gels [Cugliandolo *et al.*, 1997, Sollich *et al.*, 1997, Sollich, 1998, Fielding *et al.*, 2000, Bonn *et al.*, 2002, Abou *et al.*, 2003]. Les matériaux mous partagent deux propriétés à l'origine de leur dynamique vitreuse : le désordre structural et la métastabilité [Sollich *et al.*, 1997, Sollich, 1998, Fielding *et al.*, 2000].

Les fluides antithixotropes sont plus rarement rencontrés que les fluides thixotropes. Ce sont des fluides pour lesquels la viscosité augmente sous cisaillement et diminue à l'arrêt du cisaillement. Ceci arrive lorsque, le fluide étant au repos, le mouvement brownien détruit les regroupements des éléments du fluide qui se sont faiblement liés et éventuellement étendus spatialement sous cisaillement. Ainsi, pour un fluide antithixotrope, l'écoulement favorise la microstructure, alors que le repos la détruit. Une suspension d'oxyde ferrique dans de l'huile minérale ou une suspension de billes de verre de 4 μm dans du sirop de maïs sont des exemples de fluides antithixotropes [Barnes, 1997].

La viscoélasticité

Un solide ou un fluide viscoélastique présente des caractéristiques tantôt d'un solide, tantôt d'un liquide, selon le temps de sollicitation auquel le matériau est soumis. Les premières expériences quantitatives sur la viscoélasticité remontent à la fin du XIX^e siècle et ont porté sur des matériaux tels que le caoutchouc ou la fibre de verre. Sous cisaillement ou élongation, ces matériaux subissent une première déformation instantanée comme un solide élastique, puis continuent à se déformer de manière continue comme un liquide visqueux. À l'arrêt du cisaillement ou de l'élongation, le matériau reprend en partie sa forme initiale. Dans certains cas, le matériau trop sollicité peut se déformer jusqu'à la rupture.

Le Silly Putty (nom en anglais qu'on pourrait traduire par le « mastic fou ») est un exemple de matériau viscoélastique. Il s'agit d'un polymère à base de silicone qui s'étale comme un liquide au repos, et qui rebondit lorsqu'il est projeté sur le sol. Le Silly Putty peut également être brisé en plusieurs fragments en le frappant suffisamment fort avec un marteau ou sur une surface dure¹⁰. Lorsqu'un matériau viscoélastique est soumis à

¹⁰Le premier Silly Putty a été conçu par hasard en 1943 par James Wright, un ingénieur écossais

des sollicitations brèves (par exemple une variations rapide de contraintes, comme lors de l'impact du Silly Putty sur le sol), la configuration moléculaire – ou structure interne – du matériau n'a pas le temps de se réarranger et de s'adapter à ces changements. Le temps de relaxation du matériau (qui correspond à un réarrangement, à un retour à l'équilibre) est alors trop long par rapport à son temps de sollicitation, et le matériau se comporte plutôt comme un solide. Lorsque le réarrangement de la structure interne est plus rapide que le temps de sollicitation, le matériau se comporte comme un liquide.

Le rapport entre le temps de relaxation du matériau et le temps de sollicitation donne un nombre adimensionnel appelé nombre de Déborah¹¹ :

$$De = \frac{t_{relaxation}}{t_{sollicitation}}.$$

Pour $De \ll 1$, le matériau se comporte comme un liquide ; pour $De \gg 1$, le matériau se comporte comme un solide. Pour de l'eau, le temps de relaxation est de l'ordre de 10^{-12} s. Pour de l'huile lubrifiante, ce temps est de l'ordre de 10^{-6} s, et pour certains polymères ce temps peut atteindre plusieurs secondes.

Pour des écoulements stationnaires de liquide présentant des contraintes normales, le nombre de Déborah De est défini comme étant [Larson, 1999] :

$$De \equiv \tau \dot{\gamma},$$

où τ est homogène à un temps : il s'agit d'un temps de relaxation caractéristique du liquide viscoélastique et lié aux contraintes normales. $\dot{\gamma}$ est l'inverse d'un temps de sollicitation du matériau.¹² Pour $De \gtrsim 1$, les contraintes normales dominent sur les contraintes visqueuses, donnant lieu à des effets tels que le gonflement de jets ou l'effet Weissenberg. Le nombre de Déborah De peut donc être associé au rapport des contraintes normales sur les contraintes tangentielles visqueuses : $De = N_1/\sigma$.

Pour des valeurs de De supérieures à une valeur critique, les contraintes normales peuvent engendrer des instabilités viscoélastiques dans l'écoulement.

Dans une cellule de Couette, un liquide newtonien devient instable lorsque le nombre de Taylor Ta associé à l'écoulement est supérieur à un nombre de Taylor critique Ta_c

travaillant aux États-Unis, en mélangeant de l'acide borique à de l'huile de silicone dans un tube à essai. Si aucune application pratique ne semble avoir été trouvée à ce jour, le Silly Putty est commercialisé comme jouet depuis 1949 avec un grand succès. Source : <http://www.sillyputty.com>.

¹¹Nom donné par Marcus Reiner, un des fondateurs de la rhéologie, en référence à une prêtresse dans la Bible nommée Déborah. Celle-ci aurait déclaré que « même les montagnes coulèrent devant le Seigneur » [Reiner, 1964]. On trouve également très souvent en rhéologie, peut-être de manière abusive, l'aphorisme du philosophe grec Héraclite : « tout s'écoule ». Héraclite veut simplement exprimer poétiquement l'idée philosophique suivant laquelle les choses ne sont jamais immobiles. Si ces références sont à prendre au sens figuré et à replacer dans leur contexte, l'angle de vue scientifique, par association d'idées, est de dire que « tout » s'écoule si on attend suffisamment longtemps.

¹²Le produit $\tau \dot{\gamma}$ est également appelé nombre de Weissenberg, et est alors noté Wi . L'abréviation Wi est choisie afin d'éviter la confusion avec We , le nombre de Weber, rapport entre forces d'inertie et forces capillaires.

[Taylor, 1923, Guyon *et al.*, 2001]. Le nombre de Taylor, rapport entre les forces inertielles centrifuges et les forces visqueuses, est défini ainsi :

$$Ta = \frac{\rho^2 \omega^2 e^3 R_i}{\eta^2} = \frac{\rho^2 e^5 \dot{\gamma}^2}{R_i \eta^2}$$

où ρ est la masse volumique du liquide, ω est la vitesse angulaire du cylindre intérieur, e est la taille de l'entrefer, R_i le rayon du cylindre intérieur, et η la viscosité dynamique du liquide¹³. Pour une cellule de Couette typique dont le rapport d'aspect est 0,8, le nombre de Taylor critique Ta_c vaut 41,4. Les instabilités hydrodynamiques apparaissent alors, engendrant sur toute la hauteur du récipient des rouleaux horizontaux appelés rouleaux de Taylor.

Pour un liquide viscoélastique (polymères en solution par exemple), des rouleaux peuvent toutefois apparaître pour des valeurs faibles de Ta . Giesekus identifie ainsi pour un tel liquide une transition vers une instabilité dans une cellule de Couette pour un nombre de Reynolds Re de 10^{-2} , soit *a fortiori* pour un très faible nombre de Taylor [Giesekus, 1966, Muller *et al.*, 1989, Shaqfeh, 1996]. Cette instabilité n'est donc pas d'origine inertielle, mais élastique : au-delà d'une certaine vitesse de rotation, lorsque les contraintes normales sont plus importantes que les contraintes visqueuses, des rouleaux similaires à des rouleaux de Taylor apparaissent [Muller *et al.*, 1989, Larson *et al.*, 1989, Shaqfeh, 1996]. Par exemple, pour des rapports d'aspect de 0,8, l'instabilité élastique se produit lorsque le nombre de Deborah De est supérieur à un nombre de Deborah critique $De_c = 21$ [Larson *et al.*, 1989].

1.2.2 Les fluides dont la viscosité dépend du taux de cisaillement

Une variation du cisaillement peut entraîner une variation de la viscosité du fluide. Les fluides peuvent être ainsi classés suivant la relation entre leur viscosité et leur taux de cisaillement.

Les fluides rhéofluidifiants

Un fluide rhéofluidifiant (« shear-thinning fluid » en anglais) voit sa viscosité diminuer lorsque le taux de cisaillement augmente. C'est le cas de la grande majorité des fluides : sang, shampoing, jus de fruit concentré, encres d'imprimerie, solutions de polymères de masse moléculaire élevée, suspensions de particules solides, etc. Dans les solutions de polymères, on interprète cette diminution de viscosité par la séparation puis l'alignement progressif de macromolécules enchevêtrées pendant l'écoulement. Dans les suspensions, la diminution de viscosité provient de la destruction des structures de particules solides qui se sont formées (comme dans les peintures), et également, si les particules ne sont pas sphériques, de l'orientation de ces particules dans le sens de l'écoulement. Dans les

¹³Le lien entre le nombre de Reynolds Re est le suivant : $Ta = Re^2 \frac{e}{R_i}$. Notons qu'on trouve dans la littérature d'autres définitions du nombre de Taylor.

émulsions, ce sont les gouttelettes sphériques qui se déforment et deviennent elliptiques (par exemple lors de la production industrielle de margarine).

L'allure de la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement) d'un fluide rhéofluidifiant est montrée sur la figure 1.7.

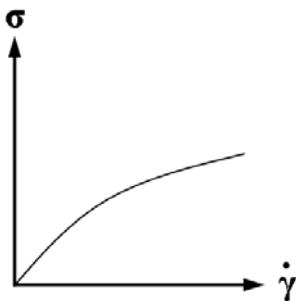


FIG. 1.7 – Courbe d'écoulement (courbe de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$) pour un fluide rhéofluidifiant.

De nombreux modèles ont été élaborés pour rendre compte de l'écoulement rhéofluidifiant d'un fluide, donnant autant de modèles phénoménologiques pour la viscosité. On peut donner à titre d'exemple les modèles, couramment utilisés en rhéologie, de Cross et de Carreau :

$$\frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{1 + K \dot{\gamma}^n}, \quad \text{qui peut s'écrire} \quad \frac{\eta_0 - \eta}{\eta - \eta_\infty} = K \dot{\gamma}^n \quad \text{modèle de Cross},$$

$$\text{et} \quad \frac{\eta - \eta_\infty}{\eta_0 - \eta_\infty} = \frac{1}{(1 + K^2 \dot{\gamma}^2)^n} \quad \text{modèle de Carreau},$$

K étant une constante. Ces modèles tiennent compte des viscosités à bas taux de cisaillement η_0 , et à haut taux de cisaillement η_∞ . Dans le cas où $\eta_0 \gg \eta \gg \eta_\infty$, la loi de Cross se simplifie en loi de puissance :

$$\eta = \eta_0 (K \dot{\gamma})^{-n},$$

ou encore :

$$\eta = m \dot{\gamma}^{-n},$$

avec $m = \eta_0 K^{-n}$. n est positif pour un fluide rhéofluidifiant, négatif pour un fluide rhéoépaississant (voir paragraphe suivant), et nul pour un fluide newtonien.

Les fluides rhéoépaississants

Un fluide rhéoépaississant (« shear-thickening fluid » en anglais) voit sa viscosité augmenter avec le taux de cisaillement. Dans la vie quotidienne, le rhéoépaississement est beaucoup plus rarement observé que la rhéofluidification. Barnes, au vu d'un recensement bibliographique de divers suspensions rhéoépaississantes, suggère toutefois que toutes les

suspensions de particules présentent du rhéoépaississement dans les conditions adéquates [Barnes, 1989]. Barnes répertorie par exemple la présence de rhéoépaississement dans des suspensions de particules micrométriques d'argile, de craie, de quartz, ou de cellules du sang dans du plasma. Parmi les fluides courants qui présente de manière flagrante le rhéoépaississement, on peut citer les suspensions concentrées d'amidon de maïs qui présentent effectivement cette propriété [Barnes, 1989]. Le rhéoépaississement est également observé pour certaines solutions de polymères ou de surfactants. Dans les procédés industriels, le rhéoépaississement peut être un inconvénient et créer des dommages matériels (sur les pales, voire sur le moteur de mélangeur) ou rendre inhomogènes des fluides de revêtement [Barnes, 1989]. Quelques applications du rhéoépaississement sont à l'étude, en particulier en tant qu'absorbeur de choc, par exemple pour des chaussures de sport [Barnes, 1989] ou des gilets pare-balles [Lee *et al.*, 2003].

Notons qu'un fluide peut être rhéoépaississant pour une certaine gamme de taux de cisaillement, et rhéofluidifiant voire newtonien pour d'autres gammes [Barnes, 1989, Larson, 1999, Fermigier, 2004]. La figure 1.8 représente schématiquement l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour une suspension rhéoépaississante de particules, suivant la fraction volumique des particules.

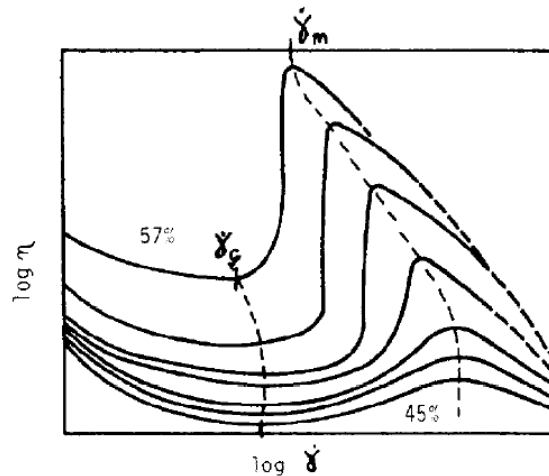


FIG. 1.8 – Allure de l'évolution de la viscosité η en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ pour une suspension rhéoépaississante de particules, suivant la fraction volumique des particules (de 45 à 57%). Les échelles sont logarithmiques. $\dot{\gamma}_c$ est le taux de cisaillement critique au-delà duquel la viscosité commence à augmenter ; $\dot{\gamma}_m$ marque la fin de l'augmentation de la viscosité [Barnes, 1989].

L'allure de la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement) d'un fluide rhéoépaississant est montrée sur la figure 1.9.

Dans un modèle en loi de puissance d'équation $\eta = m \dot{\gamma}^{-n}$, un fluide rhéoépaississant possède un exposant n négatif.

Historiquement, le rhéoépaississement a été expliqué par le phénomène de dilatance : sous cisaillement, l'espace entre particules augmentent. L'expérience de Reynolds en 1885 met en évidence la dilatance : on sature d'eau un ballon en caoutchouc rempli de sable ; un

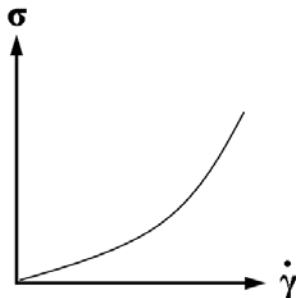


FIG. 1.9 – Courbe d’écoulement (courbe de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$) pour un fluide rhéoépaississant.

fin tuyau dépassant du ballon sert de témoin de la quantité d’eau présente. En déformant le ballon, on s’aperçoit que le niveau d’eau dans le tuyau d’eau diminue : l’espace entre les grains de sable augmentant, l’eau comble les interstices laissés par les grains. C’est ce même phénomène qui est à l’origine des traces de pas sèches qui apparaissent sur du sable mouillé au bord de la mer.

Toutefois, Metzner *et al.* ont montré qu’il y avait pas de corrélation systématique entre rhéoépaississement et dilatance [Metzner and Whitlock, 1958]. Dans leurs expériences avec des suspensions colloïdales concentrées de TiO_2 dans une géométrie de Couette cylindrique, ils ont observé visuellement un assèchement à la surface du fluide pendant l’écoulement, ce qui est interprété comme de la dilatance. Mais cet assèchement intervient à des cisaillements bien inférieurs au seuil de rhéoépaississement. Les deux phénomènes étant décorrélés, il convient donc de bien en faire la distinction.

Hoffman a suggéré que le rhéoépaississement résultait d’une transition d’un état ordonné à un état désordonné (transition ordre-désordre) dans lequel les interactions chaotiques entre particules étaient responsables d’une dissipation supplémentaire d’énergie [Hoffmann, 1972]. Depuis, plusieurs études [Chow and Zobowski, 1995, Bender and Wagner, 1996, Maranzano and Wagner, 2002] ont montré qu’un état ordonné n’était pas forcément observé avant le début du rhéoépaississement, et donc qu’un tel état n’était pas nécessaire au rhéoépaississement.

On pense actuellement que le rhéoépaississement est dû à la formation temporaire d’agrégats de particules sous cisaillement (« cluster », c’est-à-dire amas, en anglais). Plusieurs études expérimentales suggèrent la formation de telles structures, études utilisant des techniques différentes comme le dichroïsme¹⁴, la diffusion de neutron aux petits angles¹⁵ [Bender and Wagner, 1996, Maranzano and Wagner, 2002, Laun *et al.*, 1997, Newstein *et al.*, 1999], ou la relaxation de contrainte à un échelon de cisaillement [Brien and Mackay, 2000]. Des simulations dynamiques stoke-

¹⁴Le dichroïsme est l’atténuation de la lumière pour une longueur d’onde donnée dans un matériau anisotrope [Macosko, 1994, D’Haene *et al.*, 1993, Bender and Wagner, 1995]. L’atténuation peut être reliée à la structure du matériau [Macosko, 1994, Fuller, 1995].

¹⁵« Small-angle neutron scattering (SANS) » en anglais. Cf. [Macosko, 1994, Larson, 1999] pour une introduction à cette technique.

siennes¹⁶ [Brady and Bossis, 1988b, Melrose *et al.*, 1996, Brady, 1996] et des analyses théoriques de la microstructure en écoulement [Brady and Morris, 1997, Farr *et al.*, 1997, Bergholtz *et al.*, 2002] confortent cette interprétation.

S'il semble que le rhéoépaississement implique toujours la formation d'amas de particules, les conditions d'apparition de ces amas peuvent différer grandement suivant le type de suspensions, ceci en fonction de la nature des potentiels d'interactions répulsives entre particules [Larson, 1999].

Les fluides à seuil

Un fluide à seuil est un fluide qui ne s'écoule que lorsque la contrainte σ qui lui est appliquée dépasse un certain seuil, appelée contrainte critique σ_c . Pour $\sigma < \sigma_c$, le fluide ne s'écoule pas et sa viscosité est infinie; pour $\sigma \geq \sigma_c$, le fluide s'écoule et sa viscosité est finie [Mewis, 1979, Barnes *et al.*, 1989, Nguyen and Boger, 1992, Barnes, 1999, Barnes, 1997, Møller *et al.*, 2006]. C'est le cas des suspensions concentrées de particules, de certaines solutions concentrées de polymères, des mousses, ou encore des argiles (bentonite ou laponite par exemple) [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b, Baudez and Coussot, 2004, Coussot *et al.*, 2005]. Les exemples pratiques sont nombreux : la dentifrice ou la mousse à raser, le ciment frais, les peintures, les boues de forage, etc., sont des fluides à seuil. Toutefois, il y a eu ces dernières décennies un débat à propos du seuil d'écoulement, tant ce dernier est difficile à mesurer expérimentalement [Møller *et al.*, 2006].

Les fluides à seuil, pâtes et granulaires secs, sont des systèmes « bloqués » (« jammed » en anglais) qui peuvent se débloquer sous certaines conditions. Le blocage est une propriété partagée par un grand nombre de matériaux complexes outre les systèmes granulaires, comme les mousses, les gels ou les verres. Un diagramme de phase, proposé par Nagel et Liu pour les systèmes bloqués, exprime la ressemblance du comportement rhéologique de ces systèmes : pas d'écoulement à l'état bloqué ou écoulement à l'état débloqué suivant les paramètres que sont la contrainte appliquée, la température effective et la densité des particules (voir fig. 1.10, à gauche) [Liu and Nagel, 1998]. Trappe *et al.* ont testé expérimentalement avec succès la pertinence de ce diagramme pour des systèmes colloïdaux attractifs, bien que la forme de la courbe expérimentale soit concave plutôt que convexe (voir fig. 1.10, à droite) [Trappe *et al.*, 2001, Robertson and Wang, 2005].

Quel est le comportement rhéologique d'un fluide à seuil ? L'allure de la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement) d'un fluide à seuil est montrée sur la figure 1.11. À taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ nul, la contrainte σ n'est pas nulle.

¹⁶La simulation dynamique stokesienne, ou « Stokesian dynamics » en anglais, est une simulation dynamique du comportement des particules, en interaction hydrodynamique, dans un fluide interstitiel. Dans cette description introduite par Brady et Bossis, les forces hydrodynamiques sont gouvernées, à faible nombre de Reynolds, par les équations linéarisées de Navier-Stokes (équations parfois alors appelées sous ces conditions équations de Stokes, d'où le nom de la simulation) [Brady and Bossis, 1988a].

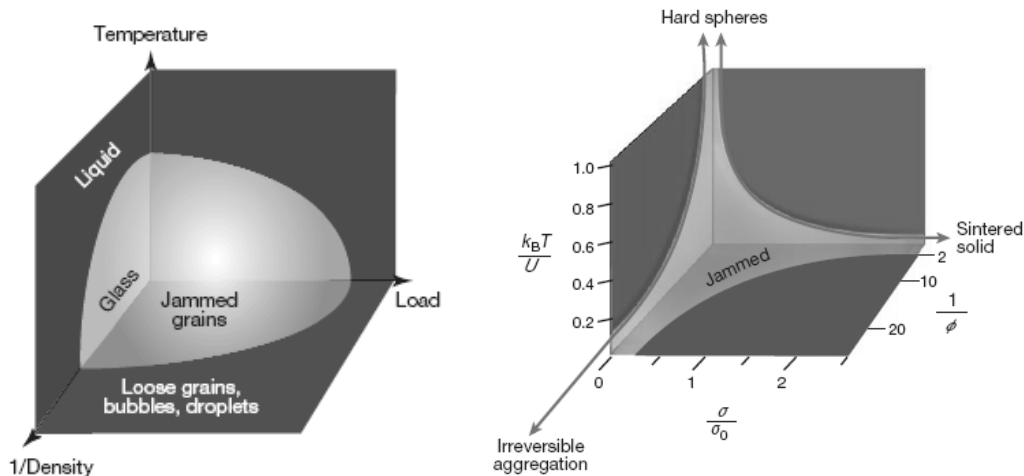


FIG. 1.10 – Diagramme de phase pour les systèmes bloqués. À gauche, le diagramme propos par Nagel et Liu [Liu and Nagel, 1998]. À droite, le diagramme proposé par Trappe *et al.* pour des systèmes colloïdaux attractifs [Trappe *et al.*, 2001].

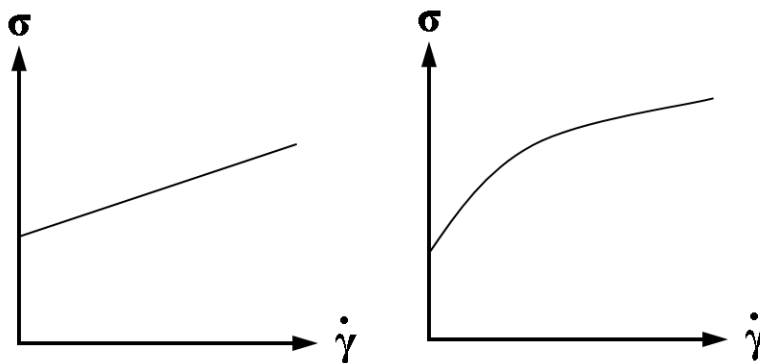


FIG. 1.11 – Courbes d'écoulement (courbe de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$) pour un fluide à seuil idéal linéaire (dit « de Bingham ») (à gauche) et pour un fluide à seuil rhéofluidifiant (à droite).

Il existe plusieurs modèles décrivant le comportement rhéologique d'un fluide à seuil. Le plus simple est le modèle de Bingham [Guyon *et al.*, 2001] (le fluide correspondant est appelée « fluide de Bingham »), dont l'équation constitutive est la suivante :

$$\sigma = \sigma_c + m \dot{\gamma},$$

σ_c étant la contrainte critique, et m une constante. Un fluide satisfaisant à cette relation constitutive présente ainsi une évolution linéaire de la contrainte en fonction du taux de cisaillement une fois la contrainte critique dépassée. Un tel modèle demeure toutefois

théorique, la relation constitutive d'un fluide réel étant plus proche d'un modèle en loi de puissance.

Pour un fluide à seuil rhéofluidifiant, on peut utiliser un modèle de loi de puissance en ajoutant un terme correspondant à la contrainte critique σ_c :

$$\begin{aligned}\sigma &= \sigma_c + m \dot{\gamma}^n & \text{pour } \sigma > \sigma_c, \\ \dot{\gamma} &= 0 & \text{pour } \sigma \leq \sigma_c.\end{aligned}$$

Ce modèle en loi de puissance est appelé modèle de Herschel-Bulkley [Guyon *et al.*, 2001]. Un fluide dont la relation constitutive vérifie cette loi est parfois appelée fluide de Casson. Les argiles tels que la bentonite ou la laponite sont de bons exemples de fluides à seuil rhéofluidifiants.

Malgré une définition simple de la contrainte critique – contrainte à partir de laquelle un fluide s'écoule –, sa mesure expérimentale est délicate. En particulier, mesurer une viscosité infinie demanderait un temps d'expérience infinie, ce qui est inenvisageable. On prend donc en pratique un temps d'expérience suffisamment long et significatif, et c'est sur ce temps que l'on regarde s'il y a écoulement ou non.

Par ailleurs, la mesure de la contrainte critique dépend beaucoup des conditions expérimentales. Cette difficulté est à l'origine du débat sur le seuil d'écoulement. L'histoire de l'échantillon, c'est-à-dire les différents cisaillements et temps de repos qu'a subis le fluide avant la mesure, joue un rôle particulièrement crucial dans la variation de la valeur de σ_c [Nguyen and Boger, 1992, Coussot *et al.*, 2002b, Barnes, 1999, James *et al.*, 1987]. Il faut donc être vigilant quant au protocole expérimental afin de s'assurer de la reproductibilité des expériences. En pratique, on précisaille vigoureusement l'échantillon pendant un certain temps pour obtenir un état initial du fluide identique avant chaque mesure.

Lorsqu'un fluide à seuil s'écoule, on observe en général une diminution de la viscosité mesurée au cours du temps (thixotropie) : on parle alors de « rajeunissement ». Par contre, si la viscosité mesurée augmente avec le temps et diverge, on parle alors de « vieillissement » : cela survient lorsque, après le précisaillement, la contrainte appliquée est inférieure à la contrainte seuil d'écoulement. De même, une mesure rhéologique effectuée après un temps de repos du fluide peut montrer une augmentation de la viscosité par rapport à la viscosité mesurée juste avant le repos : il y a donc, dans ce cas, vieillissement du fluide pendant le repos.

Le comportement mécanique d'un fluide à seuil résulte donc de la compétition entre un vieillissement et un rajeunissement sous cisaillement. Ceci est illustré par une expérience d'avalanche sur plan incliné (voir fig. 1.12) [Coussot *et al.*, 2002a]. On pose un tas d'argile au sommet d'un plan incliné. Fixer la pente du plan incliné revient à fixer la contrainte appliquée sur le fluide ; si le plan est suffisamment incliné, l'argile cède sous son propre poids et s'écoule (le rajeunissement l'emporte alors sur le vieillissement). Cela diminue sa viscosité, et donc augmente le taux de cisaillement, ce qui facilite d'autant la destruction de sa structure. La viscosité diminue alors davantage, et ainsi de suite : il y a un effet d'avalanche. Par ailleurs, il faut remarquer que l'effet d'avalanche est

une conséquence directe du changement de structure du fluide au cours du cisaillement (ce qui donne lieu au vieillissement ou au rajeunissement), donc de la thixotropie. Il apparaît que la thixotropie et le seuil d'écoulement sont donc intimement liés, le seuil d'écoulement étant franchi lors d'une destruction pendant le cisaillement de la structure du fluide, entraînant la thixotropie.

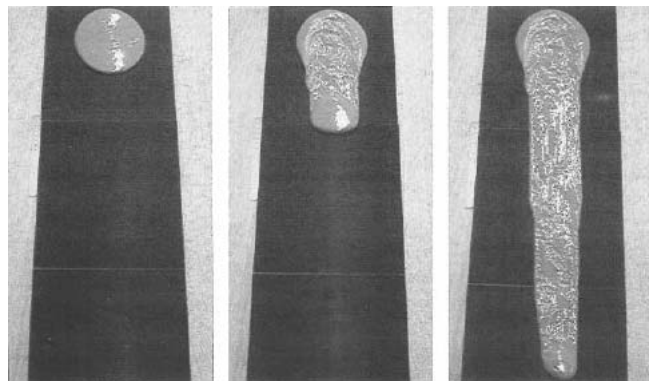


FIG. 1.12 – Avalanche d'une suspension d'argile sur un plan incliné recouvert de papier de verre. La suspension est précisillée et posée sur le plan au départ sans inclinaison, puis laissé au repos pendant une heure. Les images sont prises pour une inclinaison du plan correspondant à l'angle critique pour lequel l'écoulement est effectif [Coussot *et al.*, 2002a].

L'effet d'avalanche sur un plan incliné montre qu'il existe deux comportements rhéologiques très différents du fluide : soumis à une contrainte donnée (due à l'inclinaison du plan), le fluide soit reste en place, soit s'écoule rapidement. On parle alors de bifurcation dans le comportement rhéologique.

Des expériences de rhéométrie sur différents systèmes montrent que pour $\sigma < \sigma_c$, la viscosité du fluide ne cesse d'augmenter au cours du temps (à l'état stationnaire la viscosité diverge vers l'infini), alors que pour $\sigma > \sigma_c$, la viscosité du fluide atteint une valeur finie (voir fig. 1.13). La compétition entre vieillissement et rajeunissement sous cisaillement d'un fluide à seuil met donc en exergue ce qu'on appelle une bifurcation de la viscosité du fluide [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b, da Cruz *et al.*, 2002].

Ainsi, lorsque la contrainte σ dépasse la contrainte critique σ_c , la viscosité à l'état stationnaire passe abruptement de l'infini à une valeur finie et basse. Ceci est en contradiction avec le modèle du fluide à seuil parfait : suivant ce modèle, lorsque σ dépasse σ_c , il est possible à l'état stationnaire d'obtenir n'importe quelle valeur du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ en s'approchant autant que l'on veut de σ_c [Bird *et al.*, 1982]. La courbe de la viscosité en fonction du temps pour un fluide à seuil idéal ne correspond donc pas à la courbe pour un fluide à seuil réel : la courbe pour un fluide à seuil idéal diverge lorsque σ diminue et se rapproche de σ_c (voir fig. 1.14(a)) [Coussot *et al.*, 2002a]. Pour un fluide réel, la viscosité η possède une valeur finie lorsque la contrainte appliquée vaut σ_c . La courbe d'écoulement $\sigma = \eta(\dot{\gamma})$ pour un fluide à seuil idéal est donc également différente de la courbe d'écoulement pour un fluide à seuil réel : il existe une région du taux de cisaillement inaccessible

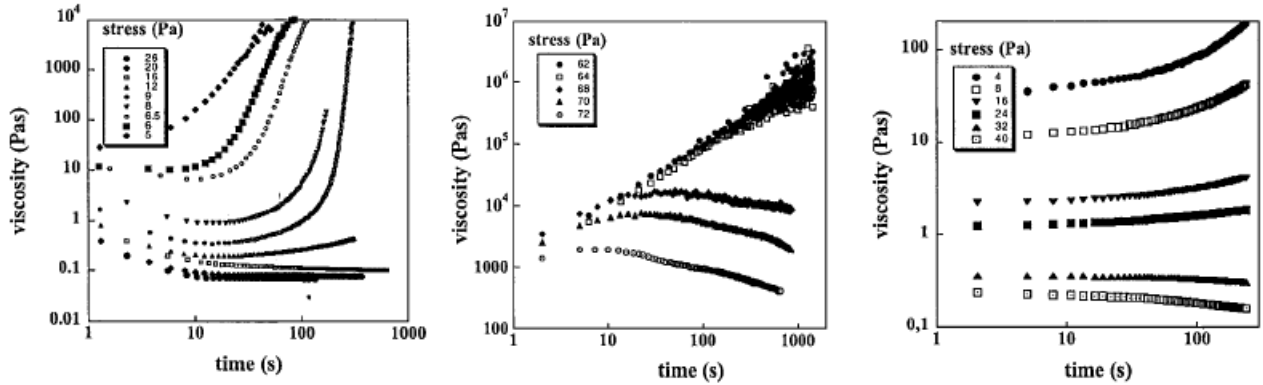
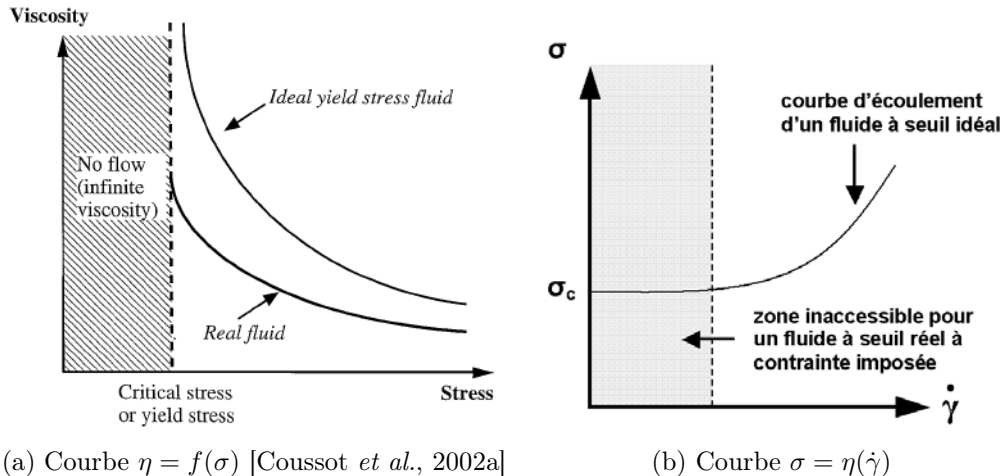


FIG. 1.13 – Mise en évidence de la bifurcation de viscosité sur des courbes de la viscosité en fonction du temps pour différents systèmes. De gauche à droite : suspension argileuse (bentonite dans de l'eau), gel de polymères (gel pour cheveux), verre colloïdal (laponite dans de l'eau) [Coussot *et al.*, 2002a].

à contrainte imposée pour un fluide à seuil réel (voir fig. 1.14(b)). Cela signifie concrètement qu'à la contrainte critique σ_c , le fluide s'écoule à un taux de cisaillement donné $\dot{\gamma}_c$. Il n'est pas possible d'obtenir un taux de cisaillement aussi petit que l'on veut à contrainte imposée pour un fluide à seuil.



(a) Courbe $\eta = f(\sigma)$ [Coussot *et al.*, 2002a]

(b) Courbe $\sigma = \eta(\dot{\gamma})$

FIG. 1.14 – Courbes de la viscosité η en fonction du temps t (à gauche) [Coussot *et al.*, 2002a] et de la contrainte σ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (courbe d'écoulement) pour des fluides à seuil réel et idéal.

La bifurcation dans le comportement rhéologique d'un fluide à seuil est bien mise en évidence dans l'expérience du plan incliné : soit le fluide ne s'écoule pas, soit il s'écoule à une certaine vitesse critique pour une inclinaison minimale critique d'écoulement. Il est impossible de faire s'écouler le fluide à une vitesse intermédiaire entre zéro et la vitesse critique.

Une expérience sur plan incliné avec des granulaires secs montre des résultats similaires [McDonald and Anderson, 1996], ce qui indique une origine commune aux avalanches, et par conséquent à la bifurcation de viscosité : une transition d'un état « bloqué » à un état « débloqué ».

Un modèle simple permet de rendre compte du comportement des fluides à seuil réels [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b]. L'idée est d'introduire un paramètre de structure du matériau λ qui caractérise le « degré de blocage » de la microstructure, qu'on peut relier au nombre d'interconnexions entre les différents éléments (par exemple particules) de la microstructure. Pour un gel colloïdal comme la bentonite, on peut considérer λ comme étant une mesure du nombre de connections par unité de volume. Pour un fluide à seuil réel, si le paramètre λ augmente, la viscosité η augmente également. Par ailleurs, un vieillissement du système correspond à une augmentation de λ , et lors d'un rajeunissement, λ diminue jusqu'à une valeur stationnaire à des forts taux de cisaillement.

Le modèle le plus simple correspondant à un fluide à seuil réel est décrit par l'équation différentielle en λ suivante [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b, Møller *et al.*, 2006] :

$$\frac{d\lambda}{dt} = \frac{1}{\tau} - \alpha\lambda\dot{\gamma},$$

à laquelle on adjoint une équation reliant l'écoulement et la structure du matériau, en pratique ici une équation reliant la viscosité η et le paramètre de structure λ :

$$\eta = \eta_0 (1 + \lambda^n).$$

Cette équation est en loi de puissance, mais d'autres modèles sont envisageables. τ est un temps caractéristique de vieillissement du matériau ; ce temps caractérise donc l'évolution de la structure. $1/\tau$ est le taux d'augmentation de λ en fonction du temps. η_0 est la viscosité à la limite des forts taux de cisaillement. α et n sont des paramètres spécifiques à un matériau donné.

Étudions la solution de l'équation différentielle à l'état stationnaire. On a alors, avec λ_s le paramètre de structure à l'état stationnaire :

$$\frac{d\lambda}{dt} = 0 \Rightarrow \frac{1}{\tau} = \alpha\lambda_s\dot{\gamma} \Rightarrow \lambda_s = \frac{1}{\alpha\tau\dot{\gamma}}.$$

D'où la viscosité η_s et la contrainte σ_s à l'état stationnaire :

$$\eta = \eta_0 (1 + (\alpha\tau\dot{\gamma})^{-n})$$

$$\text{soit } \sigma_s = \dot{\gamma}\eta_0 (1 + (\alpha\tau\dot{\gamma})^{-n}).$$

On obtient deux cas limites :

- à fort taux de cisaillement (destruction totale de la structure, ou rôle négligeable des interactions entre les différents éléments du matériau), l'équation précédente devient $\sigma_0 = \eta_0\dot{\gamma}$: le fluide se comporte comme un fluide newtonien ;

- à faible taux de cisaillement, l'équation devient $\sigma_0 \propto \dot{\gamma}^{1-n}$.

Deux cas de figures apparaissent à bas taux de cisaillement. Si $0 < n < 1$, le tracé de la courbe montre que le fluide est rhéofluidifiant et ne présente pas de contrainte critique. Si $n > 1$, la courbe d'écoulement présente une partie à pente négative (voir fig 1.15). L'écoulement n'est pas stable sur cette partie de la courbe, même s'il est stationnaire (indépendant du temps)¹⁷.

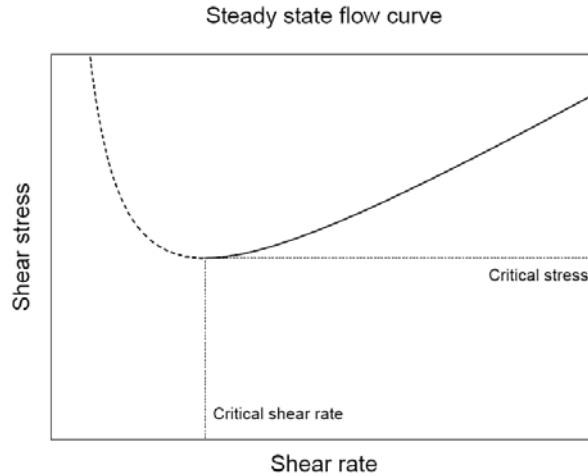


FIG. 1.15 – Courbe d'écoulement à l'état stationnaire pour $n = 2$ [Møller *et al.*, 2006]. La partie de la courbe à gauche du taux de cisaillement critique (« critical shear rate » en anglais) est tracée en pointillé : elle correspond à un écoulement instable et est donc difficile à obtenir expérimentalement.

Quelle condition sur le taux de cisaillement est imposée par l'existence d'un écoulement instable ? Un écoulement instable implique, outre $n > 1$:

$$\frac{d\sigma_s}{d\dot{\gamma}} < 0,$$

d'où, la condition sur $\dot{\gamma}$ (qui définit une valeur critique $\dot{\gamma}_c$) :

$$\dot{\gamma}_c = \frac{1}{\alpha\tau [\beta(n-1)]^n}.$$

En résolvant l'équation différentielle en λ dépendant du temps, le modèle prédit la bifurcation de viscosité [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b]. Les courbes de la viscosité en fonction du temps, correspondant aux solutions de l'équation différentielle, peuvent être tracées à partir du modèle pour plusieurs contraintes appliquées (voir fig. 1.16). Les courbes issues du modèle ressemblent fortement aux courbes expérimentales (voir fig. 1.13).

¹⁷Il s'agit d'un système à l'état stationnaire en équilibre instable. L'image classique est un système qui passe d'un maximum (équilibre instable) à un minimum de potentiel (équilibre stable).

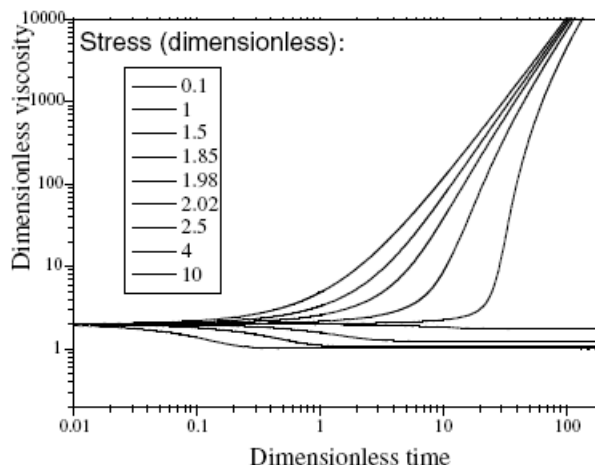


FIG. 1.16 – Viscosité en fonction du temps correspondant aux solutions de l'équation différentielle en λ du modèle, pour différentes contraintes appliquées [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b].

D'après le modèle, si la contrainte appliquée σ est inférieure à la contrainte critique σ_c , le système évolue de telle sorte que la viscosité du fluide diverge avec le temps. Si la contrainte appliquée σ est à peine supérieure à la contrainte critique σ_c , la viscosité ne diverge pas avec le temps mais atteint une valeur finie et basse. La viscosité passe donc directement de l'infini à une valeur finie pour des états stables, ce qui est vérifié expérimentalement [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b, Møller *et al.*, 2006].

1.3 Rhéologie des pâtes granulaires

Nous définirons les pâtes granulaires comme des suspensions concentrées de particules composées uniquement d'une phase liquide et solide. On parle souvent également de boue (« slurry » en anglais) pour de tels systèmes [Herminghaus, 2005, Mitarai and Nori, 2006].

Les granulaires mouillés regroupent plus généralement des suspensions dont une des phases est liquide. Il peut s'agir donc de systèmes biphasiques (par exemples eau-billes) ou triphasiques (par exemple eau-billes-air). Dans les systèmes triphasiques, la présence de bulles d'air peut modifier grandement les propriétés rhéologiques du milieu par l'intermédiaire des forces capillaires qui interviennent en son sein. Ainsi, ce sont ces forces cohésives qui permettent la construction de châteaux de sable [Hornbaker *et al.*, 1997, Halsey and Levine, 1998, Nowak *et al.*, 2005]. Dans le cadre de cette thèse, nous n'étudierons uniquement que les granulaires mouillés composés d'une phase liquide (le fluide interstitiel) et d'une phase solide (les grains).

1.3.1 Fraction volumique d'un empilement de grains

Un paramètre important caractérise un empilement de grains en général : il s'agit de la fraction volumique solide ϕ . La fraction volumique solide ϕ est le rapport entre le

volume des grains (par exemple, nombre de grains multiplié par le volume d'un grain si les grains sont identiques) et le volume occupé par l'empilement (volume du récipient, du tas de sable, etc.) La fraction volumique influe énormément sur la rhéologie du fluide ; sa connaissance pour la prédiction de l'écoulement est donc cruciale.

La fraction volumique ϕ dépend de la disposition des grains, et par conséquent de la manière dont l'empilement a été fabriqué. Suivant la disposition des grains, l'empilement est plus ou moins dense, et donc la fraction volumique ϕ est plus ou moins élevée. En soumettant l'empilement à des sollicitations, on peut faire évoluer la configuration des grains d'un état à un autre.

Pour un empilement stable de grains secs sphériques, monodisperses et indéformables soumis à la seule gravité, la fraction volumique ϕ varie habituellement entre 0,56 et 0,74, suivant le procédé de fabrication de l'empilement [Weitz, 2004].

Une fraction volumique ϕ_{rlp} de 0,56 correspond à l'empilement aléatoire¹⁸ le plus lâche (« random loose packing » en anglais) qu'il est possible de réaliser avec des grains [Onoda and Liniger, 1990]. L'empilement aléatoire compact maximal (« random close packing » en anglais) ϕ_{rcp} est de 0,64 [Scott, 1962, Scott and Kilgour, 1969].

Toutefois, récemment, Lohse *et al.* ont réalisé un empilement de grains de sable fin (40 μm de diamètre moyen) de fraction volumique ϕ de 0,41 en faisant s'écouler de l'air à travers les grains de façon à dilater au maximum ϕ . Cette fraction volumique de 0,41 est à comparer avec la valeur usuelle de la fraction volumique aléatoire $\phi = 0,55 - 0,60$ obtenue sans ce nouveau procédé. L'empilement obtenu, très lâche, ne peut supporter aucun poids à sa surface : c'est ce que Lohse *et al.* appellent un sable mouvant sec [Lohse *et al.*, 2004].

L'empilement le plus dense de grains secs sphériques et monodisperses ($\phi \approx 0,74$) correspond à un arrangement cristallin compact des grains du type cubique à faces centrées ou hexagonal¹⁹ [Hales, 2005]. Cette configuration peut être obtenue en plaçant les billes une à une dans l'empilement.

Notons qu'en soumettant un empilement de grains secs à des sollicitations mécaniques, on peut faire évoluer la configuration des grains. Ainsi, un matériau granulaire sec soumis à des vibrations verticales voit sa fraction volumique augmenter et se rapprocher de son empilement maximum aléatoire ϕ_{rcp} [Philippe and Bideau, 2003]. Soumis à des vibra-

¹⁸Sans placer les billes individuellement ni contrôler leur emplacement.

¹⁹L'astronome et physicien allemand Kepler conjecture en 1611 que l'empilement le plus dense de sphères identiques est l'empilement cubique à faces centrées ou hexagonal, pour lesquels la fraction volumique ϕ vaut $\frac{\pi}{3} \frac{\sqrt{2}}{2} \approx 0,74048$ [Kepler, 1611]. Il s'agit de l'empilement utilisé quotidiennement par les marchand de fruits sur leurs étalages pour la disposition des oranges. Kepler s'intéresse au problème d'empilement de densité maximale des sphères suite à des discussions avec le mathématicien anglais Thomas Harriot. Ce dernier s'est vu confier la tâche de calculer le nombre de boulets de canon dans un tas par le navigateur anglais Sir Walter Raleigh, et écrivit à Kepler par la suite. Kepler dédie son recueil [Kepler, 1611] contenant ses réflexions sur le sujet à son ami, allié et protecteur à la cour, Johannes Matthäus Wackher von Wackenfels. La conjecture de Kepler, qui forme une partie du 18^{ème} des 23 grands problèmes mathématiques du XX^e siècle formulés par le mathématicien allemand David Hilbert, est finalement démontrée en 1998 par le mathématicien américain Thomas Hales [Cipra, 1998, Hales, 2005]. La vérification formelle de la démonstration n'est toutefois pas achevée, les douze correcteurs n'ayant pu résoudre quelques difficultés. La vérification se prolonge dans le cadre du projet « Flyspeck », initié par Hales lui-même, et pourrait durer une vingtaine d'années [Szpiro, 2003].

tions horizontales, le matériau granulaire s'arrange dans une configuration cristalline pour laquelle $\phi > \phi_{rcp}$ [Pouliquen *et al.*, 1997].

Pour une suspension, on parle de fraction volumique solide pour le rapport entre le volume des grains et le volume occupé par la suspension. Il est possible pour une suspension de fixer la fraction volumique de sphères dures entre 0 et 0,74, mais la fraction volumique globale ne change pas par la suite, les grains restant confinés dans le fluide interstitiel (qui délimite le contour de la suspension).

Enfin, précisons que si les grains sont polydispersés, déformables ou de forme irrégulière, la fraction volumique ϕ peut être plus grande que 0,74.

1.3.2 Viscosité d'une suspension de sphères dures

L'ajout de sphères dures dans un fluide modifie le champ de vitesse d'un écoulement et occasionne ainsi une dissipation d'énergie supplémentaire. Ceci a pour conséquence une augmentation de la viscosité du fluide.

Einstein, en étudiant en 1906 la dissipation visqueuse produite par l'écoulement autour d'une sphère, établit une formule qui permet de déterminer la viscosité d'une suspension diluée ($\phi \leq 0,03$) [Einstein, 1906] :

$$\eta = \eta_s (1 + 2,5 \phi)$$

où η est la viscosité de la suspension, η_s la viscosité du fluide interstitiel et ϕ la fraction volumique²⁰. La formule n'est valable que pour une suspension suffisamment diluée de sorte que le champ de vitesse autour d'une sphère n'est pas influencé par la présence des autres sphères (on néglige les interactions hydrodynamiques entre sphères). D'autres hypothèses implicites sont effectuées : isodensité des sphères et du fluide interstitiel, fluide interstitiel newtonien et incompressible, pas d'effet ou de glissement aux parois, pas de glissement entre les sphères et le fluide interstitiel, et homogénéité de la répartition des particules dans la suspension.

La prise en compte des interactions hydrodynamiques entre les sphères ajoute des termes d'ordre supérieur à la formule d'Einstein. Les interactions entre deux sphères ajoutent un terme d'ordre 2, les interactions entre trois sphères un terme d'ordre 3, et ainsi de suite [Larson, 1999]. Batchelor écrit la formule de la viscosité pour une suspension diluée en cisaillement simple en tenant compte des interactions entre deux sphères [Batchelor, 1977] :

$$\eta = \eta_s (1 + 2,5 \phi + 6,2 \phi^2 + \dots).$$

La formule de Batchelor s'accorde bien avec les résultats expérimentaux pour $\phi \leq 0,10$ [Saunders, 1961]. D'autres termes d'ordre plus élevé peuvent être ajoutés en tenant compte d'interactions à plusieurs sphères, mais chaque terme n'accroît à chaque fois que de très peu le domaine de validité de la formule en fraction volumique. Plus généralement,

²⁰Dans l'article de 1906, la formule comprend un facteur 1 au lieu d'un facteur 2,5. Einstein corrige sa formule en 1911.

on peut se contenter d'écrire :

$$\eta = \eta_s (1 + 2,5\phi + 6,2\phi^2 + \dots),$$

ce qui devient :

$$\frac{\eta - \eta_s}{\eta_s \phi} = 2,5 + 6,2\phi + \dots$$

$\frac{\eta}{\eta_s} = \eta_r$ est la viscosité relative, $\frac{\eta - \eta_s}{\eta_s} = \eta_{sp}$ est appelé viscosité spécifique et représente une variation relative de la viscosité (en fait une augmentation puisque $\eta - \eta_s > 0$). $\frac{\eta - \eta_s}{\eta_s \phi} = \frac{\eta_{sp}}{\phi}$ est l'augmentation relative de la viscosité par unité de fraction volumique²¹. En prenant la limite lorsque ϕ tend vers zéro, on a :

$$\lim_{\phi \rightarrow 0} \frac{\eta - \eta_s}{\eta_s \phi} = [\eta].$$

$[\eta]$ est appelé « viscosité intrinsèque » et vaut 2,5 pour des sphères dures. Elle est intrinsèquement liée à la forme des particules, d'où son nom.

Pour des concentrations très élevées, on constate expérimentalement que la viscosité diverge. Afin d'obtenir une formule qui permette de rendre compte de l'augmentation rapide de la viscosité, on utilise un argument de milieu homogène [Arrhenius, 1917, Larson, 1999]. Il s'agit de partir d'une suspension de viscosité $\eta(\phi)$ que l'on considère comme un milieu visqueux *homogène*. On augmente alors la fraction volumique de cette suspension d'une quantité $d\phi$, ce qui aura pour effet d'augmenter la viscosité de la suspension de $d\eta$. S'agissant d'une augmentation infinitésimale de ϕ dans un milieu homogène, $d\eta$ est donné par la relation d'Einstein (valable pour des sphères dures) :

$$d\eta = 2,5 \eta(\phi) d\phi,$$

Pour des particules de forme arbitraire, on introduit le facteur $[\eta]$ appelé « viscosité intrinsèque » ; $[\eta]$ vaut 2,5 pour des sphères dures. La formule précédente se réécrit :

$$d\eta = [\eta] \eta(\phi) d\phi.$$

Pour tenir compte de la divergence de la viscosité η à l'approche de l'empilement maximum aléatoire ϕ_m , on ajoute un facteur dépendant de ϕ_m dans l'équation précédente [Ball and Richmond, 1980] :

$$d\eta = \frac{[\eta] \eta(\phi) d\phi}{1 - \phi/\phi_m}.$$

²¹ $\frac{\eta - \eta_s}{\eta_s \phi} = \frac{\eta_{sp}}{\phi}$ est parfois appelé « viscosité inhérente » [Macosko, 1994], mais il est préférable d'éviter une telle dénomination. En effet, « intrinsèque » et « inhérent » sont synonymes ; or la viscosité intrinsèque est définie comme étant la limite de la viscosité inhérente lorsque ϕ tend vers zéro. Il y a donc risque de confusion sémantique entre ces deux concepts de viscosité. On préférera, malgré sa longueur, l'expression plus explicite d'augmentation relative de la viscosité par unité de fraction volumique pour la viscosité inhérente. La viscosité intrinsèque est plus fréquemment rencontrée que la viscosité inhérente puisqu'elle est le facteur que l'on retrouve entre autres dans les formules d'Einstein, de Batchelor, et comme nous allons le voir, de Krieger-Dougherty.

En intégrant l'équation précédente, on obtient :

$$\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-[\eta] \phi_m},$$

La valeur de $[\eta]$ peut expérimentalement être déterminée à partir de mesures à basses fractions volumiques ϕ . ϕ_m peut varier légèrement suivant que les mesures se font à bas ou à haut taux de cisaillement (ϕ_m étant un peu plus grand à haut taux de cisaillement). Pour des sphères dures ($[\eta] = 2,5$) et avec $\phi_m = \phi_{rcp} = 0,64$, on a $[\eta] \phi_m = 1,6$.

L'équation obtenue est l'équation de Krieger-Dougherty [Krieger and Dougherty, 1959]; cette formule semi-empirique rend compte de manière satisfaisante de l'évolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique, et ce même pour des concentrations élevées [Macosko, 1994]. On note que pour $\phi \ll 1$, on retrouve la formule d'Einstein. Par ailleurs, une variation faible de ϕ dans la gamme des ϕ élevée peut entraîner une forte variation de η . Barnes *et al.* ont déterminé les paramètres $[\eta]$ et ϕ_m pour des suspensions composées de divers particules (sphères, fibres de verre, etc.) [Barnes *et al.*, 1989].

D'autres formules de la viscosité $\eta(\phi)$ existent. Dans les expériences de Lenoble *et al.*, seule une équation du type Frankel et Acrivos ($\eta_r = K \eta_s (1 - \phi/\phi_m)$, avec K constante [Frankel and Acrivos, 1967]) est en accord avec leurs données (expériences avec des billes macroscopiques bidisperses de PMMA dans un mélange huile de microscope-hexadécane, en géométrie plan-plan) [Lenoble *et al.*, 2005]. Dans nos expériences (billes macroscopiques et monodisperses de polystyrène dans de l'eau ou de l'huile de silicone), nous verrons que nos données s'ajustent de manière satisfaisante avec l'équation de Krieger-Dougherty.

1.3.3 Interactions entre particules et transition frictionnelle-visqueuse

Deux types d'interactions entre particules peuvent intervenir lors de l'écoulement d'une pâte granulaire : des interactions de friction (ou interactions frictionnelles) et des interactions hydrodynamiques.

Interaction frictionnelle

Lorsqu'il y a prédominance des interactions frictionnelles sur les interactions hydrodynamiques, on dit que la pâte se trouve dans un régime frictionnel²². Pour être dans un tel régime, les particules doivent rester en contact suffisamment longtemps entre elles²³;

²²Certains auteurs parlent de régime quasi-statique ou de régime plastique [Savage, 1984], ou encore d'un « fully developed plastic shear flow » (écoulement de cisaillement plastique complètement développé) [Mandl and Fernandez-Luque, 1970].

²³Si les contacts entre particules sont brefs, on parle alors d'interactions collisionnelles. Pour une interaction collisionnelle, la loi de contact s'établit à partir de la conservation de la quantité de mouvement avant et après le choc, alors que pour une interaction frictionnelle, la loi de contact est une relation entre

il y a ainsi à chaque instant existence d'un réseau continu de particules en contact (voir fig. 1.17). C'est ce réseau qui donne à la pâte ses propriétés rhéologiques particulières à ce régime. Le réseau de contacts dépend de la densité et de la répartition des particules.

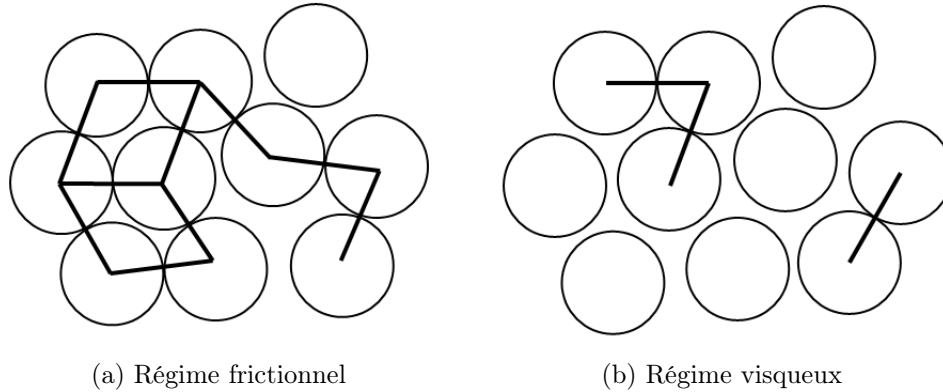


FIG. 1.17 – Distribution instantanée des particules dans le régime frictionnel (a) et dans le régime visqueux (b). Les traits pleins symbolisent les contacts directs entre particules. D'après [Coussot and Ancey, 1999b].

Les contacts frictionnels peuvent être modélisés par la loi de Amontons-Coulomb²⁴. D'après cette loi, s'il y a glissement entre les billes, la contrainte tangentielle σ qui s'exerce sur une bille vérifie la relation $\sigma \leq \mu N$, μ étant le coefficient de frottement statique.

Interaction hydrodynamique

Dans une pâte granulaire, la présence d'une bille modifie l'écoulement du fluide interstitiel, ce qui influence le mouvement d'autres billes : c'est l'interaction hydrodynamique. On peut parler de contacts indirects entre particules, contacts ayant lieu lorsqu'une fine couche de liquide interstitiel les séparent. Lorsque les interactions hydrodynamiques prédominent sur les interactions frictionnelles, on dit que la pâte se trouve dans un régime lubrifié ou visqueux. Contrairement au régime frictionnel, le réseau de contact directs dans le régime lubrifié n'est plus continu mais très fragmenté, voire complètement inexistant

force tangentielle et force normale. La pâte se trouve dans un régime collisionnel lorsqu'il y a prédominance de ces interactions, ce qui est le cas à très haut taux de cisaillement. En un instant donné, il n'y a alors que peu de contacts entre particules à cause de la brièveté de ces interactions. Un régime collisionnel possède des caractéristiques similaires à un écoulement de gaz. Dans le cadre de cette thèse, les taux de cisaillement atteints ne sont pas suffisamment élevés pour être dans un régime collisionnel (voir chapitre 3).

²⁴Les premières expériences scientifiques connus sur les frottements remontent à la fin du xv^e siècle siècle. Elles ont été effectuées par Léonard de Vinci, mais celui-ci n'a pas publié ses résultats. Le Français Guillaume Amontons, à la fin du xvii^e siècle siècle, a redécouvert indépendamment les expériences de Léonard de Vinci, et Charles-Augustin Coulomb, à la fin du xviii^e siècle siècle, a approfondi les travaux de Guillaume Amontons [Pouliquen, 2001, Krim, 1996]. L'étude du frottement entre corps solides porte le nom de tribologie.

(voir fig. 1.17). Le fractionnement, puis éventuellement la disparition, d'un tel réseau survient pour des taux de cisaillement élevés. La cause probable de la diminution des contacts directs est l'existence de forces normales répulsives lorsque deux particules s'approchent l'une de l'autre, forces d'autant plus fortes que le taux de cisaillement est grand (ces forces apparaissent dans l'hypothèse de lubrification, c'est-à-dire dans la description classique de l'écoulement d'un fluide entre deux surfaces solides non parallèles très proches l'une de l'autre) [Guyon *et al.*, 2001, Coussot and Ancy, 1999b, Coussot, 2005].

Notons enfin que le réseau de contacts dépend bien sûr de la densité des particules, une densité élevée favorisant les contacts entre particules.

Transition frictionnelle-visqueuse

Il y a passage d'un régime frictionnel à un régime visqueux lorsque l'énergie dissipée par le mouvement relatif des particules séparées par des couches de fluide est plus important que l'énergie dissipée par leurs contacts de friction. On dit alors qu'il y a une transition frictionnelle-visqueuse dans la suspension.

On définit un nombre adimensionnel, qu'on appelle nombre de Leighton, qui caractérise le rapport entre la force F_v de frottement visqueux d'une particule dans le fluide interstitiel, et la force F_f exercée par une particule lors d'un contact frictionnel sur une distance b avec une autre particule²⁵.

Soit F_v la force de résistance visqueuse qui s'exerce sur un corps solide allant à la vitesse relative v par rapport à un fluide newtonien au repos. On a : $F_v = k L \eta_s v$, où k est un coefficient de traînée qui dépend de la forme et de l'orientation de la particule, L est une longueur caractéristique de la particule (dans le cadre de l'équation de la loi de Stokes, c'est-à-dire à faible vitesse et pour une particule sphérique, $k = 6\pi$ et $L \equiv r$, r étant le rayon de la particule [Guyon *et al.*, 2001]) et η_s la viscosité du fluide interstitiel entre particules. En ne tenant compte que des paramètres physiques, on obtient : $F_v = \eta_s r v$, et comme $v = \dot{\gamma} h$, h étant la distance moyenne entre deux particules (dépendant de la fraction volumique ϕ des particules), on obtient finalement : $F_v = \eta_s r \dot{\gamma} h$. Avec f le coefficient de frottement et F_N la force normale d'une particule sur une autre, $F_f = f F_N$ est la force tangentielle exercée par une particule sur une autre. Le nombre de Leighton vaut donc :

$$Le = \frac{F_v}{F_f} = \frac{\eta_s \dot{\gamma} r h}{f F_N} .$$

Le régime frictionnel est atteint lorsque le nombre de Leighton est très inférieur à 1. Dans un tel régime, le réseau continu formé par les contacts directs entre particules est très étendu. Dans le régime visqueux, ce réseau se fragmente, voire disparaît.

²⁵Le nombre de Leighton, introduit par Coussot et Ancy [Coussot and Ancy, 1999a], est similaire au paramètre qui gouverne la resuspension dans la théorie de Leighton et Acrivos [Leighton and Acrivos, 1987, Acrivos *et al.*, 1993, Coussot and Ancy, 1999a].

1.3.4 Migration

Lors d'expériences menées dans une cellule de Couette et portant sur des suspensions concentrées de sphères immergées dans des liquides newtoniens, Gadala-Maria et Acrivos ont observé une diminution de la viscosité mesurée de la suspension après de longues périodes de cisaillement, alors même que, dans des conditions identiques de cisaillement, la viscosité du liquide interstitiel reste constante [Gadala-Maria and Acrivos, 1980].

D'après Leighton et Acrivos, ce phénomène est dû à une diffusion des particules induite par le cisaillement, diffusion elle-même causée par un gradient de taux de cisaillement : c'est la migration. En effet, les interactions entre particules proches du cylindre tournant sont beaucoup plus nombreuses que celles proches du cylindre fixe, ceci à cause du taux de cisaillement élevé. En conséquence, les particules soumises à ce cisaillement élevé se déplacent et migrent vers les régions où les interactions sont moins fréquentes. Cette migration engendre ainsi un gradient de concentration de particules, et ce gradient génère lui-même un flux de particules qui contre-balance la migration. Par ailleurs, comme la viscosité est liée à la concentration en particules, le gradient de concentration crée un gradient de viscosité de la suspension [Leighton and Acrivos, 1987, Phillips *et al.*, 1992, Acrivos, 1995, Shauly *et al.*, 1998].

Lagrée et Lhuillier ont récemment proposé une description théorique en milieu continu de la suspension concentrée soumise à des cisaillements dans une cellule de Couette, à l'état stationnaire, dans deux situations différentes : à pression de confinement constante, et à fraction volumique *moyenne* constante (et donc à volume total du fluide constant) [Lagrée and Lhuillier, 2006a, Lagrée and Lhuillier, 2006b]. Précisons que dans le cadre de cette thèse, toutes les expériences se font à volume constant. Dans le modèle de Lagrée et Lhuillier, la pression exercée le long de la direction radiale (appelée pression granulaire) est la résultante des multiples configurations spatiales des particules, des impacts entre particules (liés à la dilatance), et de la pression du liquide interstitiel. À cause de la dilatance de Reynolds, le cisaillement du milieu à fraction volumique moyenne constante engendre une augmentation de la pression granulaire (et inversement, le cisaillement du milieu à pression constante amène une diminution de la fraction volumique moyenne). Au final, à fraction volumique moyenne constante, la fraction volumique proche du cylindre intérieur tournant décroît tandis que la fraction volumique proche du cylindre extérieur fixe croît.

Lagrée et Lhuillier mettent en évidence deux propriétés d'un profil de fraction volumique (profil de densité) dans l'entrefer d'une cellule de Couette, que l'on se trouve à pression constante ou à volume constant :

1. La fraction volumique locale augmente lorsque que l'on se rapproche du cylindre extérieur fixe (zone à bas taux de cisaillement).
2. La fraction volumique locale près du cylindre intérieur tournant décroît lorsque la vitesse de rotation augmente.

La figure 1.18 montre des profils de fraction volumique ϕ à pression constante et à volume constant pour, dans chaque cas, deux vitesses différentes du cylindre intérieur.

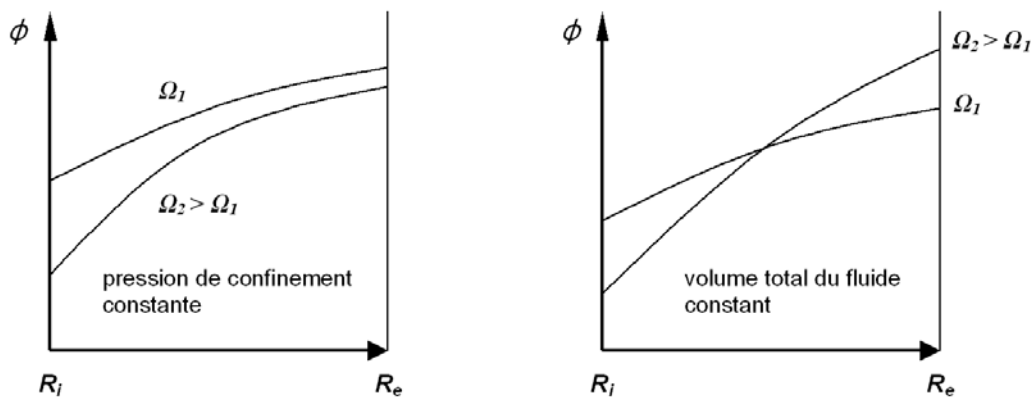


FIG. 1.18 – Profils de fraction volumique ϕ à pression constante (à gauche) et à volume constant (à droite), pour deux vitesses Ω_1 et Ω_2 de rotation du cylindre intérieur, avec $\Omega_1 > \Omega_2$ [Lagrée and Lhuillier, 2006a, Lagrée and Lhuillier, 2006b].

À pression de confinement constante, à cause des effets de dilatance, la fraction volumique moyenne dans une couche horizontale (et par conséquent, dans tout l'entrefer) décroît avec l'augmentation de la vitesse de rotation. À volume constant, la fraction volumique moyenne reste constante, et la pente du profil de densité s'accroît avec la vitesse de rotation.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

Sommaire

2.1	Introduction	37
2.2	Techniques de rhéométrie classique	38
2.2.1	Géométrie de Couette cylindrique	38
2.2.2	Géométrie cône-plan	44
2.2.3	Géométrie plan-plan	46
2.2.4	Géométrie double-gap	47
2.2.5	Géométries utilisées dans le cadre du travail de thèse	48
2.3	Application de l’Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) à la rhéologie	48
2.3.1	Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)	49
2.3.2	Mesure des profils de vitesse	54
2.3.3	Mesure de densité	55
2.3.4	Intérêt de l’IRM en rhéologie	55
2.3.5	Dispositif utilisé	56

2.1 Introduction

Nous voulons étudier le comportement et les caractéristiques des pâtes granulaires. Mais comment mesurer, en pratique, la viscosité de cisaillement d’un fluide? Comment mesurer ses contraintes normales? Comment obtenir ses profils de vitesse? Dans ce chapitre, nous exposons les techniques utilisées qui nous permettent d’apporter une réponse à ces questions.

Nous décrivons en premier lieu les techniques de rhéométrie classique permettant de mesurer la viscosité de cisaillement et éventuellement les contraintes normales : géométrie de Couette cylindrique, géométrie cône-plan et plan-plan. Nous exposerons enfin la technique de l’Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) grâce à laquelle il est possible d’obtenir les profils de vitesses du fluide en écoulement.

2.2 Techniques de rhéométrie classique

Pour mesurer les caractéristiques rhéologiques d'un fluide (viscosité, contraintes normales, etc.), on utilise un appareil de mesure appelé rhéomètre. Un rhéomètre mesure à la fois la contrainte et la déformation d'un fluide en fonction du temps.

Pour mesurer la viscosité de cisaillement $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$, un rhéomètre peut appliquer la contrainte σ et mesurer le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (fonctionnement à contrainte imposée), ou vice versa (fonctionnement à taux de cisaillement imposé).

En réalité, le rhéomètre impose soit un couple, soit une vitesse de rotation. Le couple est proportionnel à la contrainte, et la vitesse de rotation est proportionnelle au taux de cisaillement ; les deux coefficients de proportionnalité sont des caractéristiques de la géométrie utilisée (Couette cylindrique, cône-plan, plan-plan, etc.).

Le rhéomètre utilisé pour nos expériences est un rhéomètre à contrainte imposée ; il peut toutefois fonctionner à taux de cisaillement imposé grâce à une boucle de rétroaction qui permet d'ajuster la contrainte appliquée au taux de cisaillement désiré.

Nous passons en revue les différentes géométries utilisées dans le cadre de cette thèse.

2.2.1 Géométrie de Couette cylindrique

La géométrie de Couette est composée de deux cylindres coaxiaux en rotation relative. Le rayon intérieur est noté R_i et le rayon extérieur R_e (et on a donc $R_e > R_i$). L'entrefer e est l'espace entre les deux cylindres, et on a : $e = R_e - R_i$. La hauteur du cylindre intérieur est notée h . Les géométries de Couette utilisées dans cette thèse ont un cylindre extérieur fixe avec un fond (« cup » en anglais ; il s'agit donc d'un récipient cylindrique destiné à contenir le fluide) et un cylindre intérieur tournant (« bob » en anglais ; le Couette cylindrique est donc parfois dénommé en anglais « bob and cup »). La figure 2.1 représente une coupe de profil d'une géométrie de Couette cylindrique. Le rhéomètre impose un couple au cylindre tournant et mesure la vitesse de rotation de ce cylindre.

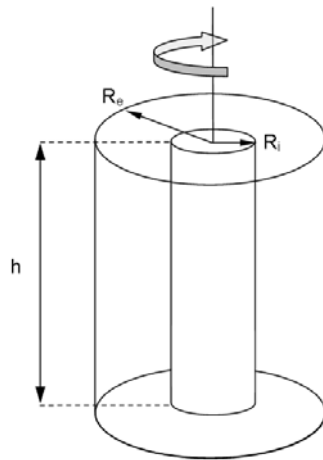


FIG. 2.1 – Géométrie de Couette cylindrique.

Pour les suspensions, le problème du glissement aux parois peut survenir lors de l'écoulement. Ce problème résulte de la diminution (appelée déplétion) « naturelle » du nombre de particules proches de la paroi (déplétion pouvant être accentuée par la migration des particules)¹. En effet, pour un fluide dont la répartition des particules est *aléatoire*, le calcul de la concentration en particules sur une couche de fluide proche de la paroi ne peut tenir compte des particules si proches de la paroi qu'elles la pénétreraient, d'où la déplétion. La conséquence du glissement est la mesure d'une viscosité du fluide plus faible que la viscosité réelle et une discontinuité du champ des vitesses (discontinuité située à la frontière entre le fluide et la couche de fluide proche de la paroi et moins concentrée en particules) [Coussot and Ancy, 1999b, Coussot, 2005].

Pour éviter les glissements aux parois, lorsque le fluide étudié est une pâte granulaire, on recouvre le cylindre extérieur (c'est-à-dire la surface cylindrique à l'intérieur du récipient) avec les particules composant la pâte (à l'aide de ruban adhésif double face), afin d'obtenir une surface intérieure de même rugosité que la pâte. Pour la rugosité de la surface du cylindre intérieur, on utilise un « croisillon » (« vane » en anglais) comme cylindre tournant, c'est-à-dire un axe muni de pales (voir fig. 2.2). Le croisillon, en tournant autour de son axe pour induire l'écoulement, décrit un cylindre fictif dont la rugosité à la distance R_i de l'axe est celle de la pâte granulaire. L'utilisation du croisillon permet ainsi d'éviter le glissement aux parois [Barnes, 1995, Coussot and Ancy, 1999b, Coussot, 2005].



FIG. 2.2 – Croisillon servant de cylindre intérieur dans la géométrie de Couette cylindrique. En tournant autour de son axe, le croisillon décrit un cylindre fictif dont la surface est de même rugosité que la pâte dans laquelle le croisillon est plongé.

Le couple C imposé par le rhéomètre sur le cylindre tournant vaut, en notant la contrainte moyenne sur le cylindre intérieur $\sigma(r = R_i) = \sigma_i$:

$$C = (\text{distance}) \times (\text{force}) = R_i \times 2 \pi R_i h \sigma_i$$

¹En excluant d'autres causes telles que la gravité, les réactions physico-chimiques ou les interactions paroi-particule.

soit :

$$\sigma_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2}.$$

Pour un entrefer faible ($e = R_e - R_i \ll 1$), le système équivaut à un cisaillement entre deux plaques, et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$, fonction de la vitesse angulaire de rotation Ω , s'écrit :

$$\dot{\gamma} = \frac{v_\theta}{e}$$

soit :

$$\dot{\gamma} = \frac{R_i \Omega}{R_e - R_i}.$$

Les expressions ci-dessus sont utilisées pour étalonner le rhéomètre, dans une géométrie de Couette classique à entrefer faible : on détermine les constantes de proportionnalité entre contrainte et couple d'un part, taux de cisaillement et vitesse de rotation d'autre part, avec des ajustements pour tenir compte des effets de bord et des imperfections mécaniques du rhéomètre et/ou de la géométrie. En pratique, le constructeur du rhéomètre détermine les constantes de proportionnalité pour les géométries livrées avec l'appareil.

La viscosité $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$ mesurée par le rhéomètre est donc une viscosité mesurée en supposant que l'entrefer est faible. En particulier, en faisant cette approximation, on a supposé un profil de vitesse linéaire dans l'expression du taux de cisaillement.

De manière plus générale, pour un entrefer quelconque, il faut distinguer les fluides newtoniens et non-newtoniens.

Notons d'abord que, dans le cas général de la géométrie de Couette cylindrique, la contrainte σ dépend de r : la contrainte σ est donc hétérogène dans l'entrefer. Établissons cette dépendance. Par conservation du moment, on a (en notant $\sigma(r = R_i) = \sigma_i$) :

$$2\pi R_1 h \sigma_i \times R_1 = 2\pi r h \sigma(r) \times r$$

d'où

$$\sigma(r) = \frac{\sigma_i R_i^2}{r^2} \quad \text{avec} \quad \sigma_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2}.$$

La contrainte σ décroît en $1/r^2$ dans l'entrefer². Le gradient de vitesse varie donc également dans l'entrefer, et le profil de vitesse n'est plus linéaire. Connaissant la variation de la contrainte dans l'entrefer dans un Couette cylindrique, il reste, pour calculer la viscosité du fluide, à déterminer le gradient de vitesse. Il faut pour cela connaître le profil de vitesse du fluide dans l'entrefer.

²On peut également retrouver la dépendance de σ en $1/r^2$ avec l'équation du mouvement [Macosko, 1994]. Plaçons nous en coordonnées cylindriques. On a $v_r = v_z = 0$, $\mathbf{v} = v_\theta(r)\mathbf{u}_\theta$, et la seule composante non nulle du tenseur des contraintes est $\sigma_{\theta r}$. En négligeant les effets dus à la gravitation et en remarquant la symétrie du système par rapport à θ , l'équation du mouvement $\rho\left(\frac{\partial v}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \mathbf{grad} \mathbf{v}\right) = -\mathbf{grad} p + \text{div} \boldsymbol{\tau} + \rho \mathbf{f}$ (voir chapitre 1) s'écrit suivant θ : $\frac{\partial(r^2 \sigma_{\theta r})}{\partial r} = 0$. Avec la condition sur la paroi du cylindre tournant $\sigma(r = R_i) = \sigma_i$, on retrouve ainsi l'expression $\sigma_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2}$.

Viscosité pour un fluide newtonien en Couette cylindrique

La connaissance du profil de vitesse permet de retrouver le gradient de vitesse et par suite de remonter à la viscosité du fluide [Guyon *et al.*, 2001].

En coordonnées cylindriques et quel que soit le fluide, le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ s'écrit en fonction de la vitesse $v_\theta(r)$ [Couarraze and Grossiord, 2000] :

$$\dot{\gamma} = \frac{\partial v_\theta}{\partial r} - \frac{v_\theta}{r} = r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right).$$

L'équation constitutive relie la seule contrainte non nulle du tenseur des contraintes, $\sigma_{\theta r}$, à $\dot{\gamma}$: $\sigma_{\theta r} = \eta \dot{\gamma}$ avec η constante puisqu'on suppose le fluide newtonien. On cherche alors une autre relation explicitant $\sigma_{\theta r}$.

Comme le couple reste constant entre r et en $r + dr$ (il y a en effet équilibre mécanique à l'état stationnaire du volume de fluide compris entre les cylindres de rayon r et $r + dr$), on a une relation avec $\sigma_{\theta r}$:

$$2\pi (r + dr)^2 \sigma_{\theta r}(r + dr) = 2\pi r^2 \sigma_{\theta r}(r)$$

soit, lorsque dr tend vers zéro :

$$\frac{\partial}{\partial r} (r^2 \sigma_{\theta r}) = 0.$$

Cette relation devient, en tenant compte de l'équation constitutive pour un fluide newtonien $\sigma_{\theta r} = \eta \dot{\gamma}$ où η est une constante, soit $\sigma_{\theta r} = \eta r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right)$:

$$\frac{\partial}{\partial r} \left[r^3 \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) \right] = 0.$$

Les solutions sous forme de puissances de r sont de la forme :

$$v_\theta = a r + \frac{a}{r},$$

a et b étant des constantes, déterminées grâce aux conditions aux limites $v_\theta(R_i) = R_i \Omega$ et $v_\theta(R_e) = 0$.

Le calcul donne alors [Guyon *et al.*, 2001] :

$$v_\theta(r) = -\frac{\Omega R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} r + \frac{\Omega R_e^2 R_i^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r},$$

ou encore :

$$v_\theta(r) = r \Omega \frac{(R_e/r)^2 - 1}{(R_e/R_i)^2 - 1}.$$

On peut donc déterminer le gradient de vitesse $\dot{\gamma}$, sachant que $\dot{\gamma} = r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right)$:

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{2\Omega R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2}.$$

Le rhéomètre ne peut mesurer de grandeurs locales (c'est-à-dire à un r donné). On peut néanmoins, pour déterminer la viscosité, calculer la contrainte et le taux de cisaillement moyens dans l'entrefer :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{1}{R_e - R_i} \int_{R_i}^{R_e} \frac{C}{2\pi h r^2} dr = \frac{C}{2\pi h R_i R_e}$$

et

$$\langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{1}{R_e - R_i} \int_{R_i}^{R_e} \frac{2\Omega R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} = \frac{2\Omega R_i R_e}{R_e^2 - R_i^2}.$$

Notons que l'on retrouve les expressions pour un entrefer faible en prenant le cas où $R_e - R_i \ll R_i$:

$$\sigma_i = \frac{C}{2\pi h R_i^2},$$

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega R_i}{R_e - R_i}.$$

Viscosité pour un fluide non-newtonien en Couette cylindrique

Localement (c'est-à-dire à une distance radiale r donnée), le fluide est soumis à une contrainte donnée $\sigma(r)$ et le fluide réagit en se déformant à un certain taux de cisaillement $\dot{\gamma}(r)$. Pour un fluide newtonien, on a vu qu'il était possible de déterminer une relation pour $\dot{\gamma}(r)$ puisque $\sigma(r) = \eta \dot{\gamma}(r)$, avec η constante. Pour un fluide non-newtonien que l'on souhaite étudier, on ignore la loi constitutive reliant la contrainte et le taux de cisaillement : η peut dépendre de $\dot{\gamma}(r)$, et on ignore cette dépendance. On ne sait donc pas localement comment se comporte le fluide.

En pratique, les relations utilisées dans un rhéomètre pour déterminer la viscosité d'un fluide newtonien sont les mêmes que celles utilisées pour un fluide non-newtonien : ce sont les relations pour un entrefer faible déterminées au paragraphe précédent. On mesure donc une viscosité dite « apparente », valable d'autant plus que l'entrefer est faible, et donc que le profil de vitesse se rapproche d'un profil linéaire.

Le profil de vitesse dans l'entrefer pour un fluide non-newtonien n'est pas aisé à déterminer puisqu'il dépend des propriétés non-newtoniennes du fluide que l'on ignore *a priori*, et que l'on cherche justement à mesurer. Il est possible toutefois d'obtenir une relation du profil de vitesse comme précédemment, à condition de postuler une loi constitutive pour le fluide. Ainsi, supposons par exemple que la loi constitutive du fluide obéit à une loi de puissance :

$$\sigma = k \dot{\gamma}^n,$$

k et n étant des constantes caractéristiques du fluide étudié. On retrouve le cas newtonien pour $n = 1$; pour $0 < n < 1$, le fluide est rhéofluidifiant et pour $n > 1$, le fluide est rhéoépaississant. Comme $\dot{\gamma}$ en coordonnées cylindriques s'écrit : $\dot{\gamma} = r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right)$, on a :

$$\sigma = k r^n \left[\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) \right]^n.$$

En reportant cette expression de σ dans l'équation du mouvement en géométrie de Couette [Macosko, 1994], c'est-à-dire dans $\frac{\partial(r^2\sigma_{\theta r})}{\partial r} = 0$, et en tenant compte des conditions aux limites (non-glissement à la paroi) $v_{\theta}(r = R_i) = R_i \Omega_i$ et $v_{\theta}(r = R_e) = 0$, on obtient l'expression du profil de vitesse pour un fluide en loi de puissance :

$$v_{\theta}(r) = r \Omega \frac{(R_e/r)^{2/n} - 1}{(R_e/R_i)^{2/n} - 1}.$$

Sur la figure 2.3 sont représentés deux profils théoriques de vitesse adimensionnés (V/V_i en fonction de $(r - R_i)/(R_e - R_i)$) dans l'entrefer d'un rhéomètre à géométrie de Couette cylindrique : un premier profil pour un rapport $R_i/R_e = 0,99$, et un deuxième pour un rapport $R_i/R_e = 0,67$, et cela pour différents n .

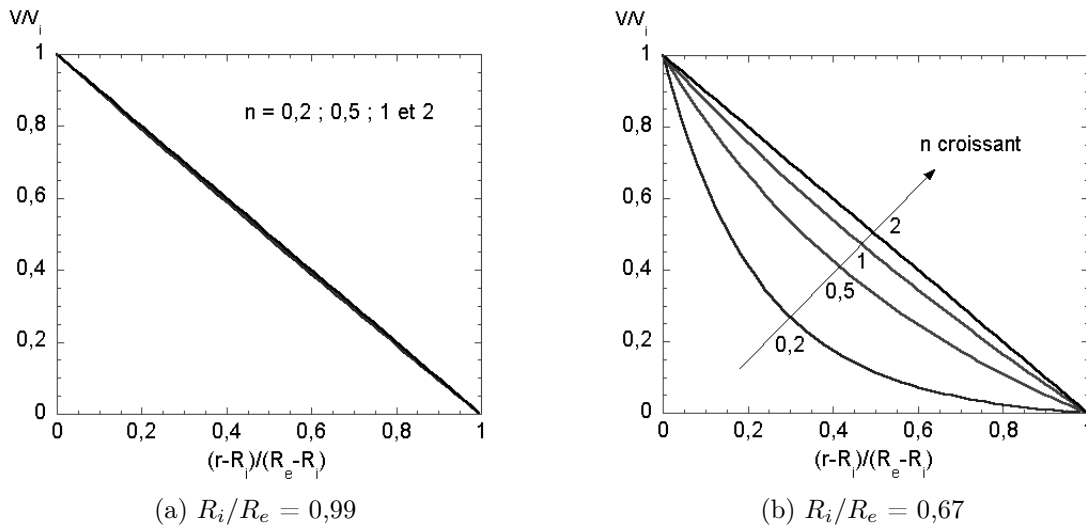


FIG. 2.3 – Profils de vitesse théoriques adimensionnés (V/V_i en fonction de $(r - R_i)/(R_e - R_i)$) dans l'entrefer d'un rhéomètre à géométrie de Couette cylindrique, pour deux rapports R_i/R_e et pour différents n .

Le rapport $R_i/R_e = 0,99$ correspond à une géométrie quasi-idéale avec des profils de vitesse quasi-linéaires quel que soit le fluide (un exemple concret est donné par la géométrie à très petit entrefer du rhéomètre : $R_i = 13,375$ mm, $R_e = 13,5$ mm, entrefer e de $1/8$ mm, soit $0,125$ mm ; l'alignement des cylindres doit alors être extrêmement soigneux).

Le rapport $R_i/R_e = 0,67$ correspond à une des géométries utilisées pour l'étude rhéologique globale des pâtes granulaires. Il s'agit également du rapport utilisé pour l'étude des profils de vitesse en IRM. En pratique, les expériences ont été faites avec des cylindres de rayon $R_i = 4$ cm, $R_e = 6$ cm, d'où un entrefer e de 2 cm. On observe sur la figure 2.3 que pour $n = 1$, le profil est quasi-linéaire, ainsi que pour $n > 1$ (fluides rhéoépaississants). Pour $n < 1$, le profil décroît plus rapidement.

2.2.2 Géométrie cône-plan

La géométrie cône-plan est composée d'un plan fixe et d'un cône de symétrie cylindrique tronqué à sa base (pour éviter en pratique les frottements du cône sur le plan fixe, car le sommet fictif du cône est en contact avec ce plan). Le plan fixe est dans la pratique un disque coaxial avec le cône. Le fluide étudié est compris entre le cône et le plan (voir fig. 2.4).

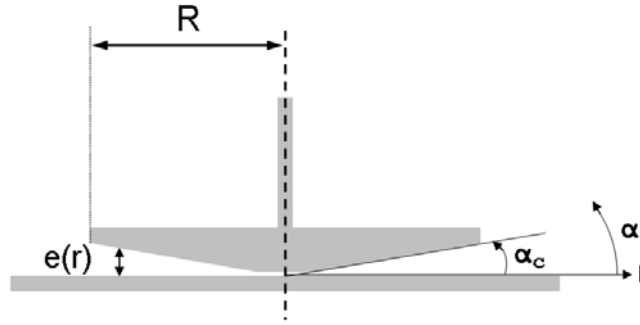


FIG. 2.4 – Géométrie cône-plan (coupe de profil).

La contrainte $\sigma(\alpha_c)$ sur le cône s'écrit [Macosko, 1994] :

$$\sigma(\alpha_c) = \frac{3C}{2\pi R^3 \cos^2 \alpha_c},$$

α_c étant l'angle entre le cône et le plan horizontal. σ est constante pour un angle α_c donné, et donc en particulier sur la surface du cône (située à l'angle α_c). La variation de la contrainte dans l'entrefer vaut :

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{\sigma(\alpha_c) - \sigma(\alpha = 0)}{\sigma(\alpha = 0)} = \frac{1}{\cos \alpha_c} - 1.$$

La variation de la contrainte σ dans l'entrefer varie donc peu pourvu que α soit petit. Pour $\alpha = 4^\circ$ (valeur usuelle pour une géométrie cône-plan d'un rhéomètre commercial), on a $\Delta\sigma/\sigma \lesssim 0,25\%$. La contrainte σ est donc quasiment constante dans le fluide placé dans l'entrefer, pour α petit. Dans ce cas, la contrainte σ se réécrit :

$$\sigma = \frac{3C}{2\pi R^3}.$$

Par ailleurs, comme l'entrefer e et la vitesse tangentielle v_θ augmentent tous deux avec la distance r à l'axe, le taux de cisaillement est constant pour tout r . En effet, on a :

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{\Omega r}{e(r)} = \frac{\Omega r}{r \tan \alpha_c} = \frac{\Omega}{\tan \alpha_c}.$$

$\dot{\gamma}$ ne dépend donc en fait pas de r . En pratique, α_c est très petit (inférieur ou égal à 4°), et donc $\dot{\gamma} \approx \Omega/\alpha_c$.

La géométrie cône-plan avec un angle α_c petit est donc une géométrie pour laquelle la contrainte est quasi-constante dans l'entrefer. On peut donc s'attendre à des profils de vitesse quasi-linéaires. De plus, le taux de cisaillement global (ici entre le cône et le plan) étant constant radialement, les profils de vitesse ont la même pente pour tout r . On se rapproche ainsi des conditions idéales du plan infini. Près de la troncature toutefois, l'écoulement ne suit pas les équations établies précédemment. Il faut aussi apporter le plus grand soin à l'alignement horizontal du cône et du plan afin d'avoir un α effectivement constant autour de l'axe de rotation, et faire attention aux effets de bords (sur la surface libre en contact avec l'air). En effet, sur cette surface libre et en particulier pour les fluides non-newtoniens, une grande quantité de matière peut engendrer des contraintes supplémentaires dans le fluide, et au contraire un manque de matière (qui cause un « creusement », c'est-à-dire une zone incurvée vers l'échantillon) fait artificiellement baisser la viscosité mesurée.

Dans la pratique, pour des pâtes granulaires, la troncature du cône pose un autre problème car la distance entre le cône tronqué et le plan fixe est inférieure à la taille des billes. Ainsi le cône-plan à notre disposition a un rayon de $R = 20$ mm, un angle α de 4° et une troncature de 0,2 mm, alors que la taille de nos billes est de 0,29 mm de diamètre en moyenne. Il peut donc y avoir blocage de la géométrie lors de l'écoulement si une particule vient se coincer entre le plan et le cône, dans la troncature. C'est pourquoi on lui préférera, dans le cas de particules de taille plus grande que la troncature, l'usage de la géométrie plan-plan. Durant le travail de thèse, le cône-plan a été utilisé pour les mesures de viscosité du fluide interstitiel des pâtes ou des huiles de silicone de calibration.

Notons qu'il est également possible de mesurer la contrainte normale avec une telle géométrie. Le rhéomètre dispose en effet d'un capteur permettant de mesurer les variations verticales de la contrainte exercée sur le cône. En Couette cylindrique, les contraintes normales à l'écoulement sont dans la direction radiale du cylindre et non pas verticale, et ne peuvent donc pas être mesurées. Pour un cône-plan, la relation reliant la contrainte normale N_1 et la force verticale F_z est [Macosko, 1994] :

$$N_1 = \frac{2 F_z}{\pi R^2}.$$

Il faut toutefois corriger la valeur de F_z en tenant compte des forces d'inertie, qui tendent à rapprocher les deux plaques entre elles. Le terme correctif pour F_z dû aux forces d'inertie est [Macosko, 1994] :

$$(F_z)_{inertie} = -0,075 \pi \rho \Omega^2 R^4,$$

d'où finalement :

$$N_{1 \text{ corrigée}} = \frac{2 F_z}{\pi R^2} - 0,15 \rho \Omega^2 R^2.$$

L'inertie génère également des écoulements secondaires, dont on peut tenir compte. Néanmoins, la plupart du temps, la correction due aux forces d'inertie suffit.

2.2.3 Géométrie plan-plan

La géométrie plan-plan est constituée de deux plaques horizontales espacées par un entrefer donné (réglable par l'utilisateur). En pratique, les plaques sont des disques coaxiaux (voir fig. 2.5).

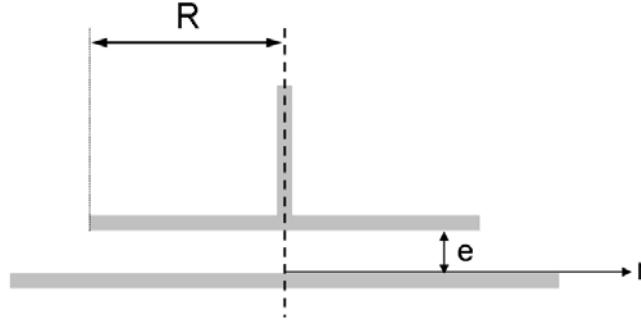


FIG. 2.5 – Géométrie cône-plan (coupe de profil).

Cette géométrie est privilégiée pour des pâtes granulaires car l'entrefer, constant, est ajustable. On peut donc choisir un entrefer supérieur à la taille d'une particule, ce qui évite qu'une particule ne se coince entre les deux plaques.

Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (et la contrainte σ) dépend de la distance r à l'axe de rotation, et c'est l'inconvénient par rapport au cône-plan. L'entrefer e , lui, ne dépend pas de r . On a, avec Ω la vitesse de rotation :

$$\dot{\gamma}(r) = \frac{r \Omega}{e} \text{ et } \dot{\gamma}(r = R) = \frac{R \Omega}{e}.$$

$\dot{\gamma}$ varie de zéro lorsque $r = 0$ à $R \Omega / e$ lorsque $r = R$. $\dot{\gamma}(r = R)$ peut être aisément varié en modifiant l'entrefer e .

La contrainte σ est constante verticalement dans le fluide, mais varie en fonction de r . En $r = R$, elle s'écrit pour un fluide newtonien [Macosko, 1994] :

$$\sigma(r = R) = \frac{2C}{\pi R^3}.$$

Cette contrainte est une contrainte apparente, et on utilise cette expression pour calculer une viscosité apparente³.

³Pour un fluide en général, la contrainte vaut [Macosko, 1994] : $\sigma(r = R) = \frac{C}{2\pi R^3} \left(3 + \frac{d \ln C}{d \ln \dot{\gamma}(r=R)} \right) = \frac{C}{2\pi R^3} \left(3 + \frac{\dot{\gamma}(r=R)}{C} \frac{dC}{d\dot{\gamma}(r=R)} \right)$. Il faut donc plusieurs valeurs expérimentales de C et de $\dot{\gamma}(r = R)$ pour déterminer le second terme en parenthèse $\frac{d \ln C}{d \ln \dot{\gamma}}(r = R)$. Ce second terme vaut 1 pour un fluide newtonien, et n pour un fluide en loi de puissance (n étant la puissance). Pour un fluide à seuil, lorsque la contrainte maximum (c'est-à-dire à la périphérie du disque tournant) est proche de la contrainte critique, le second terme est petit comparé au premier terme [Coussot and Ancy, 1999b, Coussot, 2005].

Comme pour le cône-plan, le plan-plan permet de mesurer les contraintes normales. On a [Macosko, 1994] :

$$N_1 - N_2(r = R) = \frac{F_z}{\pi R^2} \left(2 + \frac{d \ln F_z}{d \ln \dot{\gamma}} \right).$$

Dans le cadre de la thèse, le plan-plan a été utilisé pour des mesures de contraintes normales pour des pâtes granulaires en écoulement.

2.2.4 Géométrie double-gap

La géométrie double-gap, utilisée durant le travail de thèse pour caractériser entre autres les fluides interstitiels des pâtes ou les huiles de références, est constituée d'un cylindre creux tournant et de deux entrefers (« gap » en anglais) à l'intérieur et à l'extérieur de ce cylindre tournant. Le récipient est torique. Sur la figure 2.6 est représentée une géométrie double-gap (en coupe de profil).

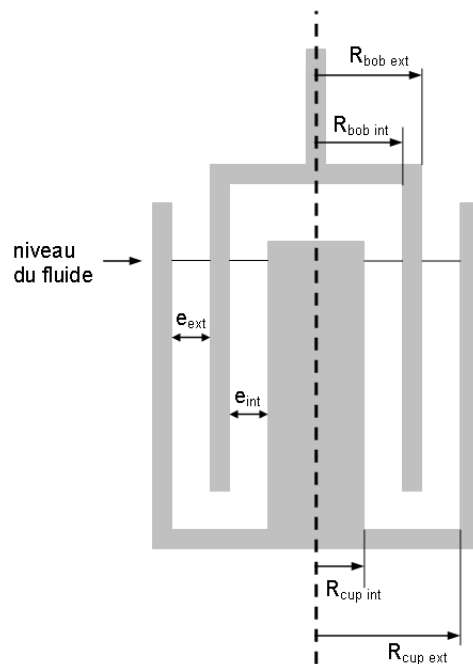


FIG. 2.6 – Géométrie double-gap (coupe de profil).

L'intérêt de cette géométrie est de pouvoir doubler la surface de contact entre les cylindres et le fluide, ce qui permet de mesurer plus facilement des fluides de basse viscosité. Le double-gap a été utilisé dans cette thèse pour caractériser essentiellement des huiles de silicone et des fluides de référence.

2.2.5 Géométries utilisées dans le cadre du travail de thèse

Plusieurs géométries ont été utilisées dans le cadre de la thèse pour l'étude rhéologique des fluides.

Pour l'étude des pâtes granulaires, ont été utilisés :

- un Couette cylindrique muni d'un croisillon en inox de rayon $R_i = 8$ mm et d'un récipient en plastique Altuglas © de rayon $R_e = 13$ mm ($R_i/R_e = 0,62$), le récipient étant recouvert sur sa surface intérieure de particules constituant la pâte à l'aide de rubans adhésifs double-face ;
- un plan-plan en inox de 40 mm de diamètre (appelé P40), recouvert sur les deux plaques de toile émeri de 336 μm environ de granulométrie⁴ ;
- un Couette cylindrique muni d'un cylindre tournant de rayon $R_i = 4$ cm et d'un cylindre fixe de rayon $R_e = 6$ cm ($R_i/R_e = 0,67$), les cylindres étant recouverts de toile émeri P50.

Pour l'étude de la fécule de maïs, un plan-plan en inox de 40 mm de diamètre a été utilisé.

Pour les autres mesures rhéologiques (huiles de silicone, etc.), ont été utilisés :

- un cône-plan de 40 mm de diamètre et d'angle α de 4° (cône-plan appelé C40/4) pour des taux de cisaillements compris entre 10 et 800 s^{-1} environ ;
- un cône-plan de 55 mm de diamètre et d'angle α de $0,5^\circ$ (cône-plan appelé C55/0,5) pour des taux de cisaillements compris entre 100 et 5000 s^{-1} environ ;
- un double-gap (double-gap appelé DG), de dimensions $R_{bob\ int} = 39,5$ mm, $R_{bob\ ext} = 41,5$ mm, $R_{cup\ int} = 36,5$ mm, $R_{cup\ ext} = 40$ mm (qui donnent des entrefers $e_{int} = 1,5$ mm, $e_{ext} = 1,75$ mm), pour des taux de cisaillement compris entre 1 et 500 s^{-1} environ.

2.3 Application de l'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) à la rhéologie

L'Imagerie par Résonance Magnétique (IRM) permet d'effectuer des mesures de vélocimétrie et de profil de densité (concentration des particules) dans l'entrefers pour les fluides complexes. Dans le cadre de cette thèse, cette technique est utilisée pour déterminer les profils de vitesse et les profils de densité des suspensions de billes de polystyrène, et pour déterminer les profils de vitesse des suspensions de maïzena.

Les expériences d'IRM sont réalisées au Laboratoire des Matériaux et des Structures du Génie Civil (LMSGC), unité mixte de recherche CNRS-ENPC-LCPC situé à Champs-sur-

⁴Il s'agit d'une toile de granulométrie P50. D'après la norme FEPA 43-1984 R 1993 relative à la granulométrie des abrasifs appliqués (c'est-à-dire abrasifs constitués d'une couche de grains collés – donc « appliqués » – sur un support), un abrasif P50 correspond à des macrograins recouvrant l'abrasif de 336 μm de diamètre approximatif moyen. La FEPA est la Fédération Européenne des Producteurs d'Abrasifs (cf. <http://www.fepa-abrasives.org>). Ne pas confondre la granulométrie P50 d'un abrasif et la géométrie P40, qui signifie ici plan-plan de 40 mm de diamètre.

Marne, en collaboration avec François Bertrand, Stéphane Rodts et Guillaume Ovarlez. Le dispositif est visible sur la figure 2.7.

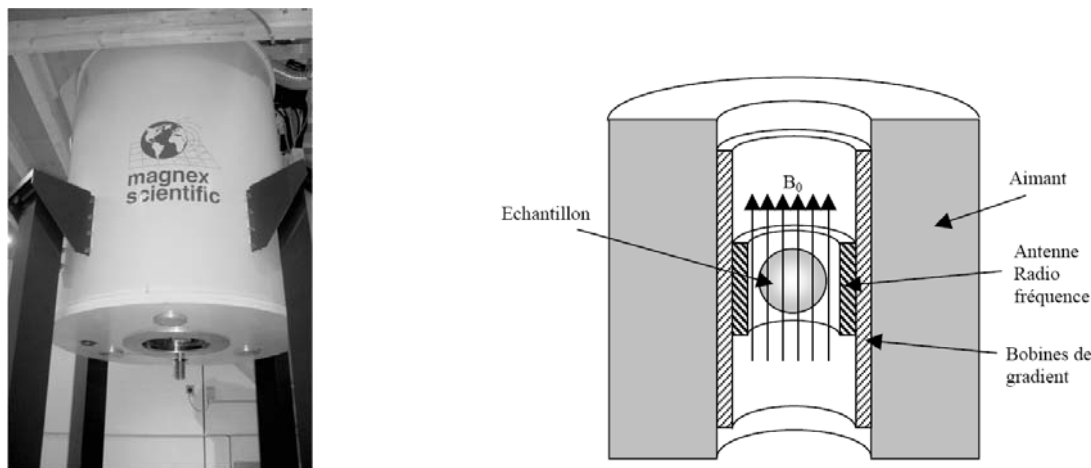


FIG. 2.7 – Dispositif IRM du LMSGC (à gauche) et schéma interne d'agencement des principaux éléments de l'appareil (à droite). Un échantillon est soumis à un champ magnétique \mathbf{B}_0 créé par un aimant, ce qui permet d'aligner les moments magnétiques des noyaux d'hydrogène de l'échantillon. Les bobines de gradient ajoute à \mathbf{B}_0 un gradient de champ magnétique afin de pouvoir localiser les signaux provenant de l'échantillon. L'antenne radiofréquence envoie une onde provoquant la résonance des moments magnétiques ; la mesure du retour à l'équilibre des moments à l'arrêt de l'onde permet d'obtenir des informations locales sur l'échantillon. Photo et image : S. Rodts.

L'IRM est fondée sur la mesure des temps de retour à l'équilibre des moments magnétiques des protons plongés dans un champ magnétique \mathbf{B}_0 , lorsque ces moments sont déstabilisés par résonance par une onde électromagnétique à fréquence radio. Les temps de relaxation des protons sont différents suivant le matériau étudié.

Nous décrivons brièvement dans cette partie le principe de résonance des protons soumis à un champ magnétique (phénomène appelé Résonance Magnétique Nucléaire, RMN en abrégé) à la base de l'IRM dans le cadre d'un formalisme classique⁵, puis son application aux mesures de vélocimétrie et de profil de densité. Des descriptions détaillées de l'IRM et de son application à la rhéologie sont disponibles dans les articles de Raynaud *et al.* et de Rodts *et al.* [Raynaud *et al.*, 2002, Rodts *et al.*, 2004a].

2.3.1 Principe de la Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)

Moment magnétique μ d'un noyau d'hydrogène

Le noyau d'un atome est animé d'un mouvement en rotation autour de lui-même : c'est le mouvement de spin. Le noyau, chargé électriquement et en rotation, se comporte

⁵Une étude approfondie et rigoureuse de la RMN nécessiterait une description dans le cadre de la mécanique quantique. Toutefois, le formalisme classique que nous exploitons ici est suffisant pour décrire le principe de base de l'IRM.

donc comme une boucle de surface A parcourue par un courant I : soumis à un champ magnétique \mathbf{B} , il subit un couple de force $\mathbf{\Gamma}$ tel que :

$$\mathbf{\Gamma} = \boldsymbol{\mu} \wedge \mathbf{B}$$

avec $\boldsymbol{\mu} = IA \mathbf{n}$, \mathbf{n} étant le vecteur unitaire normale à la boucle. Pour le noyau en rotation autour de lui-même, le moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ est proportionnel au spin intrinsèque du noyau \mathbf{S} :

$$\boldsymbol{\mu} = \gamma \mathbf{S},$$

γ étant appelé le rapport gyromagnétique. L'imagerie IRM actuelle repose essentiellement sur les propriétés du noyau d'hydrogène ^1H (constitué d'un seul proton), de par sa quantité dans les matériaux étudiés et de par son moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ de norme plus élevée que pour d'autres noyaux. On s'intéressera donc par la suite plus spécifiquement au noyau d'hydrogène. Le rapport gyromagnétique du noyau d'hydrogène vaut $2,675 \cdot 10^8 \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{T}^{-1}$, d'où $\gamma/2\pi = 42,6 \text{ MHz} \cdot \text{T}^{-1}$.

Application d'un champ magnétique extérieur \mathbf{B}_0

En l'absence d'un champ magnétique extérieur, les moments magnétiques $\boldsymbol{\mu}$ des noyaux d'hydrogène sont dirigés aléatoirement dans l'espace et se compensent en moyenne : la résultante des moments $\mathbf{M} = \sum \boldsymbol{\mu}$ est alors nulle.

En présence d'un champ magnétique extérieur \mathbf{B}_0 :

- Les moments magnétiques nucléaires $\boldsymbol{\mu}$ de chaque noyau s'orientent dans l'espace pour former un angle constant θ avec \mathbf{B}_0 . Une majorité des moments $\boldsymbol{\mu}$ sont « parallèles » à \mathbf{B}_0 (c'est-à-dire que les projections sur \mathbf{B}_0 des moments $\boldsymbol{\mu}$ sont dirigées dans le même sens que \mathbf{B}_0)⁶. La résultante \mathbf{M} est donc orientée suivant \mathbf{B}_0 .
- Par ailleurs, les moments magnétiques $\boldsymbol{\mu}$ sont animés d'un mouvement de précession autour de la direction de \mathbf{B}_0 dans le sens trigonométrique pour $\boldsymbol{\omega}_0$ pointant vers un observateur (voir fig. 2.8). La vitesse angulaire $\boldsymbol{\omega}_0$ de la précession est :

$$\boldsymbol{\omega}_0 = \gamma \mathbf{B}_0 \quad (\text{relation de Larmor}).$$

La fréquence associée est appelée fréquence de Larmor $f_0 = \omega_0/2\pi$.

En résumé, en appliquant un champ magnétique \mathbf{B}_0 , la résultante \mathbf{M} des moments magnétiques des noyaux d'hydrogène est suivant \mathbf{B}_0 . La composante verticale \mathbf{M}_z de \mathbf{M} (verticale ou longitudinale signifiant ici suivant \mathbf{B}_0) est donc confondue avec la résultante \mathbf{M} elle-même, et la composante horizontale \mathbf{M}_{xy} de \mathbf{M} (horizontale ou transversale signifiant ici perpendiculaire à \mathbf{B}_0) est nulle. La résultante \mathbf{M} tourne autour de son axe à la fréquence de Larmor f_0 .

⁶Les autres moments $\boldsymbol{\mu}$ sont « antiparallèles » à \mathbf{B}_0 , c'est-à-dire que les projections sur \mathbf{B}_0 des moments $\boldsymbol{\mu}$ sont dirigées dans le même sens que $-\mathbf{B}_0$. Les moments $\boldsymbol{\mu}$ antiparallèles forment également un angle θ avec \mathbf{B}_0 .

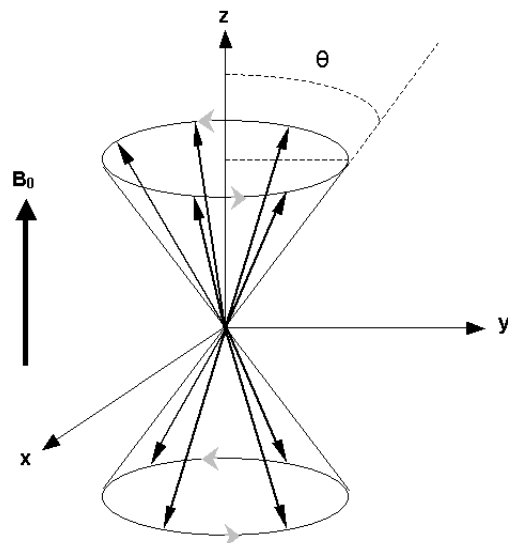


FIG. 2.8 – Précession des moments magnétiques des noyaux d'hydrogène soumis à un champ magnétique \mathbf{B}_0 . Les moments magnétiques sont répartis le long des génératrices du double cône. Les flèches grisées indiquent le sens de précession des moments. Les composantes sur le plan xy des moments (composantes transverses) s'annulent.

Résonance : envoi d'une onde électromagnétique à la fréquence de Larmor f_0

En envoyant sur les noyaux soumis au champ magnétique \mathbf{B}_0 une onde électromagnétique oscillant à la même fréquence que la fréquence de Larmor f_0 , les noyaux ainsi excités entrent en « résonance ». En pratique l'onde est produite par une bobine conductrice parcourue par un courant, ou antenne radiofréquence.

Lors de la résonance, les moments magnétiques parallèles $\boldsymbol{\mu}$ des noyaux :

- basculent en position antiparallèle : la résultante \mathbf{M} voit sa composante verticale \mathbf{M}_z diminuer, et même devenir négative si la résonance se poursuit ;
- se mettent en phase pour leur mouvement de précession : les composantes sur le plan xy des moments (composantes transverses) ne s'annulent plus, et donc la composante horizontale du vecteur résultant \mathbf{M}_{xy} prend une valeur non nulle.

L'extrémité du vecteur résultante \mathbf{M} décrit une hélice inscrite sur la surface d'une sphère (en partant du sommet de la sphère) (voir fig. 2.9, à gauche). Comme \mathbf{M} précesse autour de l'axe vertical à la fréquence de Larmor f_0 , il est intéressant de se placer dans un repère tournant à la fréquence de Larmor f_0 afin de s'affranchir du mouvement de précession de \mathbf{M} autour de l'axe vertical. Dans un tel repère, on voit \mathbf{M} décrire un cercle (voir fig. 2.9, à droite). Lors de la résonance, \mathbf{M} décrit des cycles autour de ce cercle. Toutefois, en pratique, l'onde électromagnétique est émise pendant une durée finie T de telle sorte que \mathbf{M} bascule à un angle de 90° ou 180° (on parle alors d'une impulsion 90° ou 180°).

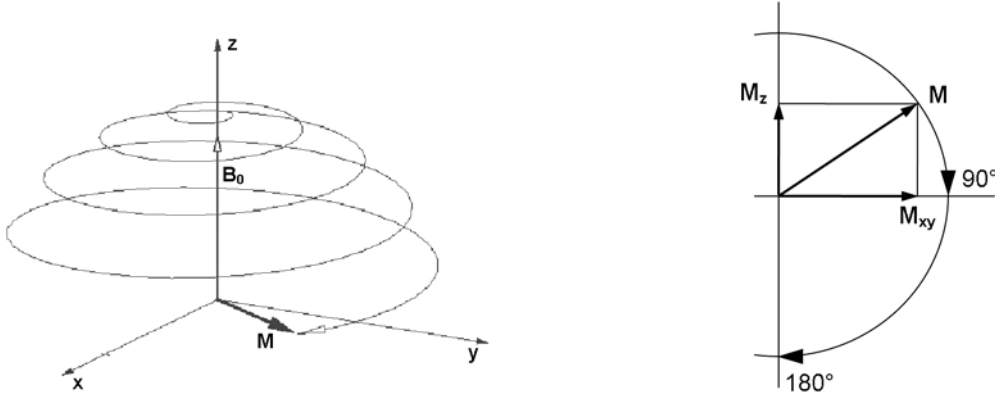


FIG. 2.9 – Phénomène de résonance : conséquence pour le vecteur \mathbf{M} résultant des moments magnétiques $\boldsymbol{\mu}$. Trajectoire du vecteur \mathbf{M} lors de la résonance (à gauche) et cycle décrit par \mathbf{M} dans un repère tournant à la même vitesse angulaire de précession que \mathbf{M} (à droite).

Relaxation : retour à l'équilibre du vecteur résultant \mathbf{M}

À la fin de l'impulsion propageant l'onde électromagnétique à l'origine de la résonance, le vecteur résultant \mathbf{M} retourne à sa position d'équilibre le long de l'axe vertical en suivant une courbe hélicoïdale. En particulier, après une impulsion 90° , la composante M_{xy} décroît exponentiellement de sa valeur maximale M_0 à une valeur nulle et M_z croît exponentiellement de zéro à sa valeur M_0 avant la relaxation (voir fig. 2.10).

Les composantes \mathbf{M}_z et \mathbf{M}_{xy} obéissent aux lois suivantes, avec un temps caractéristique de relaxation T_1 pour \mathbf{M}_z et T_2 pour \mathbf{M}_{xy} (avec $M_0 = M_z(0) = M_{xy}(0)$) :

$$M_z(t) = M_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right) \right]$$

et

$$M_{xy}(t) = M_0 \left[\exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) \right].$$

T_2 est le temps de relaxation transversale, ou spin-spin. Il est lié à la relaxation de \mathbf{M}_{xy} : il correspond aux échanges de place de moments magnétiques nucléaires avec leurs voisins (d'où le terme spin-spin), qui engendre la disparition de la cohérence de phase des moments, et donc l'annulation progressive de \mathbf{M}_{xy} .

T_1 est le temps de relaxation longitudinal, ou spin-réseau, et dépend des interactions entre les moments magnétiques des noyaux et leur environnement (d'où le terme de spin-réseau).

T_2 et T_1 sont complètement distincts. Dans de l'eau pure, $T_2 = T_1 = 3$ s, et sont de l'ordre de la milliseconde pour une pâte de ciment ($T_1 = 30$ ms et $T_2 = 4$ ms pour la pâte de ciment utilisée dans [Rodts *et al.*, 2004a]). Dans les tissus biologiques, T_2 est compris entre 30 ms et 2 s et T_1 est compris entre 200 ms et 2 s. On a généralement $T_1 \gg T_2$, et il faut noter que T_1 augmente avec \mathbf{B}_0 , alors que T_2 ne dépend pas de \mathbf{B}_0 .

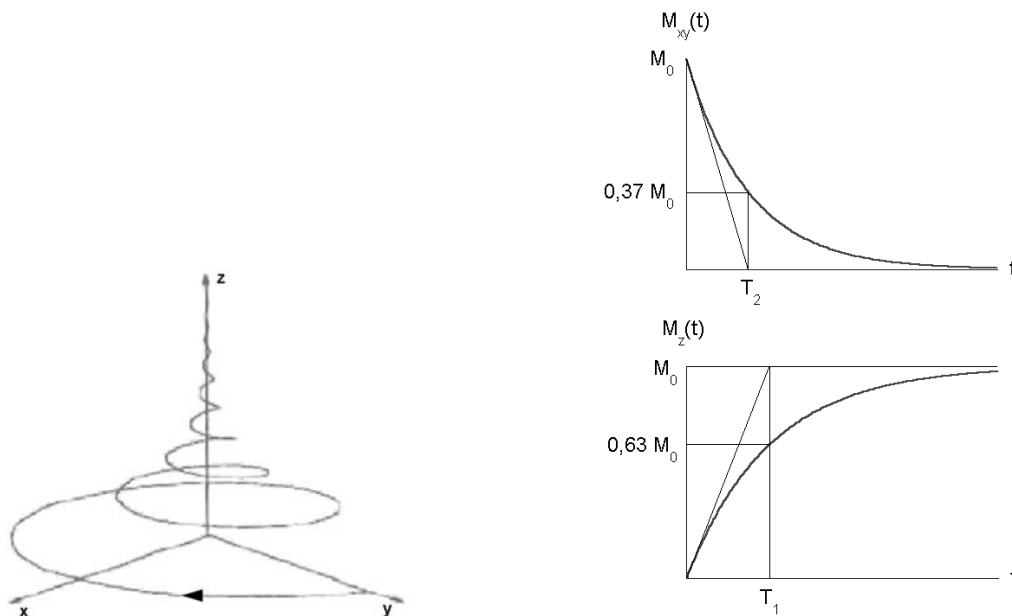


FIG. 2.10 – Trajectoire de l’extrémité du vecteur résultant \mathbf{M} lors de la relaxation, c’est-à-dire à l’arrêt de l’onde électromagnétique à l’origine de la résonance (à gauche). Évolution des composantes M_{xy} et M_z en fonction du temps t (à droite).

Lors de la relaxation, le courant induit $I(t)$ proportionnel à \mathbf{M}_{xy} et de fréquence f_0 permet de mesurer le temps de relaxation T_2 . Ce courant est capté par une bobine d’axe perpendiculaire à \mathbf{B}_0 . Au contraire, \mathbf{M}_z ne génère pas de courant induit car il est confondu avec \mathbf{B}_0 pendant tout le processus et que sa variation, très petite par rapport à la norme de \mathbf{B}_0 , n’est pas détectée par la bobine. Toutefois, on peut faire basculer \mathbf{M}_z dans le plan transversal en appliquant successivement une impulsion 180° puis une impulsion 90° , ce qui permet d’obtenir un courant lié à T_1 [Aurengo *et al.*, 1997]. Notons que précession et relaxation peuvent être décrites par les équations de Bloch.

L’analyse des temps de relaxation T_1 et T_2 permet de différencier les différents matériaux composant un échantillon.

Localisation spatiale

L’antenne radiofréquence envoie une onde électromagnétique à la fréquence de Larmor f_0 sous forme d’impulsions. Cette onde délimite au sein de l’échantillon un barreau fictif le long d’un diamètre dans la cellule de Couette (voir fig. 2.11).

Toutefois, si ce barreau fictif est soumis au même champ \mathbf{B}_0 , tous les signaux provenant du barreau sont émis à la même fréquence de résonance. On obtient donc une information globale portant sur tout le barreau, et pas une information locale : on ne peut en effet pas savoir de quelle partie du barreau proviennent les signaux. Pour pouvoir obtenir des informations locales, on ajoute au champ \mathbf{B}_0 un gradient radial \mathbf{G} de champ magnétique : le champ total \mathbf{B} dépend donc de r et on a $\mathbf{B} = \mathbf{B}_0 + \mathbf{G}.r$. La fréquence de résonance

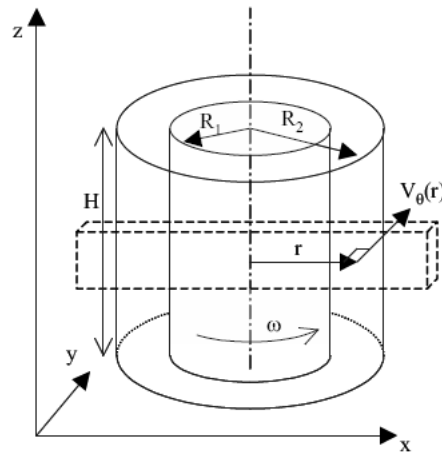


FIG. 2.11 – Cellule de Couette utilisée pour les mesures IRM de profils de vitesse et de densité [Rodts *et al.*, 2004a].

dépend donc de r : $\omega(r) = \omega_0 + \gamma \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}$, et il est alors possible de différencier les signaux émis par des points de coordonnées r différents (localisation spatiale). En effet, le signal détecté est la somme des signaux des moments magnétiques du barreau fictif dont les fréquences dépendent de r : grâce à une transformée de Fourier, on détermine le spectre des fréquences correspondant au signal. Cela permet de retrouver pour une fréquence $\omega_0(r)$ la contribution du point en r au signal, et par conséquent de trouver l'aimantation en ce point.

2.3.2 Mesure des profils de vitesse

En pratique, une expérience en IRM consiste en une série d'actions initiées par les bobines de gradient et l'antenne radiofréquence, suivie d'une mesure du signal de réponse de l'échantillon. Cette série d'actions est appelée « séquence », dont la durée peut varier de la milliseconde à la seconde. Plusieurs séquences sont parfois nécessaires pour recueillir l'information physique recherchée, allongeant d'autant la durée de l'expérience.

Pour obtenir une information physique donnée, plusieurs séquences sont possibles. Elle correspond à une détermination du profil des vitesses par la technique du « codage par la phase ».

Dans cette technique, plutôt que de visualiser l'écoulement directement sur une image, on perturbe l'aimantation afin que cette dernière puisse contenir une information sur les déplacements de l'échantillon pendant un temps donné. La perturbation est réalisée en envoyant deux impulsions de gradient exactement opposées⁷ (gradient dans la direction y sur la figure 2.11 correspondant à la direction de la vitesse recherchée), espacées d'un temps Δ .

⁷Ces gradients sont ajoutés en plus du gradient radial, suivant x sur la figure 2.11, permettant la localisation de l'information.

Plus en détail, pour un élément de matière :

- Avant la première impulsion, la résultante \mathbf{M} précesse suivant \mathbf{B}_0 avec une vitesse ω_0 . On prend une image de référence en l'absence des gradients.
- Soit \mathbf{r}_1 la position de l'élément de matière au moment de la première impulsion de gradient \mathbf{G} et de durée δ . \mathbf{M} tourne alors à la vitesse $\omega(r) = \omega_0 + \gamma \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}_1$, soit un déphasage $\Delta\phi_1 = -\gamma \delta \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}_1$.
- Après la première impulsion, on attend un temps Δ . L'élément de matière peut s'être déplacé en \mathbf{r}_2 . On lance alors une deuxième impulsion de gradient $-\mathbf{G}$ et de durée δ . \mathbf{M} tourne alors à la vitesse $\omega(r) = \omega_0 - \gamma \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}_2$, soit un déphasage $\Delta\phi_2 = +\gamma \delta \mathbf{G} \cdot \mathbf{r}_2$.
- Le déphasage total vaut $\Delta\phi = \Delta\phi_1 + \Delta\phi_2 = +\gamma \delta \mathbf{G} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)$. C'est ce déphasage qui est mesuré dans le signal de réponse de l'aimantation, et qui renseigne sur le déplacement $\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1$ de l'élément de matière après comparaison avec l'image de référence. On peut reconstituer une carte des déplacements, et donc le profil de vitesse, en analysant chaque élément de matière de l'image. Notons que c'est uniquement la composante suivant \mathbf{G} des déplacements qui est mesurée, et qu'une vélocimétrie en 3D nécessiterait l'application de 3 gradients dans 3 directions différentes.

2.3.3 Mesure de densité

Lors des expériences sur les pâtes granulaires, le signal de RMN capté par l'antenne ne provient que des noyaux d'hydrogène du fluide interstitiel, et pas des particules composant la pâte. En mesurant l'intensité du signal $I(r)$ reçue, qui est proportionnelle au volume de fluide contenu dans la pâte, il est possible de mesurer localement la quantité de fluide, et donc de remonter à la fraction volumique locale. Un signal $I_{fluide\ pur}(r)$ d'un échantillon composé uniquement du fluide est enregistré préalablement comme référence. La fraction volumique locale $\phi(r)$ est alors évaluée par la relation :

$$\phi(r) = \frac{I_{fluide\ pur}(r) - I(r)}{I_{fluide\ pur}(r)}.$$

Les profils de densité sont obtenus à une incertitude de 0,5%.

2.3.4 Intérêt de l'IRM en rhéologie

Les techniques de rhéométrie classique ne permettent que des mesures globales de la contrainte et du taux de cisaillement : $\langle \sigma \rangle$ et $\langle \dot{\gamma} \rangle$. Ces mesures globales sont effectuées en postulant la courbe d'écoulement du fluide. Le plus souvent, le fluide est supposé newtonien, et on mesure au final une viscosité apparente.

La mesure par IRM permet des mesures locales de la contrainte et du taux de cisaillement. Connaissant la variation de la contrainte dans un Couette cylindrique (avec la conservation du couple, on a $\sigma = C/(2\pi h r^2)$), la mesure d'un profil de vitesse permet de déterminer la variation radiale du taux de cisaillement, puisqu'en coordonnées cylindriques, on a : $\dot{\gamma}(r) = r \partial(v_\theta/r)/\partial r$. Ainsi, en mesurant un profil de vitesse v_θ/r et le couple C associé, on obtient les valeurs locales (et non plus moyennées) de σ et $\dot{\gamma}$, et

comme σ et $\dot{\gamma}$ varient avec r , on peut également reconstruire une courbe d'écoulement dans la gamme des σ et $\dot{\gamma}$ explorée.

Le profil de densité permet, lui, d'observer d'éventuelles inhomogénéités du fluide sous écoulement. Les inhomogénéités ont des conséquences rhéologiques importantes, influant sur la fraction volumique et donc sur la viscosité.

2.3.5 Dispositif utilisé

Les expériences ont été menées avec un appareil IRM Bruker Biospec 24/80, équipé d'un aimant cylindrique vertical creux engendrant en son sein un champ magnétique uniforme de 0,5 T (Magnex Scientific) (voir fig. 2.7). L'antenne radiofréquence peut accueillir des échantillons jusqu'à 20 cm de diamètre. L'antenne possède un double-rôle : elle envoie une onde provoquant la précession des moments magnétiques, et elle mesure le signal de réponse en fin de séquence. Les bobines de gradient peuvent délivrer des gradients de champ de $50 \text{ mT}\cdot\text{m}^{-1}$ avec un temps de montée de 500 μs . La résolution spatiale est de l'ordre du millimètre.

Les mesures de vitesse sont effectuées dans une cellule de Couette cylindrique de 11 cm de hauteur dont les parois sont recouvertes de toile émeri. Le barreau virtuel délimite dans la cellule de Couette une zone de travail parallélépipédique de 4 cm de hauteur, 14 cm de long suivant un grand diamètre du Couette, et 1 cm d'épaisseur. Le barreau est au centre de l'aimant, et suffisamment loin des surfaces supérieure et inférieure du Couette pour éviter les effets de bord. La vitesse du cylindre intérieur varie entre 0,01 et 100 tr/mn (tours par minute). Des contraintes techniques imposent deux gammes de vitesses : l'une de 0,01 à 9 tr/mn, et l'autre de 1 à 100 tr/mn.

Pour les pâtes granulaires, les rayons intérieur R_i et extérieur R_e valent $R_i = 4 \text{ cm}$, $R_e = 6 \text{ cm}$, ce qui correspond à un entrefer e de 2 cm. Pour la fécule de maïs, deux entrefers différents ont été utilisés : un entrefer e de 6 mm ($R_i = 4,1 \text{ cm}$ et $R_e = 4,7 \text{ cm}$) et un entrefer e de 10 mm ($R_i = 4,1 \text{ cm}$, $R_e = 5,1 \text{ cm}$).

Le capteur de couple, loin de l'échantillon, mesure à la fois la résistance à l'écoulement du fluide et la friction des roulements à billes. C'est pourquoi on ne peut mesurer le couple sur le cylindre intérieur avec l'appareil IRM, en particulier pour des échantillons peu visqueux (comparativement à du béton par exemple, comme c'est le cas de nos systèmes) où l'on mesure surtout la friction des roulements à billes. Pour les pâtes, les mesures de profils de vitesse sont donc complétées par des mesures du couple avec un rhéomètre classique en appliquant les mêmes vitesses de rotation du cylindre intérieur qu'avec l'IRM.

Chapitre 3

Bifurcation de viscosité dans une pâte granulaire : existence de deux régimes d'écoulement

Sommaire

3.1	Introduction	57
3.2	Système étudié et technique expérimentale	59
3.2.1	Système étudié : pâte granulaire	59
3.2.2	Technique expérimentale pour la caractérisation rhéologique	62
3.3	Bifurcation de viscosité des pâtes granulaires	62
3.4	Courbes d'écoulement des pâtes granulaires à contrainte imposée	66
3.5	Courbes d'écoulement d'une pâte granulaire à taux de cisaillement imposé et à contrainte imposée	67
3.6	Transition entre les régimes frictionnel et visqueux	68
3.7	Contraintes normales	72
3.8	Mesure des propriétés locales	74
3.8.1	Dispositif expérimental	76
3.8.2	Profils de vitesse	76
3.8.3	Lien entre mesures microscopiques et macroscopiques	79
3.9	Conclusion	81

3.1 Introduction

L'écoulement des matériaux granulaires a été ces dernières années le sujet de nombreuses études. Toutefois, la question apparemment simple d'une définition de la viscosité pour de tels matériaux est encore sujette à débat [GDRMiDi, 2004, Jaeger *et al.*, 1996].

Deux problèmes majeurs surviennent dans l'étude de cette question : la localisation et le vieillissement.

Une expérience simple permet d'illustrer le phénomène de localisation : prenons un récipient rempli de sable sec, et plongeons-y une cuillère. Lorsque l'on tourne la cuillère dans le sable, seule une mince couche de sable autour de la cuillère est en mouvement : on dit que l'écoulement est « localisé » ou confiné dans cette couche de « fluide », le reste des grains restant immobile. On parle donc de localisation lorsque seule une mince couche de fluide s'écoule sous cisaillement. La viscosité mesurée alors par le rhéomètre représente la résistance à l'écoulement de la partie cisailée, mais cette viscosité n'est pas une caractéristique du matériau.

La pâte granulaire, une fois constituée, évolue au cours du temps [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b]. Lorsque sa viscosité augmente avec le temps, on dit qu'elle « vieillit ». Plusieurs facteurs peuvent causer un vieillissement : les interactions entre les particules composant la suspension, le solvant (c'est-à-dire le fluide interstitiel), ou encore la gravité. Dans les pâtes granulaires, en l'absence de mouvement brownien (les particules composant la pâte ont une taille supérieure au micron), les principales causes de vieillissement sont la compaction lente sous faible écoulement, la sédimentation et le crémage, et la physico-chimie des surfaces. Il est toutefois difficile de définir une viscosité pour une pâte granulaire, la viscosité dépendant fortement de l'état initial de la pâte. C'est aussi la raison pour laquelle on précisait souvent un fluide de la même manière (c'est-à-dire avec le même taux de cisaillement pendant une même durée) afin de commencer les expériences avec des fluides possédant des états initiaux identiques ou équivalents, et d'obtenir des résultats reproductibles.

La notion de viscosité pour les milieux granulaires est nécessaire pour de nombreuses applications afin de prédire la résistance à l'écoulement. Peut-être encore plus important, au vu de son importance en géophysique et dans le génie civil, est la résistance à l'écoulement dans les matériaux granulaires « mouillés » (appelés suspensions concentrées ou denses, ou pâtes granulaires ; ces trois termes seront indifféremment employés dans la suite de l'exposé). Toutefois, la plupart des études sur les milieux granulaires portent sur les matériaux granulaires secs dans lesquels l'effet du fluide interstitiel est négligeable [Mitarai and Nori, 2006]. Dans cette thèse, nous nous intéressons aux matériaux granulaires mouillés composés d'une phase solide (les particules) et d'une phase liquide (le fluide interstitiel).

L'image classique est qu'une suspension dense dont le fluide interstitiel est de basse viscosité se comporte comme un matériau granulaire sec (avec des contacts frictionnels entre les grains), et que, si la viscosité du fluide interstitiel est élevée, la suspension dense se comporte comme un matériau à dominante visqueuse (avec des contacts lubrifiés entre les grains) [Bagnold, 1954, Kytömaa and Prasad, 1993, Prasad and Kytömaa, 1995, Ancy and Coussot, 1999, Coussot and Ancy, 1999a, Ancy, 2001]. Si cette image est vraie, il est important d'étudier quels sont les paramètres qui déterminent la transition d'un régime frictionnel à un régime visqueux, et si une viscosité peut être définie dans les deux régimes.

Le but de ce chapitre est de répondre à ces questions. Nous allons voir que pour les

pâtes granulaires, la transition d'un régime frictionnel vers un régime lubrifié est caractérisée par une bifurcation de viscosité, tout comme pour d'autres matériaux (les « fluides à seuil ») qui possèdent une contrainte critique σ_c : ces fluides, s'ils sont cisailés à une contrainte σ supérieure à σ_c , s'écoulent [Coussot *et al.*, 2002a, da Cruz *et al.*, 2002]. Cette transition est gouvernée par le nombre de Leighton $Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}$, où η_s est la viscosité du fluide interstitiel, $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement et σ la contrainte de cisaillement. Pour un fluide interstitiel donné, le nombre de Leighton critique $Le_c = \frac{\eta_s \dot{\gamma}_c}{\sigma_c}$ fixe le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ auquel la transition entre les deux régimes survient. Dans le régime frictionnel, il n'y a pas d'écoulement stationnaire sans localisation. Le régime visqueux est quant à lui similaire au régime d'écoulement granulaire. Le problème de la définition d'une viscosité sera abordé dans le chapitre suivant [GDRMiDi, 2004, Jaeger *et al.*, 1996].

3.2 Système étudié et technique expérimentale

3.2.1 Système étudié : pâte granulaire

Nous étudions le comportement rhéologique d'une suspension dense composée de particules sphériques monodisperses non-browniennes immergées dans un fluide newtonien à des fractions volumiques ϕ de 58% et de 60%.

Le matériau granulaire est constitué de billes de polystyrène sphériques de diamètre d'environ $290 \pm 30 \mu\text{m}$ (voir fig. 3.1), et de densité $1,04 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$.

Les billes sont tamisées afin de garder celles dont le diamètre est compris entre 250 et 355 μm . Le diamètre est mesuré sur un échantillon de 101 billes prises aléatoirement. L'histogramme de cette mesure se trouve sur la figure 3.2. La moyenne est de $291 \pm 5 \mu\text{m}$, l'erreur provenant des incertitudes de mesure sur l'image ; l'écart-type est de 24 μm . Les billes ont ainsi un diamètre $290 \pm 30 \mu\text{m}$, 30 μm correspondant à une estimation large de l'écart-type. Notons qu'il y a sur l'histogramme, aux incertitudes près, deux billes de diamètre inférieur à 255 μm : ceci résulte de la difficulté à rejeter à travers le tamis les billes de petit diamètre, qui peuvent être retenues dans le tas de billes plus grosses. Par contre, aucune bille n'a un diamètre supérieur à 355 μm puisque l'on ne conserve que les billes qui sont passées à travers le tamis de 355 μm de diamètre.

La densité des billes est mesurée en pesant un mélange de volume connu de billes et d'huile de silicone dans une fiole jaugée. On prend soin de mesurer préalablement la densité de l'huile de silicone en pesant un volume connu de celle-ci dans une fiole jaugée. En versant l'huile sur les billes dans la fiole, des bulles d'air sont emprisonnées dans le mélange puis remontent par poussée d'Archimède ; il ne reste par la suite plus que l'huile et les billes dans la fiole. En pratique, pour ces mesures, on utilise l'huile de silicone Rhodorsil 10646 (densité mesurée à $1,03 \pm 0,01 \text{ g}/\text{cm}^3$ et viscosité η de 2300 mPa.s à 20°C) et l'huile de silicone Rhodorsil V20 (densité mesurée à $0,96 \pm 0,01 \text{ g}/\text{cm}^3$ et viscosité η de $21 \pm 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ à 20°C). L'huile 10646 provient de CRC Industries, les autres huiles proviennent du fournisseur VWR. Les bulles d'air remontent en plusieurs heures dans l'huile 10646, en quelques minutes dans la V20. L'ensemble des mesures donne une densité des billes de polystyrène de $1,04 \text{ g}/\text{cm}^3$.

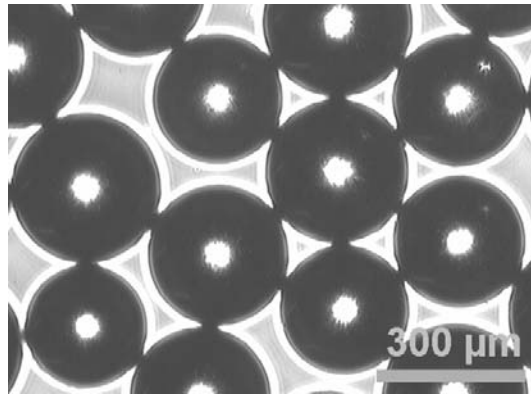


FIG. 3.1 – Billes de polystyrène sphériques de diamètre $0,29 \pm 0,03$ mm, et de densité $1,04 \text{ g.cm}^{-3}$ (observation au microscope optique avec un grossissement $\times 5$).

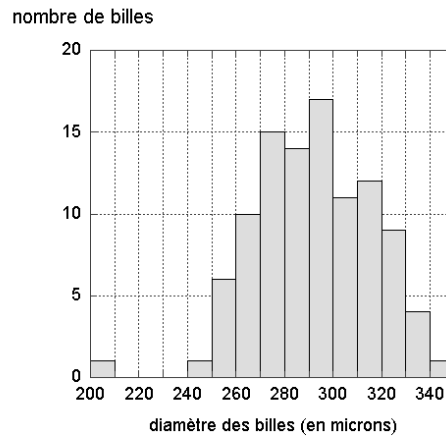


FIG. 3.2 – Histogramme de la mesure du diamètre des billes de polystyrène.

Afin d'éviter sédimentation et crémage, nous ajustons les densités des fluides interstitiels utilisées dans nos expériences à la densité des particules. Ainsi, l'huile de silicone Rhodorsil 10646 (de viscosité $\eta = 2300 \text{ mPa.s}$ à 20°C) et le mélange d'eau avec 6,3% de NaCl en poids (de viscosité $\eta = 1 \text{ mPa.s}$) sont deux fluides possédant une densité égale à celle des billes de polystyrène. En réalité, la densité de l'huile de silicone 10646 est légèrement inférieure à celle des billes (de $0,01 \text{ g/cm}^3$) et il y a donc sédimentation une fois la pâte préparée, mais seulement au bout de plusieurs heures. Une autre raison permettant d'expliquer cette lente chute des billes est que la sédimentation est d'autant plus lente que le fluide est visqueux, or la viscosité de l'huile de silicone Rhodorsil 10646 est élevée. Pour l'eau salée ($\eta_s = 1 \text{ mPa.s}$), de viscosité quasi-identique à celle de l'eau pure, il y a à la fois sédimentation et crémage des billes au bout d'une quarantaine de minutes après préparation (voir fig. 3.3, avec une suspension diluée d'environ 20% de fraction volumique pour mettre en évidence la sédimentation et le crémage), ce qui est supérieur à la durée des expériences (environ 15 minutes au maximum pour l'eau). Cela peut être dû par

exemple aux variations de la densité des billes, peut-être pas parfaitement homogènes, autour de la densité de l'eau salée. Toutefois, les effets dus à la sédimentation et au crémage sont atténués pour des suspensions de fraction volumique élevée proche de la compacité maximale, ce qui est le cas dans nos expériences.

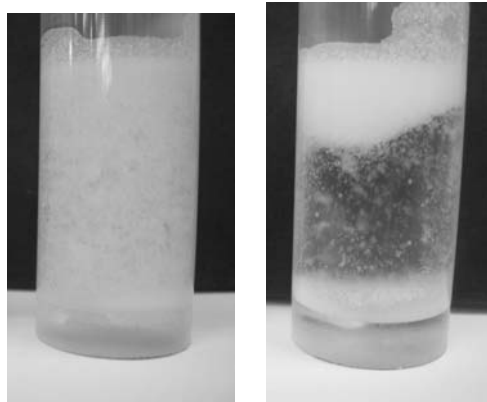


FIG. 3.3 – Évolution en fonction du temps d'une suspension diluée (environ 20% de fraction volumique) de billes de polystyrène dans de l'eau contenant 6,3% de sel en poids. À gauche, la suspension juste après centrifugation. À droite, la suspension quarante minutes après centrifugation : il y a à la fois sédimentation et crémage.

Pour préparer une pâte granulaire, on verse le solvant sur les billes dans un récipient (cellule de Couette adaptée pour le rhéomètre et pour la centrifugeuse), puis on mélange à la spatule. Si le solvant est l'eau, il y a un crémage important dû aux bulles d'air qui se fixent sur les billes de polystyrène et les entraînent à la surface, phénomène qui ne se rencontre pas en prenant l'huile de silicone comme solvant à cause de sa faible tension superficielle. La centrifugation est alors indispensable pour éliminer ces bulles. En sortant les cellules de la centrifugeuse, on resuspend suffisamment les billes pour qu'elles se répartissent dans tout le solvant (voir fig. 3.3) contenant la pâte. Si le solvant est de l'huile de silicone, la centrifugation permet d'accélérer l'élimination des bulles d'air (sans centrifugation, les bulles peuvent mettre plusieurs heures avant de remonter à la surface dans le cas de l'huile 10646, plusieurs minutes dans le cas de l'huile V20). En pratique, on centrifuge la pâte pendant environ 5 minutes avec une vitesse maximum de 3000 tours par minute. On mélange enfin la pâte délicatement à la spatule. Un précisaillement de 30 s^{-1} pendant 30 s avant chaque expérience est effectué pour s'assurer que les pâtes sont dans des états initiaux similaires permettant la reproductibilité des résultats.

L'huile de silicone Rhodorsil 10646 étant miscible dans l'eau, des mélanges d'eau salée et d'huile de silicone Rhodorsil 10646 permettent d'obtenir des solvants de même densité que les billes de polystyrène et dont la viscosité varie entre 1 et 2300 mPa.s. On crée ainsi en pratique des pâtes isodenses dont les viscosités η_s du solvant sont de 10 et 100 mPa.s. Par ailleurs, une pâte isodense avec $\eta_s = 1 \text{ mPa.s}$ est réalisée avec de l'eau salée, et une pâte isodense avec $\eta_s = 2300 \text{ mPa.s}$ est réalisée avec l'huile 10646. Ces expériences sont complétées avec des pâtes préparées avec des huiles de silicone Rhodorsil de série V de

différentes viscosités (20, 100, 300, 500, et 1000 mPa.s). La densité de ces huiles est de $0,96 \text{ g.cm}^{-3}$. La fraction massique des pâtes fabriquées avec l'huile 10646 et les huiles de série V étant la même (60%), les pâtes fabriquées avec l'huile 10646 ont une fraction volumique de 60% et les pâtes fabriquées avec les huiles de série V ont une fraction volumique solide de 58%. Cette différence de fraction volumique n'est toutefois pas significative dans la détermination des valeurs critiques d'écoulement (taux de cisaillement et contrainte critiques $\dot{\gamma}_c$ et σ_c). De plus, les effets de sédimentation sont quasiment négligeables à cause de la concentration élevée proche de la fraction volumique aléatoire maximale et à cause de la resuspension des billes pendant l'écoulement.

3.2.2 Technique expérimentale pour la caractérisation rhéologique

Les expériences de rhéométrie sont effectuées dans une géométrie de Couette munie d'un croisillon sur un rhéomètre commercial (Reologica Stresstech) capable d'imposer la contrainte ou le taux de cisaillement. La géométrie croisillon que nous utilisons est équivalente à un cylindre (diamètre 16 mm, hauteur 52 mm) avec une surface latérale dont la rugosité est de la taille des billes, réduisant le glissement des pâtes granulaires [Ancy and Coussot, 1999, Coussot and Ancy, 1999b, Ancy, 2001, Coussot, 2005]. Pour la même raison, des grains sont collés sur la surface interne du récipient cylindrique (diamètre 26 mm) à l'aide de ruban adhésif double-face. La taille de l'entrefer est de 5 mm. La hauteur cisillée de la pâte correspond à la hauteur du croisillon. Pour éviter autant que possible les effets de bord dus au fond, la distance entre le fond du croisillon et le fond du récipient est fixé à la moitié de l'entrefer, soit 2,5 mm. Ceci a pour effet de limiter la migration vers le fond du récipient¹

3.3 Bifurcation de viscosité des pâtes granulaires

Nous étudions d'abord une pâte granulaire composée de billes de polystyrène de 290 μm de diamètre dans de l'eau salée. La taille de l'entrefer, de 5 mm, correspond donc à une longueur de presque 20 diamètres de billes. Le mélange est isodense et la fraction volumique est de 60%. Avant chaque expérience, le matériau est précisailé à 30 s^{-1} pendant 30 s afin d'obtenir un état initial reproductible. La figure 3.4 montre l'évolution de la viscosité avec le temps pour différentes contraintes appliquées au système.

¹En effet, soit $\dot{\gamma}_e$ le taux de cisaillement global dans l'entrefer, et $\dot{\gamma}_f$ le taux de cisaillement moyen au fond du récipient (plus précisément entre le fond du croisillon et le fond de la cellule de Couette). On note également e l'entrefer, Ω la vitesse de rotation du cylindre tournant, d la distance entre le fond du croisillon et le fond de la cellule de Couette, et r la distance à l'axe de rotation. On a alors : $\dot{\gamma}_e = \frac{2\pi R\Omega}{e}$ et $\dot{\gamma}_f = \frac{2\pi(R/2)\Omega}{d}$. Cette expression de $\dot{\gamma}_f$, prise comme taux de cisaillement global dans le fond, correspond au taux de cisaillement dans le fond à une distance de $R/2$ de l'axe de rotation (sachant que la valeur maximale de $\dot{\gamma}_f$ est à $r = R$, et la valeur minimale (qui est nulle) à $r = 0$). Pour éviter la migration des particules vers le fond, on prend : $\dot{\gamma}_e = \dot{\gamma}_f$, ce qui entraîne : $d = e/2$. Comme l'entrefer e vaut pour notre système 5 mm, on laisse 2,5 mm entre le croisillon et le fond de la cellule.

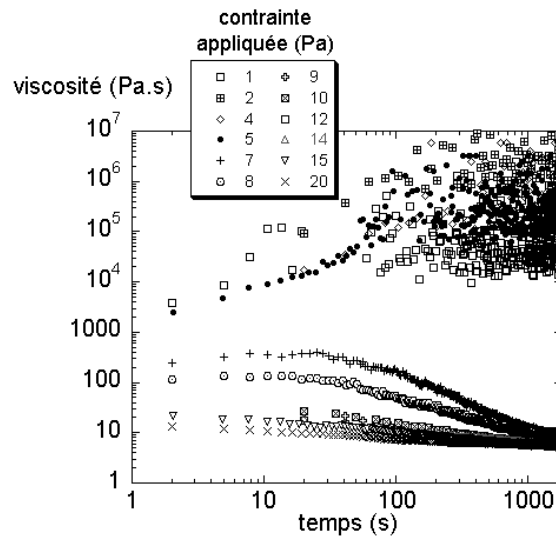


FIG. 3.4 – Bifurcation de viscosité pour une pâte constituée de billes de polystyrène de 290 μm de diamètre dans de l'eau salée. Le mélange est isodense et la fraction volumique est de 60%. À contrainte imposée, la viscosité augmente ou diminue avec le temps. La viscosité à l'état stationnaire diverge à l'infini lorsque le cisaillement passe au-dessous d'une contrainte critique. Avant chaque expérience, le matériau est pré-cisaillé à 30 s^{-1} pendant 30 s afin d'obtenir un état initial reproductible.

Nous observons sur la figure 3.4 que pour des contraintes inférieures à une contrainte critique σ_c de $7 \pm 2 \text{ Pa}$, la viscosité de l'échantillon croît au cours du temps jusqu'à ce que l'écoulement s'arrête complètement (dans l'incertitude de la mesure du déplacement par le rhéomètre, d'où les grandes fluctuations de la viscosité η) : la viscosité à l'état stationnaire est infinie. La saturation apparente de la viscosité à différentes valeurs finies suivant le temps, pour des cisaillements à des contraintes aussi faibles, provient de la résolution finie du capteur de position du rhéomètre.

Pour une contrainte plus élevée que σ_c , la viscosité décroît avec le temps et atteint une valeur faible η_0 de $6 \pm 1 \text{ Pa.s}$. La courbe de la figure 3.5 montre la courbe d'écoulement pour la pâte, à contrainte imposée $\sigma > \sigma_c$: un ajustement linéaire montre que l'on peut considérer le comportement de la pâte comme étant newtonien pour la viscosité de cisaillement (la viscosité ne varie pas avec le taux de cisaillement).

Ainsi, lorsque la contrainte imposée augmente et dépasse la contrainte critique σ_c , la viscosité à l'état stationnaire saute discontinûment de l'infini vers une valeur finie et faible η_0 . Ceci montre l'existence d'une bifurcation de viscosité pour le matériau, qui passe abruptement d'un état bloqué au-dessous de σ_c vers un état d'écoulement au-dessus de σ_c . Une telle bifurcation a été observée auparavant pour d'autres fluides complexes et pour les matériaux granulaires secs [Coussot *et al.*, 2002a, Coussot *et al.*, 2002b, da Cruz *et al.*, 2002].

En appliquant la contrainte critique σ_c au fluide, ce dernier se met à s'écouler à un taux de cisaillement qualifié de critique $\dot{\gamma}_c$. Le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ vaut ici $1,2 \pm 0,2 \text{ s}^{-1}$, la barre d'erreur provenant de l'incertitude sur la contrainte critique σ_c .

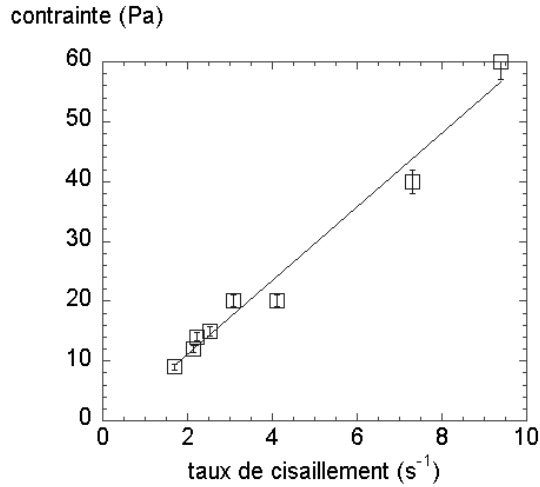


FIG. 3.5 – Courbe d'écoulement pour une pâte constituée de billes de polystyrène de 290 μm de diamètre dans de l'eau salée, à contrainte imposée. Le mélange est isodense et la fraction volumique est de 60%. Un ajustement linéaire montre que le comportement peut être considéré comme newtonien pour la viscosité de cisaillement.

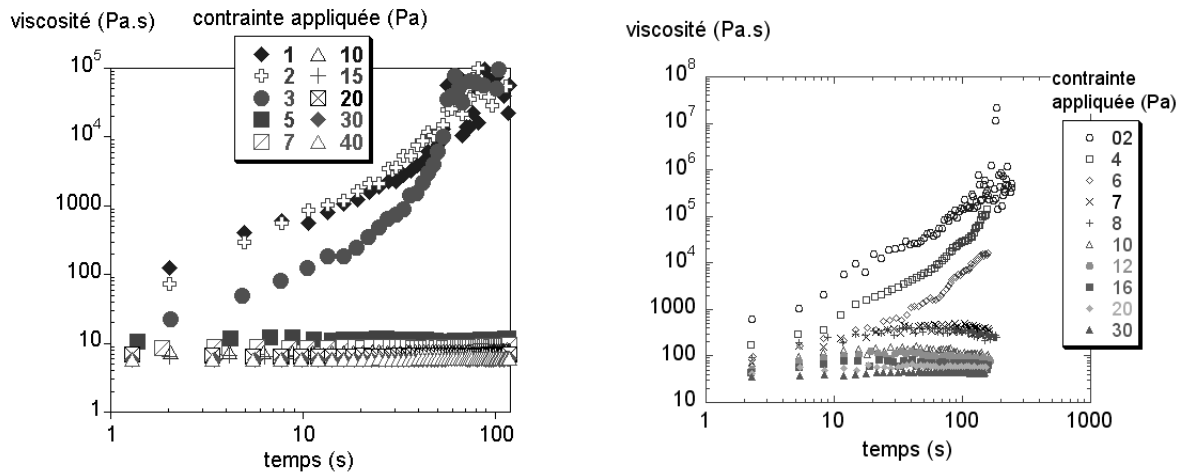
Nous poursuivons l'étude en faisant varier la viscosité η_s du fluide interstitiel. La figure 3.6 montre les évolutions de la viscosité avec le temps pour une pâte granulaire ayant pour fluide interstitiel : (a) de l'huile de silicone V20 ($\eta_s = 20 \text{ mPa.s}$), (b) de l'huile de silicone V300 ($\eta_s = 300 \text{ mPa.s}$), et (c) de l'huile de silicone 10646 ($\eta_s = 2,3 \text{ Pa.s}$). Comme précédemment, on applique différentes contraintes au système.

Pour les trois pâtes (voir les graphes de la figure 3.6), à l'état stationnaire, la viscosité passe brusquement d'une valeur finie et passe à une valeur infinie lorsque la contrainte appliquée diminue jusqu'à passer au-dessous de la contrainte critique. Il y a donc bifurcation de viscosité. Les valeurs critiques σ_c et $\dot{\gamma}_c$ pour ces pâtes sont consignées dans le tableau 3.1.

Type d'huile (et η_s)	V20 (20 mPa.s)	V300 (300 mPa.s)	10646 (2,3 Pa.s)
$\dot{\gamma}_c \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$(4 \pm 1) \cdot 10^{-1}$	$(1,8 \pm 0,8) \cdot 10^{-2}$	$(1,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-3}$
$\sigma_c \text{ (Pa)}$	5 ± 3	7 ± 1	5 ± 2

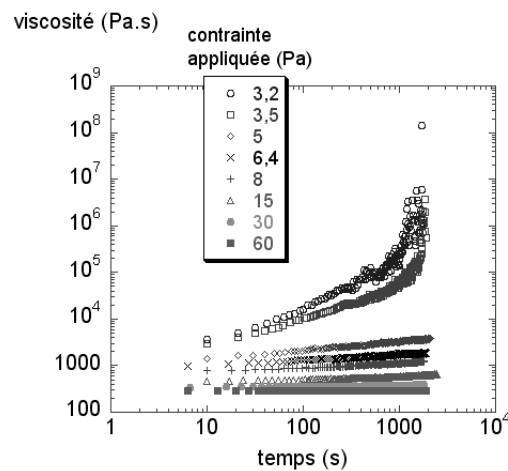
TAB. 3.1 – Valeurs critiques σ_c et $\dot{\gamma}_c$ des pâtes granulaires composées d'huiles V20 ($\eta_s = 20 \text{ mPa.s}$), V300 ($\eta_s = 300 \text{ mPa.s}$) et 10646 ($\eta_s = 2,3 \text{ Pa.s}$). On rappelle à titre de comparaison les valeurs critiques pour une pâte composée d'eau salée : $\sigma_c = 7 \pm 2 \text{ Pa}$ et $\dot{\gamma}_c = 1,2 \pm 0,2 \text{ s}^{-1}$.

On peut déjà remarquer que pour des viscosités du solvant η_s très différents, les



(a) huile de silicone V20, $\eta_s = 20$ mPa.s

(b) huile de silicone V300, $\eta_s = 300$ mPa.s



(c) huile de silicone 10646, $\eta_s = 2,3$ Pa.s

FIG. 3.6 – Bifurcation de viscosité pour une pâte constituée de billes de polystyrène de 0,29 mm de diamètre dans de l’huile de silicone de série (a) V20 ($\eta_s = 20$ mPa.s), (b) V300 ($\eta_s = 300$ mPa.s), et (c) 10646 ($\eta_s = 2,3$ Pa.s). Le mélange est isodense pour l’huile 10646 avec $\phi = 60\%$; pour les huiles de série V, on a : $\rho_{billes}/\rho_s \approx 1,08$, et $\phi = 58\%$. Pour toutes les courbes, à contrainte imposée, la viscosité augmente ou diminue avec le temps. La viscosité à l’état stationnaire diverge à l’infini lorsque le cisaillement passe au-dessous d’une contrainte critique. Avant chaque expérience, le matériau est précisailonné à 30 s^{-1} pendant 30 s afin d’obtenir un état initial reproductible.

contraintes critiques σ_c ont des valeurs très proches. *A contrario*, le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ augmente d'un ordre de grandeur lorsque la viscosité du solvant η_s diminue d'un ordre de grandeur.

Nous reviendrons plus particulièrement sur ces résultats et sur l'influence du fluide interstitiel sur les valeurs critiques lors de l'étude de la transition entre les deux régimes. Nous nous intéressons dans le paragraphe suivant aux différentes courbes d'écoulement.

3.4 Courbes d'écoulement des pâtes granulaires à contrainte imposée

Les courbes d'écoulement (contrainte appliquée en fonction du taux de cisaillement) des pâtes granulaires mettent également en évidence la bifurcation de viscosité. Les courbes d'écoulement de fluides à seuil « idéaux » ne possèdent pas de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et elles débutent à partir de 0 s^{-1} . Pour les fluides à seuil réels (voir fig. 3.7), le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ possède une valeur finie non nulle et par conséquent, il n'est pas possible d'obtenir un taux de cisaillement aussi petit que l'on veut à contrainte imposée, le taux de cisaillement minimum étant le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$.

La figure 3.7 regroupe les courbes d'écoulement à contrainte imposée pour les pâtes avec un solvant de viscosité η_s variable. Les pâtes sont isodenses pour $\eta_s = 1, 10, 100$, et $2300 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, et non-isodenses pour $\eta_s = 20, 100, 300, 500$, et $1000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$.

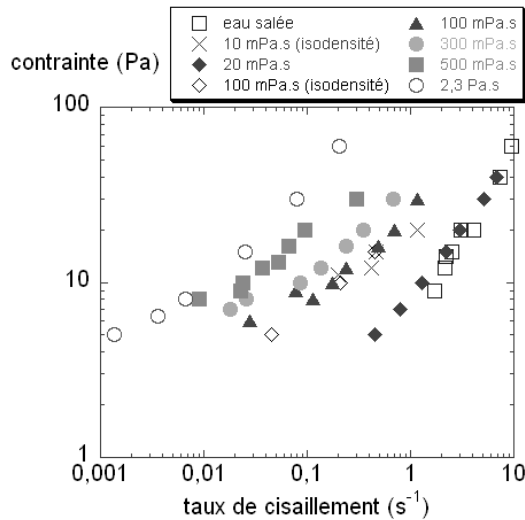


FIG. 3.7 – Courbes d'écoulement pour différentes viscosités η_s du solvant. Avant chaque expérience, le matériau est précisaillé à 30 s^{-1} pendant 30 s afin d'obtenir un état initial reproductible.

Sur la figure 3.7, on remarque que $\dot{\gamma}_c$ est d'autant plus petit que la viscosité du fluide interstitiel est grande, confirmant la tendance observée avec les valeurs du tableau 3.1. Par contre, σ_c a sensiblement la même valeur quelle que soit la viscosité η_s du solvant.

Il est possible d'adimensionner l'axe des abscisses de la figure 3.7 en la divisant par $\dot{\gamma}_c$. On obtient alors la figure 3.8.

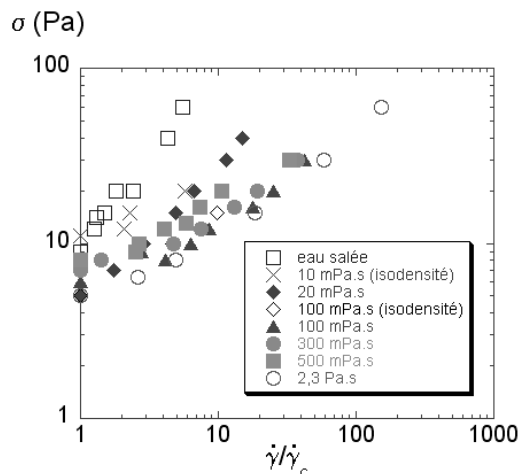


FIG. 3.8 – Courbes d'écoulement pour différentes viscosités η_s du solvant (axe des abscisses adimensionné par $\dot{\gamma}_c$) à contrainte imposée. Avant chaque expérience, le matériau est précisailé à 30 s^{-1} pendant 30 s afin d'obtenir un état initial reproductible.

Les courbes d'écoulement ne semblent pas tout à fait confondues. Au-delà d'environ 4 fois le rapport $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_c$ pour $\eta_s < 100 \text{ mPa.s}$, et au-delà d'environ 8 fois le rapport $\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_c$ pour $\eta_s \geq 100 \text{ mPa.s}$, les courbes sont quasi-newtoniennes. La pente de la partie newtonienne d'une courbe semble d'autant plus élevée que η_s est faible, mais il est toutefois difficile de dégager une tendance réellement claire quant à la variation de la pente des courbes. On ne peut donc pas conclure avec certitude que η_s joue un rôle non seulement sur $\dot{\gamma}_c$, mais aussi sur la viscosité apparente de la pâte pour $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$.

3.5 Courbes d'écoulement d'une pâte granulaire à taux de cisaillement imposé et à contrainte imposée

Intéressons-nous maintenant plus particulièrement à la pâte dont le solvant est de l'huile de silicone V20 ($\eta_s = 20 \text{ mPa.s}$). Il sera question de cette pâte jusqu'à la fin du chapitre suivant.

La figure 3.6(a) montre l'évolution de la viscosité avec le temps, pour différentes contraintes appliquées. Il y a une bifurcation de viscosité caractérisée par une contrainte critique σ_c de $5 \pm 3 \text{ Pa}$ et un taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ de $0,4 \pm 0,1 \text{ s}^{-1}$. Les expériences montrent ainsi qu'il y a soit un écoulement rapide, soit pas d'écoulement, à contrainte imposée.

Sur la figure 3.9 est tracée la courbe d'écoulement de la pâte, à contrainte et à taux de cisaillement imposée. La figure de gauche montre la courbe d'écoulement à taux de cisaillement imposé en échelle linéaire. Le choix de cette échelle permet de mettre en évidence la proportionnalité entre contrainte et taux de cisaillement : en ce qui concerne la viscosité de cisaillement, la pâte se comporte comme un fluide newtonien pour des taux de cisaillement élevés. La figure de droite montre les courbes d'écoulement à taux de cisaillement imposé et à contrainte imposée ; ces courbes sont en échelle logarithmique. Pour un fluide à seuil idéal, on a vu au chapitre 1 que tous les $\dot{\gamma}$ sont accessibles à contrainte imposée. Pour $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$, les courbes sont confondues : que l'on impose la contrainte ou le taux de cisaillement, l'écoulement est le même dans cette gamme de taux de cisaillement. Pour $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$, on ne peut tracer la courbe à contrainte imposée car la viscosité est infinie : l'écoulement s'arrête, et le taux de cisaillement est nul aux incertitudes expérimentales près. On constate qu'à contrainte imposée, la courbe d'écoulement obtenue n'est donc pas celle d'un fluide à seuil idéal : lorsque l'on impose une contrainte σ à peine supérieure à σ_c , il est impossible d'obtenir un taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ aussi petit que l'on veut : il y a au contraire écoulement avec un taux de cisaillement $\dot{\gamma}_c$ à une valeur non nulle et qui n'est pas négligeable.

Mais que se passe-t-il pour la courbe d'écoulement si, au lieu d'imposer la contrainte, on impose le taux de cisaillement ? Est-il possible d'obtenir des écoulements stables à des taux de cisaillement inférieurs à $\dot{\gamma}_c$?

En imposant le taux de cisaillement plutôt que la contrainte, nous trouvons qu'au-dessous de $\dot{\gamma}_c$, la contrainte mesurée est presque indépendante du taux de cisaillement, ce qui est souvent pris pour la signature d'un écoulement granulaire purement frictionnel [GDRMiDi, 2004, Ancy et Coussot, 1999, Coussot et Ancy, 1999b]. Pour des taux de cisaillement élevés ($\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$), la contrainte augmente avec le taux de cisaillement, comme pour un fluide visqueux (voir fig. 3.9 à droite). La courbe se confond alors avec la courbe à contrainte imposée. Ces observations permettent ainsi de définir une transition entre deux régimes d'écoulement très différents : un régime frictionnel et un régime visqueux.

Il existe par ailleurs une interrogation concernant la partie horizontale de la courbe : comment est-il possible d'associer pour différents taux de cisaillement la même contrainte ? Si plusieurs $\dot{\gamma}$ peuvent coexister pour un même σ , cela signifie également qu'il existe plusieurs viscosités η pour une même contrainte σ , ce qui n'est pas physique. Que se passe-t-il en réalité ? Les mesures des profils de vitesse des pâtes granulaires permettront de répondre à cette question.

3.6 Transition entre les régimes frictionnel et visqueux

Pour trouver ce qui détermine la transition entre les régimes frictionnel et visqueux, nous faisons varier la viscosité η_s du fluide interstitiel et nous mesurons la contrainte critique σ_c et le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ lors de la bifurcation de viscosité. Nous avons déjà observé précédemment que σ_c ne varie pas significativement et que $\dot{\gamma}_c$ varie inversement à η_s . Précisons cette variation.

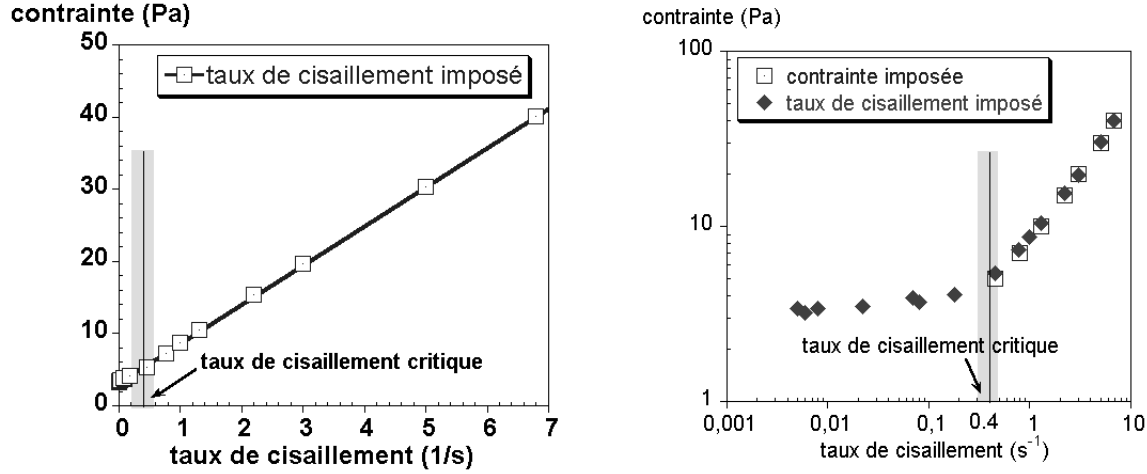


FIG. 3.9 – Courbes d'écoulement (contrainte en fonction du taux de cisaillement) pour une suspension de billes de polystyrène de $290 \pm 3 \mu\text{m}$ de diamètre à 58% de fraction volumique solide dans de l'huile de silicone à 20 mPa.s. La zone grisée est la barre d'erreur statistique. À gauche, la courbe obtenue est à taux de cisaillement imposée; elle est représentée en échelle linéaire. Cela permet de mettre en évidence le caractère newtonien du fluide à haut taux de cisaillement. À droite, les courbes sont obtenues à contrainte imposée (carrés) et à taux de cisaillement imposé (losanges). Elles sont représentées en échelle logarithmique, soulignant l'existence d'un plateau de contrainte à faible taux de cisaillement. À contrainte imposée, on n'obtient que la partie au-delà du taux de cisaillement critique, partie qui se confond avec la courbe à taux de cisaillement imposé.

La figure 3.10 montre les résultats obtenus avec toutes les viscosités η_s utilisées. On observe que le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ est inversement proportionnel à la viscosité du fluide interstitiel η_s , tandis que la contrainte critique σ_c est constante dans la limite des incertitudes expérimentales. Ce dernier résultat est cohérent avec ceux de Prasad *et al.* et Ancey *et al.*, qui cependant n'avaient étudié que deux viscosités différentes [Prasad and Kytömaa, 1995, Ancey and Coussot, 1999].

On a donc : $\dot{\gamma}_c \propto 1/\eta_s$. Le produit $\eta_s \dot{\gamma}_c$ est donc une constante. Or σ_c est également une constante, dans la limite des mesures expérimentales. Il est donc possible de créer un nombre adimensionnel de valeur constante à partir des grandeurs pertinentes et critiques du système que sont η_s , σ_c et $\dot{\gamma}_c$:

$$Le_c = \frac{\eta_s \dot{\gamma}_c}{\sigma_c},$$

que nous appelons le nombre de Leighton critique Le_c .

Plus généralement, nous appelons nombre de Leighton le nombre suivant :

$$Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}.$$

Supposons une viscosité du solvant η_s fixe. Dans le régime frictionnel, on a, d'après la courbe d'écoulement, $\sigma \approx \sigma_c$ et $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$, donc $Le < Le_c$. Dans le régime visqueux, on a, toujours d'après la courbe d'écoulement, $\eta_c \approx \eta$ soit $\dot{\gamma}_c/\sigma_c \approx \dot{\gamma}/\sigma$, donc $Le_c \approx Le$.

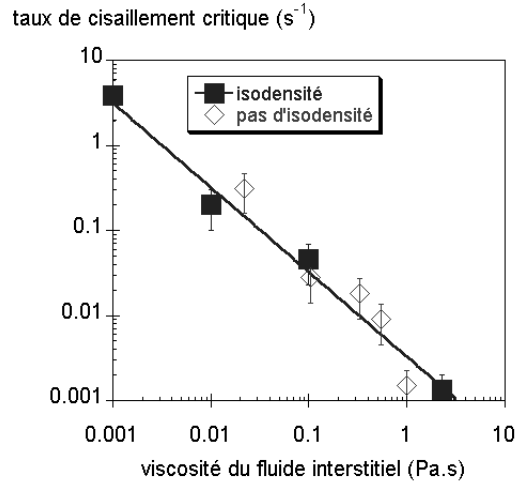


FIG. 3.10 – Taux de cisaillement critique en fonction de la viscosité du fluide interstitiel pour des billes de polystyrène dans un liquide newtonien. La droite est un ajustement en loi de puissance à partir les valeurs isodenses, avec une pente de $-0,99 \pm 0,10$.

Le nombre de Leighton critique Le_c est donc un nombre adimensionnel dont la valeur caractérise le régime d'écoulement de la pâte granulaire : régime frictionnel ou visqueux. En résumé, si $Le \approx Le_c$, le régime est visqueux et les forces de lubrification l'emportent sur les forces de friction, et si $Le < Le_c$, le régime est frictionnel et les forces de friction l'emportent sur les forces de lubrification.

Nous concluons donc de ces données que le paramètre pertinent caractérisant la transition frictionnelle/visqueuse pour la pâte granulaire est le nombre de Leighton $Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}$, et ce nombre représente le rapport entre forces de lubrification et forces frictionnelles [Ancey and Coussot, 1999, Coussot and Ancey, 1999b]. Ancey et Coussot ont montré auparavant la proportionnalité de ce nombre avec l'inverse des forces frictionnelles ; en faisant varier les forces de lubrification, nous pouvons conclure que la transition est entièrement déterminée par le nombre de Leighton.

La contrainte critique σ_c ne varie pas significativement ($\sigma_c = 5 \pm 3$ Pa), de sorte que l'ordre de grandeur de Le_c reste le même pour une viscosité η_s comprise entre 10^{-3} et $2,3$ Pa.s ($Le_c \approx (7 \pm 5) \cdot 10^{-4}$). L'ordre de grandeur de cette contrainte critique se retrouve en multipliant la viscosité η_0 de la suspension à bas taux de cisaillement et à l'état stationnaire par le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$. Comment estimer cette viscosité ?

Il existe plusieurs modèles qui donnent la viscosité à bas taux de cisaillement pour une suspension très concentrée de particules. Un modèle souvent utilisé et qui donne des valeurs en accord avec les résultats expérimentaux est le modèle semi-empirique de Krieger-Dougherty [Krieger and Dougherty, 1959, Larson, 1999] :

$$\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-[\eta]\phi_m} .$$

$[\eta]$ est la « viscosité intrinsèque » ; elle est déterminée expérimentalement et vaut 2,5 pour des sphères dures. Le développement limité de cette équation pour des suspensions de sphères dures diluées permet de retrouver l'équation d'Einstein $\eta = \eta_s(1 + 2,5\phi)$ (valable pour $\phi \lesssim 0,03$), qui est calculée à partir de la dissipation visqueuse produite par l'écoulement autour d'une sphère isolée [Einstein, 1906]. $[\eta]$, qui est sans dimension, est qualifié de « viscosité intrinsèque » car pour une suspension très diluée, le rapport η/η_s ne dépend que de $[\eta]$ dont la valeur est intrinsèquement liée aux particules (voir chapitre 1).

L'équation de Krieger-Dougherty donne $\sigma_c = \eta\dot{\gamma}_c \approx 1$ Pa. Cette valeur correspond bien à l'ordre de grandeur de σ_c , et cela explique également pourquoi la contrainte critique demeure constante. Le_c dépend bien sûr d'autres paramètres tels que la fraction volumique solide ϕ . Ainsi, on s'attend intuitivement à ce que σ_c augmente avec ϕ : plus il y a de particules dans la pâte, plus les contacts sont nombreux entre les particules (le réseau de contacts est plus étendu et moins éclaté), et donc plus il sera difficile de briser ces contacts pour faire s'écouler la pâte. Toutefois, pour prédire la variation de Le_c avec ϕ , il faut également établir l'évolution de $\dot{\gamma}_c$ avec ϕ et la comparer avec l'évolution de σ_c avec ϕ .

VanDamme *et al.* ont étudié la variation de σ_c en fonction de ϕ pour une pâte granulaire composée de silicate de calcium (constituant du ciment) dans de l'eau [VanDamme *et al.*, 2002]. La taille des particules varie de quelques microns à quelques dizaines de microns. VanDamme *et al.* ont montré que la contrainte critique σ_c est proche de zéro pour $\phi \approx 28\%$ (formation d'un gel fragile). Ainsi, au-dessous de cette valeur de $\phi \approx 28\%$, le régime frictionnel à bas taux de cisaillement a disparu. La contrainte σ_c augmente ensuite avec la fraction volumique ϕ . Toutefois, la contrainte normale N_1 ne prend une valeur significative qu'au-delà de $\phi \approx 37\%$, valeur inférieure aux empilements aléatoires le plus lâche ϕ_{rlp} et à l'empilement aléatoire compact maximal ϕ_{rcp} (voir chapitre 1). Pour VanDamme *et al.*, dans le cas de leur pâte de silicate de calcium, cette valeur de $\phi \approx 37\%$ correspond à une situation d'encombrement des particules (« jamming ») faisant intervenir non pas des sphères dures, mais des éléments floculés.

Une étude quantitative des évolutions de σ_c et de $\dot{\gamma}_c$ en fonction de ϕ pour notre pâte composée de billes de polystyrène reste à établir.

Toutes les expériences de rhéologie effectuées jusqu'à présent sont en accord avec l'hypothèse selon laquelle le régime à bas taux de cisaillement pour un fluide interstitiel à basse viscosité est frictionnel, dans le sens où le matériau se comporte comme un matériau granulaire sec. Nous nous sommes demandés si le second régime est visqueux. Dans un régime frictionnel, on s'attend à ce que le rapport des contraintes de cisaillement sur les contraintes normales σ/N_1 soit égal au coefficient de frottement des billes de polystyrène, et soit très différent dans le régime visqueux. L'étude des contraintes normales en fonction du taux de cisaillement peut donc permettre d'identifier ces deux régimes : elle fait l'objet du prochain paragraphe.

3.7 Contraintes normales

Nous avons mesuré, pour une pâte de billes de polystyrène de diamètre $0,29 \pm 0,03$ mm (58% en fraction volumique solide dans la pâte) dans de l'huile de silicone Rhodorsil à 20 mPa.s, la première différence de contraintes normales N_1 (en négligeant la deuxième différence N_2 , inférieure à N_1 d'au moins un ordre de grandeur [Larson, 1999]). La géométrie utilisée est une géométrie plan-plan (diamètre 40 mm) avec un entrefer de 5 mm ; les deux plaques sont couvertes de papier rugueux pour éviter le glissement aux parois. N_1 est mesuré grâce à un capteur permettant de relever les variations verticales de la contrainte exercée sur le plan (voir chapitre 2 et [Macosko, 1994]).

Traçons les courbes d'évolution de la contrainte tangentielle σ et de la première différence de contraintes normales N_1 en fonction du temps pour différents $\dot{\gamma}$. On s'aperçoit que, pour tout $\dot{\gamma}$, les contraintes σ et N_1 évoluent de la même manière jusqu'à un état stationnaire. N_1 est toujours 2 à 4 fois plus grand que σ (voir fig. 3.11), et ce, étonnamment, dans les deux régimes. Notons qu'en géométrie plan-plan, $\dot{\gamma}_c$ a une valeur proche de celle trouvée en géométrie de Couette : $\dot{\gamma}_c = 0,5 \pm 0,2s^{-1}$.

On trace alors les courbes de l'évolution du rapport $\mu_{eff} = \sigma/N_1$ (μ_{eff} est appelé coefficient de frottement effectif) en fonction du temps (voir fig. 3.12). Les contraintes normales N_1 et les contraintes visqueuses σ sont proportionnelles pour tout $\dot{\gamma}$, donc dans les deux régimes.

Le rapport σ/N_1 a été étudié pour plusieurs $\dot{\gamma}$, lorsque l'état stationnaire est atteint. La figure 3.13 montre que le rapport σ/N_1 ne varie pas significativement avec le taux de cisaillement, dans la limite des incertitudes expérimentales : $\sigma/N_1 = 0,39 \pm 0,15$ sur plus de quatre décades de taux de cisaillement, en couvrant les deux régimes (0,15 étant l'écart-type sur la moyenne). Les incertitudes sur σ/N_1 pour chaque $\dot{\gamma}$ couvrent les variations du rapport σ/N_1 en fonction du temps.

De précédentes expériences dans le régime « visqueux » sont cohérentes avec nos mesures [Bagnold, 1954, Prasad and Kytömaa, 1995, Hunt *et al.*, 2002] et, par des mesures directes de N_1 comme dans nos expériences, confirment la dépendance linéaire de σ en fonction de N_1 . Néanmoins, Ancy et Coussot ne trouvent pas de proportionnalité entre σ_c et à N_1 à fortes vitesses (ils observent que le couple est indépendant de la hauteur de cisaillement, alors que ce couple est proportionnel à la hauteur à faibles vitesses) [Ancy and Coussot, 1999]. Des contraintes normales peuvent-ils être générées dans le régime visqueux ? Il semble que cela soit possible : pour des suspensions dans lesquelles la dissipation d'énergie est visqueuse, Brady et Morris ont montré théoriquement que des contraintes normales proportionnelles au taux de cisaillement peuvent être générées par des interactions hydrodynamiques, à condition qu'elles soient couplées à des interactions frictionnelles de sphères dures [Brady and Morris, 1997]. Cependant, il n'y a pas de raison pour que le rapport σ/N_1 soit le même dans les régimes frictionnel et lubrifié comme nous l'avons observé expérimentalement. Cette surprenante observation est renforcée par le fait que le rapport σ/N_1 se rapproche du coefficient de frottement statique interne de milieux granulaires secs $\mu_s = 0,40 \pm 0,04$ obtenu de l'angle θ de la pente d'un tas de billes secs, avec $\mu_s = \tan \theta$ (voir fig. 3.14). Le tas de billes est réalisé en posant délicatement les billes

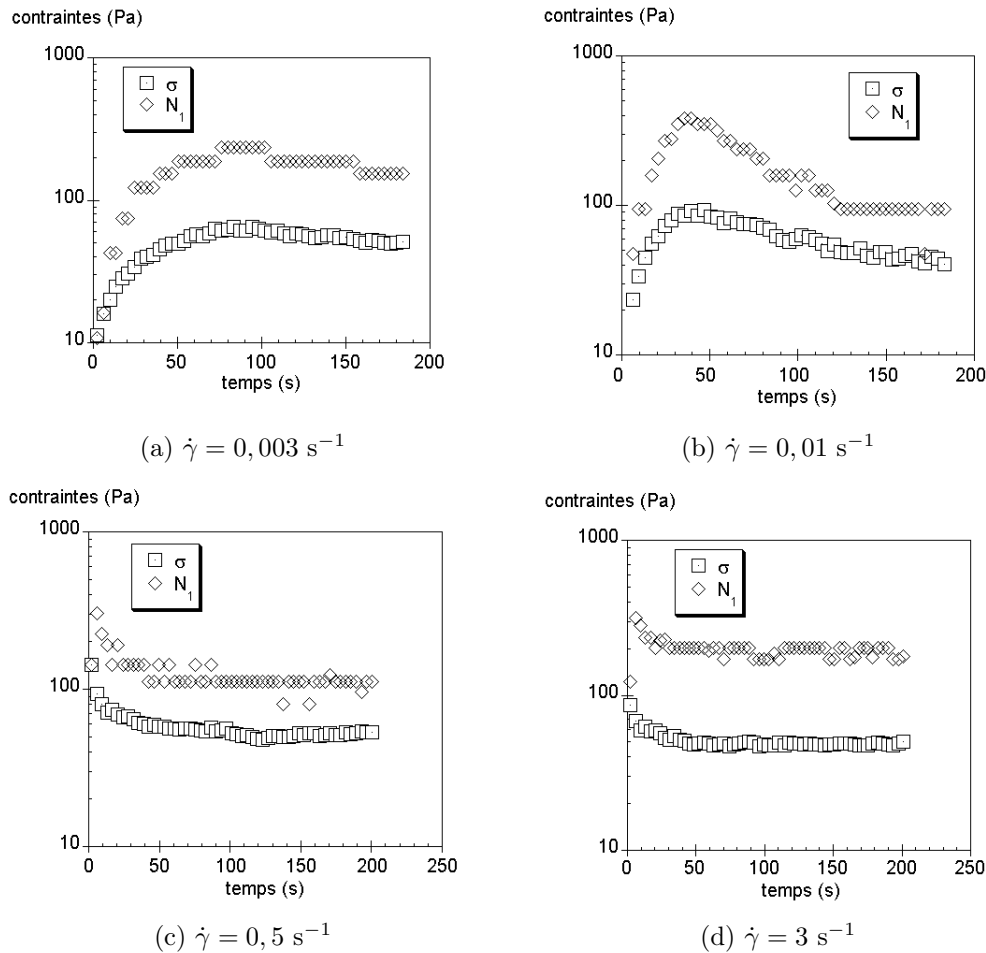


FIG. 3.11 – Évolution des contraintes tangentielles σ et normales N_1 en fonction du temps pour différents $\dot{\gamma}$, en géométrie P40 et pour entrefer de 5 mm (pâte préparée avec $\phi = 58\%$ et solvant à 20 mPa.s).

sur une surface plane recouverte de toile émeri (dont la rugosité est proche de celle des billes : le diamètre approximatif moyen des macrograins de la toile est de rugosité P50, soit de 336 μm . Voir chapitre 2.). L'incertitude sur le coefficient de frottement provient de l'incertitude sur la mesure de l'angle, à $\pm 2^\circ$. Cette incertitude prend en compte les mesures sur différents tas, ainsi que l'incertitude due à la mesure de l'angle sur l'image et au positionnement imparfait de l'appareil photo en face de la base du tas.

Pour des granulaires secs (avec des billes de polystyrène de 250 μm), en géométrie de Couette, le coefficient de frottement effectif $\mu_{eff} = \sigma/N_1$ est de $0,42 \pm 0,04$ pour tout $\dot{\gamma}$ (en appliquant $\dot{\gamma}$ croissant, il existe en fait un seuil de cisaillement au-dessous duquel μ_{eff} est constant – il y a écoulement saccadé ou « stick-slip » – et au-delà duquel μ_{eff} augmente sans dépasser 0,46 – il y a écoulement stationnaire localisé dans une zone de la taille de l'ordre de 5 billes près du cylindre intérieur tournant) [GDRMiDi, 2004].

Par comparaison avec nos expériences, nous en concluons que, dans le régime supposé

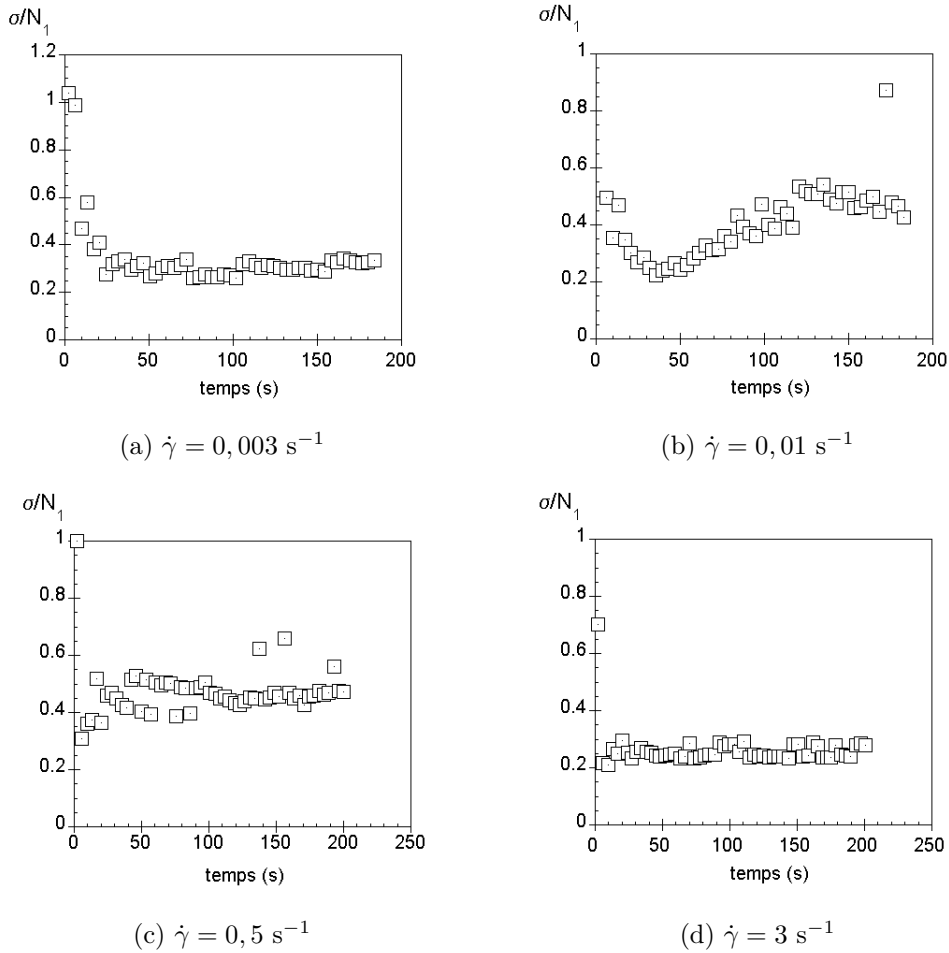


FIG. 3.12 – Évolution du rapport σ/N_1 en fonction du temps pour différents $\dot{\gamma}$, en géométrie P40 et pour entrefer 5 mm (pâte préparée avec $\phi = 58\%$ et avec un solvant à 20 mPa.s).

lubrifié au départ, le matériau partage des propriétés des milieux granulaires secs ($\mu_{eff} = \sigma/N_1$ ne varie pas significativement ou peu ; pour nos pâtes, on trouve que $\mu_{eff} = \sigma/N_1 \approx \mu_s$), tout en dissipant simultanément de manière visqueuse dans le fluide interstitiel (ce qui découle de $\eta \propto \eta_s$). Le régime lubrifié est donc également un régime frictionnel !

3.8 Mesure des propriétés locales

Ces surprenantes observations soulèvent les questions suivantes : Que se passe-t-il dans l'écoulement ? Quelle est la distinction réelle entre les deux régimes ? Pour tenter de répondre à ces questions, nous avons mené des expériences de rhéométrie en IRM (Imagerie par Résonance Magnétique) à vitesse imposée, qui fournissent une mesure directe de la distribution locale de vitesse dans le rhéomètre.

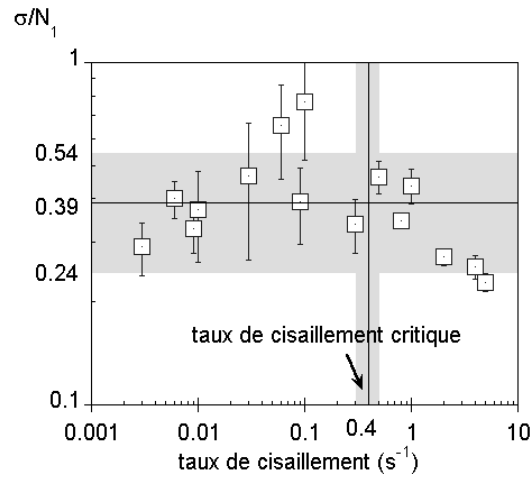


FIG. 3.13 – Rapport entre contraintes tangentielles et contraintes normales σ/N_1 en fonction du taux de cisaillement pour des billes de polystyrène dans de l'huile de silicone à 20 mPa.s (fraction volumique solide $\phi = 58\%$), à taux de cisaillement imposé. Les zones grisées correspondent aux barres d'erreur statistique. La ligne horizontale apparaît décentrée dans la zone grisée à cause de l'échelle logarithmique.

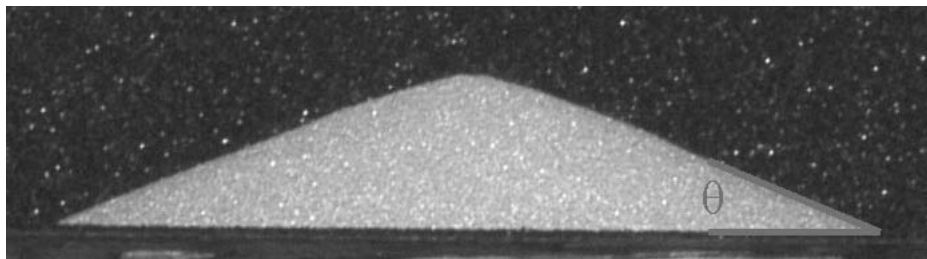


FIG. 3.14 – Photo d'un tas de billes de polystyrène. L'angle θ à la base du tas vaut ici $22,4^\circ$, ce qui donne un coefficient de frottement statique interne de $\mu_s = \tan \theta = 0,41$.

3.8.1 Dispositif expérimental

Le solvant utilisé pour élaborer la pâte est l'huile de silicone Rhodorsil V20 (20 mPa.s à 20°C) pour des raisons pratiques : rapidité de préparation de la pâte, évacuation rapide des bulles d'air sans centrifugation, $\dot{\gamma}_c$ au milieu de la gamme de taux de cisaillement du rhéomètre en IRM.

La géométrie utilisée est une géométrie de Couette (rayon du cylindre intérieur $R_i = 4,15$ cm, rayon du cylindre extérieur $R_e = 6$ cm, hauteur 11 cm). Les mesures de rhéométrie IRM t effectuée avec un système Bruker vertical de 0,5 T doté d'un rhéomètre maison. Les mesures sont effectuées sur la phase huileuse du système (cf. [Raynaud *et al.*, 2002, Rodts *et al.*, 2004a] pour une description détaillée du dispositif et des séquences IRM). Le cylindre intérieur, recouvert de toile émeri pour éviter le glissement, tourne à une vitesse de rotation V_i comprise entre 0,013 et 43,5 cm/s, ce qui donne un taux de cisaillement macroscopique compris entre $0,006$ s⁻¹ et $20,9$ s⁻¹, le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ étant $0,4 \pm 0,1$ s⁻¹ (soit $V_c = 1,04 \pm 0,26$ cm/s). Les expériences complémentaires de rhéométrie ont été réalisées sur une géométrie de même taille (rhéomètre de Couette Bohlin C-VOR 200).

3.8.2 Profils de vitesse

Nous obtenons avec les mesures en IRM les profils de vitesse dans l'entrefer de la géométrie de Couette (voir fig. 3.15).

Les résultats principaux issus de ces mesures en IRM sont que les profils de vitesse sont globalement d'allure exponentielle comme dans les matériaux granulaires secs [Mueth *et al.*, 2000], et qu'à faibles vitesses, ces profils ne se déploient que sur une petite partie de l'entrefer : en régime frictionnel, il y a localisation du cisaillement, c'est-à-dire seule une faible fraction du matériau est cisailée. Cependant, en augmentant la vitesse de rotation, et contrairement aux matériaux granulaires secs ², nous avons observé que plus la vitesse de rotation augmente, et plus la fraction cisailée du matériau est large (voir fig. 3.15). Dans le régime lubrifié, au-delà de $\dot{\gamma}_c = 0,4 \pm 0,1$ s⁻¹, tout l'échantillon est cisailé. Précisons que le taux de cisaillement $\dot{\gamma}_c$ trouvé en IRM est le même que le taux de cisaillement $\dot{\gamma}_c$ trouvé macroscopiquement : $\dot{\gamma}_c$ est ainsi le même pour deux entrefers différents. Cette augmentation de la zone cisailée pour des suspensions denses est similaire aux expériences en IRM de Raynaud *et al.*³ [Raynaud *et al.*, 2002].

Ainsi, nous avons trouvé que pour des vitesses de rotation $V_i \geq 2,1$ cm/s, les vitesses réduites $V(r)/V_i$ se confondent sur une courbe universelle. Ce n'est pas le cas pour

²Pour un granulaire sec, en régime stationnaire, seule une fine couche de particules autour du cylindre tournant se met en mouvement, et ce quelle que soit la vitesse de rotation du cylindre : c'est la localisation. La largeur de la couche est de l'ordre de 5 fois le diamètre d'une particule [GDRMiDi, 2004] : c'est à partir d'une telle largeur que l'on peut considérer que le milieu est continu. Voir également l'expérience simple décrite au début de l'introduction de ce chapitre.

³Des phénomènes de ségrégation similaires, résultant de la compétition entre gravité et cisaillement, ont été observés en plan-plan dans d'autres pâtes granulaires non isodenses [Barentin *et al.*, 2004, Lenoble *et al.*, 2005].

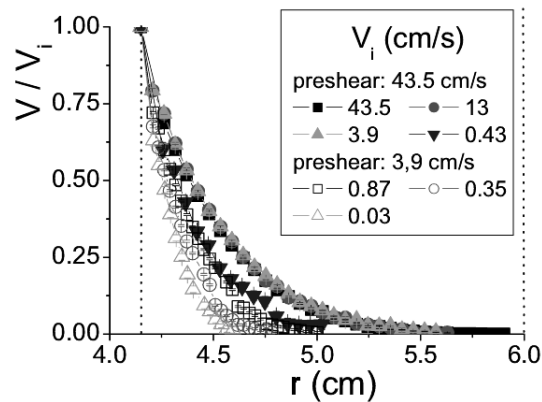


FIG. 3.15 – Vitesses adimensionnées avec la vitesse du cylindre intérieur [Huang *et al.*, 2005] (rayon du cylindre intérieur $R_i = 4,15$ cm, rayon du cylindre extérieur $R_e = 6$ cm, hauteur 11 cm ; la pâte a une fraction volumique solide de 58% et est composée de billes de polystyrène de diamètre $0,29 \pm 0,03$ mm et d’huile de silicone Rhodorsil de viscosité 20 mPa.s). Pour des raisons techniques, V_i peut varier entre 0,01 et 3,91 cm/s, ou entre 0,43 et 43,5 cm/s. Comme pour les expériences de rhéologie macroscopique, le matériau est précisailé à une vitesse de rotation $V_i = 43,5$ cm/s pendant 30 s. Pour le dispositif à basse vitesse, nous précisailons le matériau à la plus grande vitesse V_i de rotation possible, c’est-à-dire 3,91 cm/s, toujours pendant 30 s. Le cylindre intérieur rugueux tourne à une vitesse de rotation V_i comprise entre 0,013 et 43,5 cm/s, ce qui conduit à des taux de cisaillement compris entre $0,006$ s $^{-1}$ et $20,9$ s $^{-1}$, le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ étant $0,4 \pm 0,1$ s $^{-1}$ (ou $V_c = 1,04 \pm 0,26$ cm/s).

$V_i < 2,1$ cm/s (la figure 3.15 ne montre que quelques profils de vitesse). Cependant, dans le régime frictionnel, donc pour de faibles vitesses, le comportement est seulement différent dans le sens où une plus petite fraction du matériau est cisailée. Dans ce régime, les vitesses réduites $V(r)/V_i$ (V_i étant la vitesse du cylindre intérieur tournant) se confondent sur une courbe universelle unique pourvu qu’elles soient tracées comme fonction des coordonnées réajustées $(r - R_i)/d_c(V_i)$ (Fig. 3.16).

La longueur $d_c(V_i)$ est la distance de coupure qui donne simplement l’épaisseur du matériau cisailé dans l’entrefer. Pour $r > d_c$, le matériau n’est plus cisailé. Par ailleurs, nous avons trouvé que ce réajustement universel du profil de vitesse s’applique également aux matériaux granulaires secs : les données de [GDRMiDi, 2004, da Cruz, 2004] se placent sur la même courbe universelle (Fig. 3.16), soulignant le caractère universel des profils de vitesse globalement exponentiels. La figure 3.17 donne la taille de la région cisailée d_c en fonction de la vitesse de rotation. Partant des basses vitesses de V_i , d_c augmente jusqu’à occuper tout l’entrefer pour $V_i > V_c = 2$ cm/s. V_c correspond en fait à la transition entre les deux régimes, c’est-à-dire au taux de cisaillement critique ; au-delà de cette valeur, la région cisailée a envahi tout l’entrefer.

La distance d_c est légèrement plus petite pour un précisaillement à 9 tr/min : d_c peut donc dépendre de la préparation. C’est probablement le résultat d’un effet de sédimentation car la resuspension est plus efficace à 100 tr/min. Cependant, cela n’affecte pas

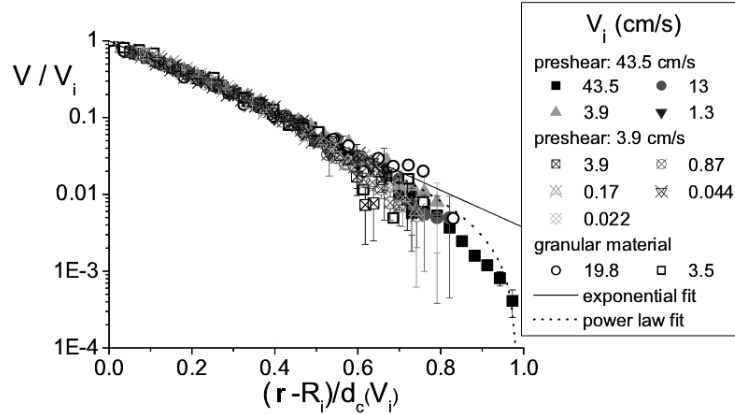


FIG. 3.16 – Profils de vitesse mesurés dans une géométrie de Couette [Huang *et al.*, 2005]. Nous traçons V/V_i en fonction de $(r - R_i)/d_c(V_i)$ où R_i est le rayon du cylindre intérieur et d_c un paramètre ajustable ; nous traçons également les données extraites de [GDRMiDi, 2004, da Cruz, 2004] pour un matériau granulaire sec (grains de moutarde de 1 mm) en géométrie de Couette ($R_i = 3$ cm, $R_e = 6$ cm). La droite est un ajustement exponentiel : $V/V_i = e^{-5,6 \frac{r-R_i}{d_c(V_i)}}$; la courbe en pointillé est un ajustement pour un fluide en loi de puissance d'exposant $n = 0,13$.

la généralité de nos résultats : des expériences de rhéométrie effectuées dans les deux conditions de pré-cisaillement montrent peu de différences.

Au-delà de la longueur $d_c(V_i)$, la vitesse est nulle aux incertitudes expérimentales près. La viscosité est donc infinie dans la bande non cisailée : il y a établissement d'un seuil d'écoulement au sein même de la pâte. La contrainte à $d_c(V_i)$ pour les écoulements localisés vaut $1,5 \pm 1$ Pa, ce qui est cohérent avec l'ordre de grandeur de la contrainte critique calculée précédemment.

Ces dernières observations nous permettent de comprendre naturellement les données macroscopiques de rhéologie. Dans le premier régime (« frictionnel »), à taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ (moyen) imposé, un écoulement stationnaire ne peut être atteint sans localisation : il y a coexistence entre une région non-cisailée et une région cisailée (existence d'une bande de cisaillement). Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ imposé est certes inférieur à $\dot{\gamma}_c$, mais cela ne correspond pas au $\dot{\gamma}$ réel mesuré sur la zone réellement cisailée : dans cette zone, $\dot{\gamma}$ est supérieur ou égal à $\dot{\gamma}_c$. La contrainte σ mesurée à la paroi reste néanmoins constante en fonction de $\dot{\gamma}$ dans ce régime : σ ne varie pas dans la mesure où la variation de la taille de la zone cisailée suffit à satisfaire d'une part la condition imposée par l'application de $\dot{\gamma}$, d'autre part par le fait que $\dot{\gamma}$ réel doit être supérieur à $\dot{\gamma}_c$.

Il en résulte donc un plateau horizontal de contrainte dans le régime frictionnel (traduisant la constance de la contrainte dans ce régime) similaire aux plateaux de contrainte observés pour certains surfactants et certaines solutions de polymères, plateaux expliqués de la même manière par des bandes de cisaillement [Lu *et al.*, 2000]. En augmentant $\dot{\gamma}$, la zone cisailée augmente de taille jusqu'à envahir tout l'entrefer lorsque $\dot{\gamma}$ est égal ou

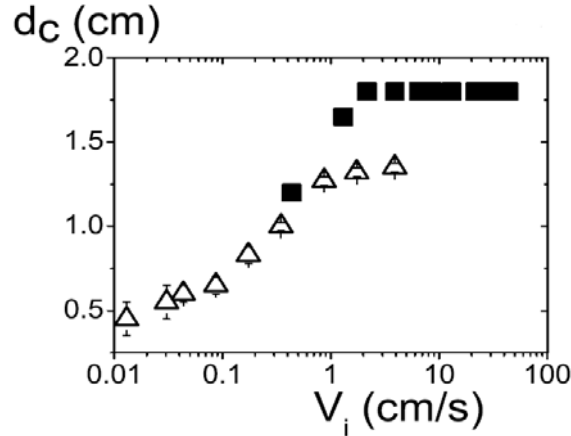


FIG. 3.17 – Distance de coupure d_c en fonction de la vitesse du cylindre intérieur V_i pour un précisaillement de 3,9 cm/s (triangles creux) et un précisaillement de 43,5 cm/s (carrés) [Huang *et al.*, 2005]. d_c est de la taille de l'entrefer pour $V_i \geq V_c$: l'écoulement envahit alors tout l'entrefer.

supérieur à $\dot{\gamma}_c$: le $\dot{\gamma}$ réel est alors égal au $\dot{\gamma}$ appliqué. Tout l'entrefer étant cisailé, il n'y a plus de bande de cisaillement et σ augmente avec $\dot{\gamma}$.

La transition entre le régime « frictionnel » et le régime « lubrifié » survient donc lors de la disparition de la coexistence entre zone cisailée et zone non-cisailée.

3.8.3 Lien entre mesures microscopiques et macroscopiques

Dans l'entrefer, le taux de cisaillement local décroît exponentiellement (voir fig. 3.15). De plus, dans une géométrie de Couette, la contrainte varie typiquement en $1/r^2$ d'après la conservation du moment, comme nous allons le voir. La viscosité varie donc dans l'entrefer. Dès lors, peut-on définir une viscosité pour la pâte, dans le régime visqueux tout du moins, qui pourrait caractériser complètement sa résistance à l'écoulement ? Y a-t-il cohérence entre la viscosité « globale » mesurée macroscopiquement, sans se préoccuper du profil de vitesse, et la viscosité « locale » de la pâte ?

Il est possible de mesurer localement, c'est-à-dire à une distance r donnée de l'axe du cylindre, la viscosité du matériau à partir d'un profil de vitesse. S'il est possible de définir une viscosité au matériau, alors, pour une même sollicitation, la viscosité locale issue d'un profil de vitesse doit être identique à la viscosité globale mesurée dans les expériences classique en cellule de Couette.

Comment déterminer la viscosité locale ?

Si nous supposons que le matériau est un milieu continu en écoulement stationnaire, la conservation du moment dynamique conduit à :

$$\mathcal{M} = F \times r = \sigma(r)S(r) \times r = \text{constante} \quad \text{avec} \quad S(r) = 2\pi rh,$$

h étant la hauteur du cylindre intérieur dans la cellule de Couette, R_i son rayon, r la

distance à l'axe du cylindre. La conservation du moment en r et en R_i mène à :

$$\sigma(r)S(r)r = \sigma(R_i)S(R_i)R_i, \quad \text{soit} \quad \sigma(r)r^2 = \sigma_i R_i^2$$

ou encore, en notant $\sigma_i = \sigma(R_i)$,

$$\sigma(r) = \sigma_i \frac{R_i^2}{r^2}.$$

La contrainte varie donc en $1/r^2$ dans l'entrefer. Notons que cette relation est indépendante de l'équation constitutive du matériau.

Or le taux de cisaillement est la dérivée spatiale du profil de vitesse (pente du profil), et celui-ci varie dans l'entrefer. Le matériau est donc sollicité radialement à un taux de cisaillement différent : en supposant la décroissance en $1/r^2$ dans l'entrefer et connaissant la contrainte à la paroi intérieure, on dispose alors avec un seul profil de vitesse d'un moyen de mesurer localement la viscosité dans l'entrefer pour toute une gamme de taux de cisaillement.

La comparaison entre les courbes d'écoulement issues des mesures locales et globales se trouve sur la figure 3.18 pour différentes vitesses de rotation.

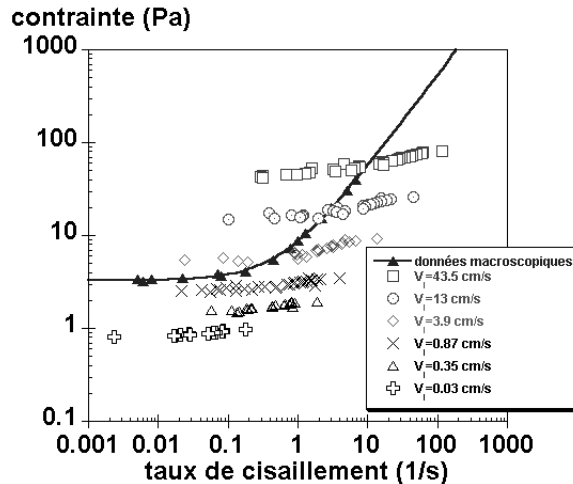


FIG. 3.18 – Contrainte en fonction du taux de cisaillement calculée des profils de vitesse pour différentes vitesses de rotation et mesurée macroscopiquement (données identiques à la fig. 3.9).

Il y a deux surprises : premièrement, les données ne sont pas cohérentes entre les différentes expériences en IRM, et deuxièmement, celles-ci sont incohérentes avec les données des mesures globales de rhéologie. Ce résultat est classique pour les milieux granulaires secs, ceux-ci présentant de grandes inhomogénéités, mais pas évident *a priori* pour des pâtes granulaires, car ces dernières ne peuvent se dilater autant que les granulaire secs à cause du fluide interstitiel. Nous sommes donc amenés à conclure que les profils de vitesse ne sont pas cohérents avec les données macroscopiques de rhéologie, aussi bien lorsque qu'il y a une zone non-cisaillée dans le matériau que lorsque tout le matériau est cisaillé. Les raisons possibles pour cette incohérence sont une inhomogénéité du matériau, ou encore l'inexistence d'une équation constitutive simple reliant la contrainte de cisaillement

au taux de cisaillement pour le matériau (comme pour les matériaux granulaires secs [GDRMiDi, 2004]).

D'où la question : que se passe-t-il dans le régime lubrifié ? Il est raisonnable de penser que, même si des chaînes de forces sont présentes dans le matériau cisailé, il y a conservation du moment, tout du moins en moyenne ; ainsi, $\sigma \propto \sigma_i/R^2$. En combinant ceci avec la décroissance exponentielle du profil de vitesse, et en calculant une viscosité locale avec le rapport des deux quantités, il s'ensuit que cette viscosité locale est petite près du cylindre intérieur tournant, et augmente en s'éloignant de ce cylindre tournant. Ceci est en réalité facile à concevoir, pourvu que la concentration en particules est légèrement plus petite près du cylindre intérieur, et augmente avec le rayon. Ce profil de concentration non constant dans l'entrefer peut résulter de la migration des particules vers des zones plus faiblement cisillées, c'est-à-dire dans le cas présent près du cylindre extérieur fixe.

Le profil de la viscosité η en fonction de la fraction volumique solide ϕ peut être évalué grâce aux profils de vitesse et de concentration dans l'entrefer issus des mesures locales en IRM. En comparant ce profil issu de mesures locales avec un profil issu de mesures macroscopiques (profil qui peut être ajusté au modèle de Krieger-Dougherty [Krieger and Dougherty, 1959, Larson, 1999]), il serait possible de relier les viscosités macroscopique et microscopique. Cette étude fait l'objet du chapitre 4.

3.9 Conclusion

En conclusion, nous avons étudié la transition entre les écoulements frictionnel et lubrifié d'une suspension dense. Nous avons montré que la bifurcation de viscosité est caractérisée, à contrainte imposée, par une transition entre un état coincé et un état d'écoulement. À taux de cisaillement imposé, cette bifurcation est caractérisée par une transition entre un écoulement localisé dans une certaine épaisseur du matériau et un écoulement dans tout l'entrefer, donc sans localisation. Dans les deux cas, à contrainte et à taux de cisaillement imposés, la transition entre les deux régimes se fait au taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$.

La bifurcation de viscosité donne à la fois la contrainte critique σ_c et le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$, $\dot{\gamma}_c$ étant inversement proportionnel à la viscosité η_s du fluide interstitiel et σ_c étant constant en fonction de η_s . Une interprétation du comportement rhéologique d'une pâte granulaire est la compétition entre vieillissement et rajeunissement (voir chapitre 1) de la pâte pendant l'écoulement.

Nous avons montré que le nombre de Leighton critique, rapport entre forces de lubrification et forces frictionnelles, calculé à partir de la contrainte critique, du taux de cisaillement critique et de la viscosité du solvant, régit complètement la transition entre les deux régimes. Dans le régime « frictionnel », le cisaillement est localisé dans une zone qui augmente avec le taux de cisaillement macroscopique, au contraire des écoulements granulaires secs. De plus, le régime « lubrifié » n'est pas simplement visqueux : le rapport entre contraintes normales et de cisaillement est constant, les profils de vitesse sont globalement exponentiels et peuvent être réajustés de manière universelle dans les deux

régimes. Nous avons également montré que, pour tout $\dot{\gamma}$, $\sigma/N_1 \approx \mu_s$.

Finalement, le désaccord entre les courbes d'écoulement microscopique et macroscopique suggère que le matériau est inhomogène, ou qu'il n'existe pas de relation constitutive simple en régime lubrifié. Il est en tout cas impossible de définir une viscosité macroscopique qui ne dépende pas du système ou de la géométrie, à la fois dans les régimes frictionnel et lubrifié.

Chapitre 4

Définition de la viscosité pour une suspension concentrée

Sommaire

4.1	Introduction	83
4.2	Évolution de la viscosité dans la pâte	84
4.3	Profil de concentration dans l'entrefer en cellule de Couette IRM	87
4.4	Comparaison entre viscosité globale et locale en fonction de la fraction volumique solide	89
4.5	Conclusion	92

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, deux méthodes ont été utilisées pour mesurer la viscosité, c'est-à-dire la résistance à l'écoulement, d'une pâte granulaire.

La première méthode consiste en une mesure macroscopique : dans une cellule de Couette, on applique une contrainte (resp. une vitesse de rotation) au cylindre intérieur et on mesure une vitesse de rotation (resp. la contrainte) dans le fluide. On ne se préoccupe alors pas de ce qui se passe dans la pâte et, en particulier, on ne se préoccupe pas du profil de vitesse en son sein. On obtient donc la viscosité pour différents taux de cisaillement moyens, et également la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement moyen).

La deuxième méthode fournit une mesure locale : toujours dans une cellule de Couette, on étudie la pâte dans un IRM et on mesure les profils de vitesse pour différentes vitesses du cylindre intérieur. Des profils de vitesse, exponentiels pour notre pâte, on déduit une variation du taux de cisaillement dans l'entrefer. De la conservation du moment dynamique, on déduit une variation en $1/r^2$ de la contrainte. On obtient donc, à une distance r de l'axe et dans l'entrefer, la viscosité locale de la pâte en fonction du taux de cisaillement. En regroupant les résultats pour tous les r dans l'entrefer, on obtient la viscosité

pour différents taux de cisaillement, et également la courbe d'écoulement (courbe de la contrainte en fonction du taux de cisaillement).

Si ces deux méthodes globale et locale sont équivalentes, c'est-à-dire si on retrouve les mêmes résultats dans les deux cas, alors la viscosité mesurée en géométrie de Couette est bien une donnée traduisant les propriétés caractéristiques de la pâte lors de sa résistance à l'écoulement. Il serait donc possible de définir une viscosité pour la pâte, dans cette géométrie tout du moins.

Or, de manière surprenante, nous avons vu dans le chapitre précédent que les résultats issus des données locales et globales ne se recoupent pas. À cause de cette incohérence, on ne peut pas définir une viscosité pour la pâte granulaire, car sa valeur dépendra par exemple de l'entrefer de la cellule de Couette. Comment rendre compte de cette incohérence ?

Les données globales donnent une viscosité moyennée de la pâte, à une certaine fraction volumique, sur tout l'entrefer. Les données locales, elles, portent sur la viscosité en un point de l'entrefer. On peut se demander si la viscosité varie dans l'entrefer : à la fin du chapitre précédent, nous avons vu que celle-ci devrait diminuer lorsque l'on s'éloigne du cylindre intérieur tournant, alors même que le taux de cisaillement diminue également. Une explication serait que la fraction volumique, donc la concentration en particules, serait plus élevée dans les zones de cisaillement faible. Cela signifierait que la viscosité locale déterminée par les profils de vitesse correspond à un taux de cisaillement donné, mais aussi à une fraction volumique donnée. Cela pourrait peut-être expliquer la différence entre la viscosité moyennée sur tout l'entrefer et la viscosité locale : en fait, ces viscosités ne correspondent pas à la même fraction volumique.

Nous allons étudier l'évolution locale de la viscosité dans l'entrefer. Puis, à l'aide de l'IRM, il s'agira de déterminer le profil de concentration des particules dans l'entrefer pour tenter d'expliquer l'incohérence des données globales et locales de viscosité et pour pouvoir, finalement, définir une viscosité pour une pâte granulaire, au moins dans une géométrie de Couette cylindrique.

4.2 Évolution de la viscosité dans la pâte

Les mesures en IRM permettent de mesurer le profil de vitesse. Comment, à partir de ces profils, déterminer l'évolution de la viscosité dans l'entrefer ? Pour mesurer cette évolution, il faut préalablement connaître la variation de la contrainte et du taux de cisaillement.

Comme on suppose que la conservation du moment dynamique est vérifiée, la contrainte décroît en $1/r^2$ dans l'entrefer. Pour connaître quantitativement le profil de contrainte dans l'entrefer, il suffit alors de connaître la contrainte sur le cylindre intérieur. Toutefois, l'appareil IRM n'étant pas un rhéomètre à proprement parler, il ne permet pas la mesure de cette contrainte (voir chapitre 2). Pour la mesurer, on utilise un rhéomètre de Couette de même dimension que la cellule en IRM : on y place la pâte granulaire et on impose au cylindre intérieur la même vitesse imposée que pour la mesure en IRM. La

contrainte mesurée est alors la contrainte recherchée. Les expériences en IRM sur les pâtes granulaires ont été effectuées par Guillaume Ovarlez du LMSGC de Champs-sur-Marne.

L'évolution du taux de cisaillement est déterminée directement à partir du profil de vitesse.

La figure 4.1 montre l'évolution du taux de cisaillement et de la contrainte dans l'entrefer, pour une vitesse à la paroi du cylindre intérieur $V_i = 43,5$ cm/s, soit 100 tr/mn. La figure 4.2 montrent les profils de vitesse dont sont tirées les courbes d'écoulement qui ont été comparées à la courbe d'écoulement macroscopique (voir fig. 3.16).

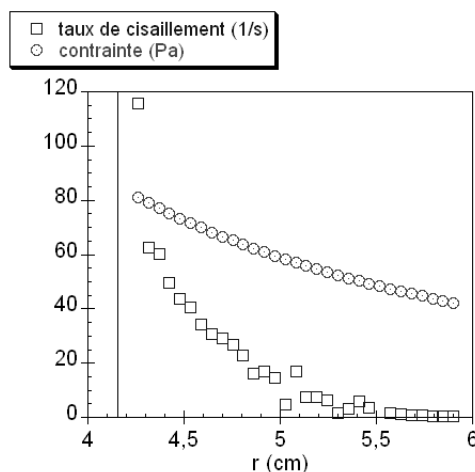


FIG. 4.1 – Évolution du taux de cisaillement et de la contrainte dans l'entrefer, pour une vitesse à la paroi du cylindre intérieur $V_i = 43,5$ cm/s, soit 100 tr/mn. La fraction volumique moyenne de la pâte est de 58%. Le trait à $R_i = 4,15$ cm délimite le rayon du cylindre intérieur.

Le phénomène de localisation est bien visible sur la figure 4.2. En effet, on voit que les trois profils de vitesse à basse vitesse V_i ne s'étendent pas dans tout l'entrefer. Pour ces profils, le matériau n'est cisailé que dans une zone de l'entrefer comprise entre R_i et $R_i + d_c$, avec d_c la distance de coupure séparant la zone cisailée de la zone à vitesse nulle (voir chapitre 3).

À partir de ces profils, on détermine l'évolution de la viscosité dans l'entrefer (voir fig. 4.3).

La viscosité augmente bien lorsque l'on s'approche du cylindre extérieur pour les trois vitesses imposées au cylindre intérieur, comme il était supposé précédemment en considérant les évolutions du taux de cisaillement et de la contrainte.

On remarque que les profils de viscosité $\eta(r)$ ne se superposent pas à basse vitesse ($V_i < 3,9$ cm/s). Il y a deux explications à cela : la localisation et l'approximation newtonienne du comportement du fluide.

La localisation est la première raison pour laquelle les profils de viscosité ne coïncident pas entre eux. En effet, dans les expériences en Couette cylindrique telles que $R_i = 4,15$ cm et $R_e = 6$ cm (entrefer de 1,85 cm), la vitesse critique V_c est de $1,04 \pm 0,26$ cm.s⁻¹. Lorsque $V_i < V_c$, l'écoulement est localisé et ne s'étend que sur une longueur d_c plus petite que

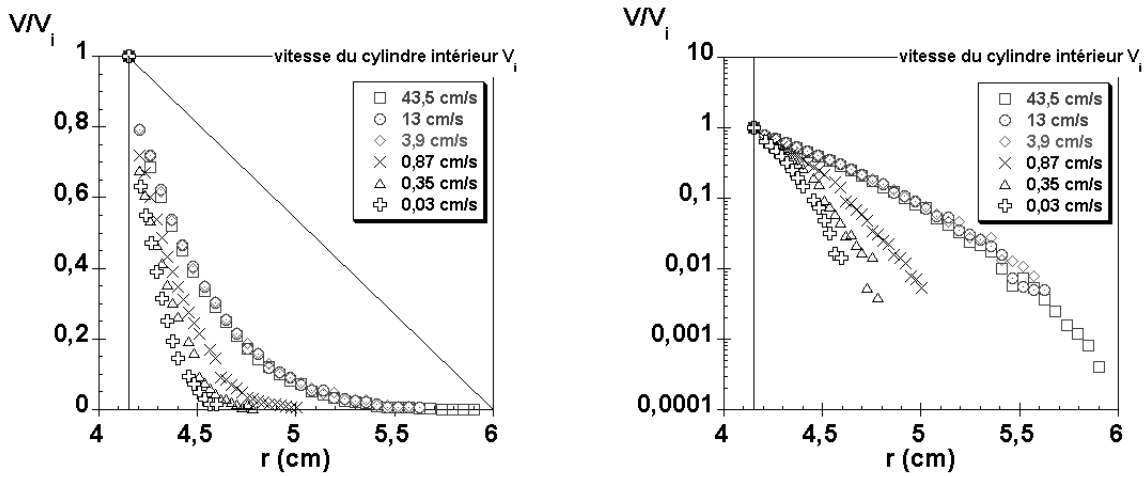


FIG. 4.2 – Profils de vitesse pour une pâte de fraction volumique moyen à 58%. Les vitesses sont adimensionnées par la vitesse du cylindre intérieur V_i (à gauche, en coordonnées linéaires ; à droite, en coordonnées semi-logarithmiques). Le trait à 4,15 cm délimite le rayon du cylindre intérieur R_i .

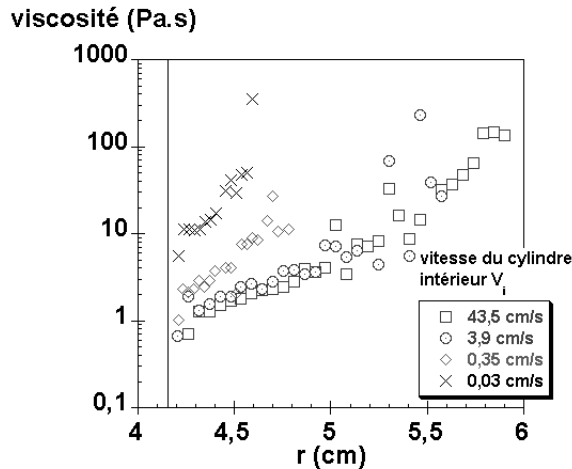


FIG. 4.3 – Viscosité de la pâte granulaire dans l'entrefer de la cellule de Couette. Le trait à 4,15 cm délimite le rayon du cylindre intérieur R_i .

l'entrefer : il n'y a pas d'écoulement pour $r > d_c$. La localisation se traduit donc par une vitesse nulle (voir fig. 4.2) dans la zone non cisailée, et par conséquent par une viscosité qui diverge vers l'infini (voir fig. 4.3) dans l'entrefer, même pour une valeur de $r < R_e$, et pas à $r = R_e$ comme c'est le cas quand l'écoulement se fait dans tout l'entrefer (la vitesse étant alors nulle seulement pour $r = R_e$).

L'approximation newtonienne du comportement du fluide est la seconde raison pour laquelle les profils de viscosité ne coïncident pas entre eux. À des vitesses V_i élevées, la courbe d'écoulement du fluide est linéaire et on peut donc considérer que le fluide est newtonien (voir fig. 3.9 à gauche). Cette approximation n'est plus valable à de faibles vitesses.

Dans nos expériences, les profils de viscosité pour $V_i = 0,35 \text{ cm.s}^{-1}$ et $V_i = 0,03 \text{ cm.s}^{-1}$ ne se superposent pas aux autres. À de telles vitesses, la contrainte de cisaillement n'est pas proche de zéro, ce qui serait le cas pour un fluide newtonien ; au contraire, la contrainte est égale à la contrainte critique (voir fig. 3.9 à droite). Cette contrainte contribue significativement à la viscosité dans la zone cisailée, et par conséquent la viscosité apparente dans cette zone est plus élevée que pour les autres profils. Quantitativement, pour un fluide de Bingham et à une vitesse $V_i = 0,03 \text{ cm.s}^{-1}$, la taille de la zone cisailée d_c est de $0,5 \pm 0,06 \text{ cm}$. Le taux de cisaillement correspondant vaut donc $\dot{\gamma} = V_i/d_c = 0,06 \pm 0,01 \text{ s}^{-1}$. La contrainte de cisaillement à cette vitesse V_i vaut¹ $\sigma_i \approx 1,5 \text{ Pa}$. D'où la viscosité moyenne pour un fluide de Bingham : $\eta_b = \sigma_i/\dot{\gamma} \approx 25 \text{ Pa.s}$. En supposant le fluide newtonien, un ajustement sur la courbe d'écoulement donne une viscosité moyenne $\eta_m \approx 5 \text{ Pa.s}$. Il y a donc un ordre de grandeur d'environ 5 entre les viscosités issues des modèles newtoniens et de Bingham. Cette différence se retrouve sur les profils de viscosité de la figure 4.3. Ainsi, le fait qu'à très basses vitesses le fluide doit être considéré comme un fluide de Bingham, et non pas comme un fluide newtonien, est la seconde raison pour laquelle le profil de vitesse $\eta(r)$ n'est pas indépendant de la vitesse de rotation V_i .

Les résultats issus des profils de viscosité montrent donc que la viscosité est plus basse près du cylindre intérieur tournant, et plus élevée près du cylindre extérieur fixe. Cette augmentation de viscosité dans l'entrefer suggère qu'un gradient de densité de particules se développe lors de l'écoulement. Ce gradient pourrait également expliquer pourquoi les profils de vitesse décroissent rapidement dans la cellule de Couette de l'IRM (dont le rapport d'aspect est $R_i/R_e = 0,67$), alors que l'on s'attendrait à des profils quasi-linéaires d'après les profils de vitesse théoriques de la figure 2.3 (b) du chapitre 2².

Nous cherchons alors à mesurer ce profil de concentration avec l'IRM.

4.3 Profil de concentration dans l'entrefer en cellule de Couette IRM

La technique IRM est également utilisée pour la mesure du profil de concentration des particules dans l'entrefer. Elle est fondée sur l'intensité du signal IRM en un point de l'entrefer (voir chapitre 2). Ce signal provient de la phase liquide de la pâte ; son intensité est donc d'autant plus intense que la fraction volumique de billes est faible.

La mesure de la fraction volumique par cette méthode se fait à $\pm 0,5\%$. Comme pour les mesures de profil, on précisaille pendant 30 s la pâte à $3,9 \text{ cm/s}$ (9 tr/mn) pour des mesures à des vitesses inférieures à $0,43 \text{ cm/s}$ (1 tr/mn), et à 43 cm/s (100 tr/mn) pour des mesures à des vitesses plus élevées, et une mesure dure 3 minutes. Notons que le

¹Cette contrainte est mesurée dans une cellule de Couette de dimensions identiques à celle de l'IRM. Dans la cellule de Couette à petit entrefer, la contrainte est plus élevée, probablement à cause d'effets de migration moins marqués.

²Pour $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$, et donc en régime non localisé, le comportement du fluide est newtonien, ce qui correspond à la courbe de $n = 1$ sur la figure 2.3 (b) du chapitre 2.

dispositif ne permet pas de mesurer la fraction volumique à moins de 2 voire 3 mm des cylindres intérieur ou extérieur.

La figure 4.4 montre le profil de concentration des billes de polystyrène dans l'entrefer en régime stationnaire, pour une pâte de fraction volumique moyenne de 58% et pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur.

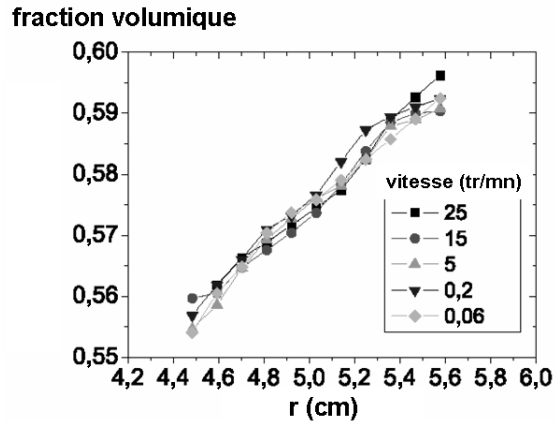


FIG. 4.4 – Fraction volumique ϕ dans l'entrefer de la cellule de Couette IRM pour une pâte granulaire de fraction volumique moyenne de 58% en régime stationnaire, pour différentes vitesses de rotation du cylindre intérieur.

On observe que la fraction volumique croît linéairement avec r à partir du cylindre intérieur tournant. La fraction volumique n'est donc pas constante mais varie dans l'entrefer : la pâte n'est pas homogène. Comme l'évolution de la viscosité dans l'entrefer le laissait supposer, la fraction volumique est plus grande dans les zones faiblement cisillées. Ceci confirme qualitativement l'idée que la viscosité varie dans l'entrefer à cause d'une diffusion des particules induite par le cisaillement (migration) [Leighton and Acrivos, 1987, Phillips *et al.*, 1992, Acrivos, 1995, Shauly *et al.*, 1998, Lagrée and Lhuillier, 2006b] (voir chapitre 1). Les profils de densité expérimentaux sont croissants avec r , comme les profils théoriques de Lagrée et Lhuillier [Lagrée and Lhuillier, 2006b]. Néanmoins, les profils expérimentaux sont également linéaires, alors que les profils théoriques sont légèrement incurvés. Les profils expérimentaux correspondent peut-être à des cas particuliers du modèle théorique de Lagrée et Lhuillier.

Par ailleurs, de manière très surprenante, on remarque que le profil de concentration est le même, aux incertitudes expérimentales près, pour toutes les vitesses imposées au cylindre intérieur V_i . Le profil de concentration ne dépend donc pas de la vitesse de cisaillement, qu'il y ait localisation ou non. On s'attendrait plutôt à ce que les profils de densité varient avec la vitesse V_i . On observe également que ce profil reste stationnaire pendant plusieurs heures (sauf à de très faibles vitesses de cisaillement pour lesquelles la sédimentation l'emporte sur la resuspension du fluide par écoulement). Ceci est très vraisemblablement dû au précisaillement : le profil de concentration s'établit entre le début de l'expérience (précisaillement) et la première mesure : il est très probablement établi une

fois pour toute dès la fin du précisaillement, comme le montre les expériences en IRM. On a ainsi produit initialement une certaine répartition de concentration des particules que l'on a bien du mal à modifier par la suite. Cette hypothèse semble raisonnable pour des vitesses de rotation appliquées V_i inférieures à la vitesse de précisaillement (ce qui est toujours le cas dans nos expériences lorsque le précisaillement a été de 100 tr/mn). Toutefois, lorsque le précisaillement a été fait à 9 tr/mn, des vitesses V_i de 15 et 25 tr/mn ont été appliquées par la suite. On aurait pu s'attendre alors à des gradients de concentration plus élevés (et donc à un profil de densité plus pentu). Les données, qui ont été recueillies à l'état stationnaire, montrent que le profil de densité ne change plus au-delà d'une vitesse de rotation donnée (au moins pour 9 tr/mn dans nos expériences) au minimum pendant la durée de l'expérience.

Notons enfin que la localisation, et en particulier l'apparition d'une zone non cisailée, est sans doute favorisée par l'établissement d'un profil de densité, la fraction volumique augmentant alors en se rapprochant du cylindre fixe.

Ainsi, les viscosités locales mesurées précédemment correspondent à des viscosités de la pâte pour des fractions volumiques différentes, donc à différents états de la pâte. Ces viscosités ne sont donc pas comparables à la viscosité globale. Il faudrait comparer une viscosité locale correspondant à une certaine fraction volumique avec la viscosité globale de la pâte à la même concentration. C'est l'objet de la prochaine partie.

4.4 Comparaison entre viscosité globale et locale en fonction de la fraction volumique solide

Dans les mesures macroscopiques, on ne tient pas compte de ce qui se passe dans la pâte en cisaillement : seules les valeurs à la paroi σ_i et $\dot{\gamma}_i$ sont prises en compte. La fraction volumique considérée est la fraction volumique moyenne de l'échantillon dans son ensemble. Si les mesures macroscopiques sont comparables aux mesures locales, alors on disposerait d'un moyen de mesurer la viscosité globale sans se préoccuper de l'inhomogénéité de la pâte en écoulement, et cette viscosité correspondrait à la viscosité mesurée localement. Cela permettrait une mesure cohérente de la viscosité.

Avec les profils de viscosité (voir fig. 4.3) et de densité (voir fig. 4.4) et en régime non localisé ($V_i > V_c$), nous avons une mesure locale, c'est-à-dire une mesure en chaque point de l'entrefer, de la viscosité de la pâte. À un point de l'entrefer correspond une fraction volumique et une viscosité.

Nous pouvons maintenant comparer quantitativement les résultats des mesures globales et locales de viscosité. Pour les mesures globales, nous choisissons une cellule de Couette à petit entrefer (5 mm), afin de minimiser les effets du gradient de concentration de particules. Dans cette cellule, nous mesurons la viscosité en fonction de la fraction volumique des particules, en préparant des pâtes avec différentes quantités de billes et d'huile de silicone. La courbe d'écoulement (voir fig. 3.9 à droite) montre qu'en échelle logarithmique, les pâtes se comportent quasiment comme des fluides newtoniens (ce qui n'est plus le cas pour de très bas taux de cisaillement à cause de la contrainte critique de

la pâte). Toutefois, pour la gamme de contraintes qui nous intéresse ici, la viscosité peut raisonnablement être considérée comme constante, c'est-à-dire indépendante du taux de cisaillement.

La viscosité dépend fortement de la fraction volumique des particules : la figure 4.5 montre une comparaison entre la viscosité mesurée et le modèle de Krieger-Dougherty pour la dépendance de la viscosité η_s avec la fraction volumique ϕ :

$$\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2.5\phi_m},$$

avec η_s la viscosité du solvant et ϕ_m la fraction volumique aléatoire maximale [Krieger and Dougherty, 1959, Larson, 1999] (voir chapitre 1).

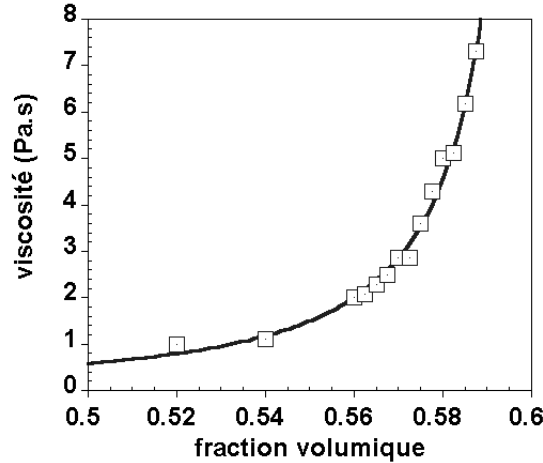


FIG. 4.5 – Viscosité macroscopique en fonction de la fraction volumique (dans une cellule de Couette cylindrique avec un entrefer 5 mm). L'ajustement donne $\phi_m = 60,8 \pm 0,1\%$.

Ce modèle (phénoménologique) fournit un très bon ajustement des données expérimentales. L'ajustement donne par ailleurs $\phi_m = 60,8 \pm 0,1\%$, valeur effectivement proche de la fraction volumique maximale d'une suspension dense. Nous pouvons donc utiliser ce modèle, avec les données du profil de densité, pour déterminer l'évolution de la viscosité dans la cellule de Couette à grand entrefer (1,85 cm) utilisée pour la mesure des profils de vitesse et de densité. Le résultat est comparé aux mesures locales sur la figure 4.6.

L'accord entre les mesures locales et globales est maintenant très satisfaisant. Cet accord montre qu'une viscosité peut-être définie pour une pâte granulaire. Il ressort de cette étude que l'écoulement de la pâte granulaire est gouverné par l'équation $\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma}$. La viscosité $\eta(\phi)$ dépend de la fraction volumique ϕ , ces deux grandeurs étant liées entre elles par l'équation de Krieger-Dougherty, $\eta = \eta_s (1 - \phi/\phi_m)^{-2.5\phi_m}$. Ainsi, la condition pour définir une viscosité est de tenir compte de la migration, c'est-à-dire de la diffusion des particules, diffusion induite par l'écoulement et dirigée des régions fortement cisillées vers les régions faiblement cisillées.

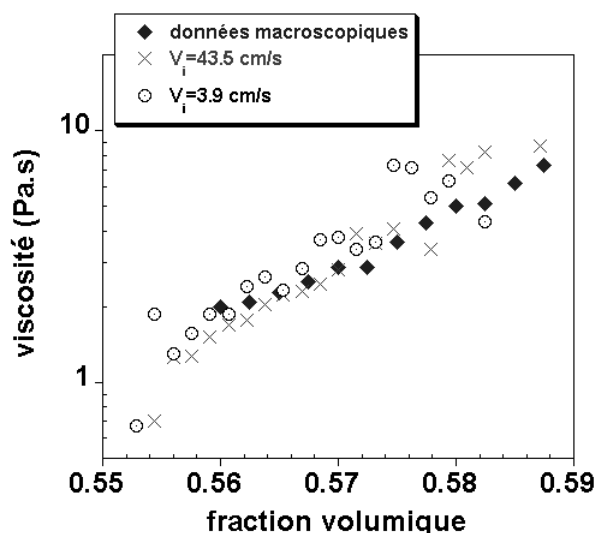


FIG. 4.6 – Comparaison des viscosités déterminées à partir des mesures locales et globales, en fonction de la fraction volumique.

Ovarlez *et al.* ont comparé des viscosités locales et macroscopiques dans une cellule de Couette cylindrique d'une seule et même dimension ($R_i = 4,15$ cm, $R_e = 6$ cm, entrefer 1,85 cm), pour des suspensions identiques aux nôtres (voir fig. 4.7) [Ovarlez *et al.*,]. Pour les mesures locales, quatre suspensions de concentrations moyennes différentes ont été utilisées, permettant de couvrir une large gamme de concentrations locales (de 0,53 à 0,60). Les courbes locales se recoupent entre elles. Cinq mesures macroscopiques ont été effectuées.

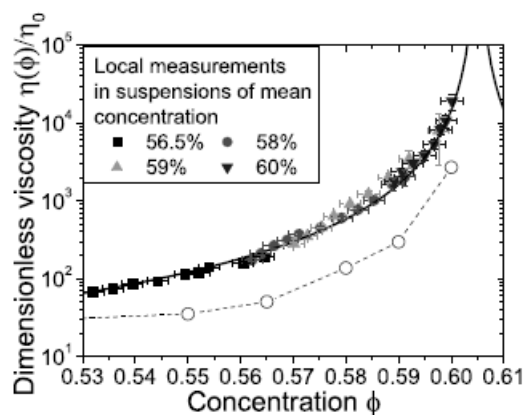


FIG. 4.7 – Viscosités adimensionnées $\eta(\phi)/\eta_0$ macroscopiques et locales en fonction de la fraction volumique ϕ . η_0 est la viscosité du fluide interstitiel [Ovarlez *et al.*,]. La ligne pleine est un ajustement des courbes locales avec l'équation de Krieger-Dougherty : $\eta = \eta_0 (1 - \phi/0,605)^{-2}$.

Les courbes locales sont ajustées avec un modèle de Krieger-Dougherty plus général

que celui utilisé dans nos expériences. L'équation pour l'ajustement des courbes locales de la figure 4.7 est de type : $\eta = \eta_s(1 - \phi/\phi_m)^{-n}$, avec $\phi_m = 0,605$ et $n = 2$. Les viscosités locales sont adimensionnées par la viscosité du fluide interstitiel η_0 .

On observe que les viscosités locales sont systématiquement plus élevées que les viscosités macroscopiques, d'un facteur 5 environ. La raison est que les mesures macroscopiques (qui supposent le fluide comme étant newtonien) surestiment d'un facteur 5 le taux de cisaillement réel d'une suspension à 59%. En effet, en prenant le cas de la viscosité à $\phi = 59\%$ (localement et macroscopiquement), le taux de cisaillement local $\dot{\gamma}(R)$ à l'abscisse R pour lequel la concentration locale de la suspension est de 59% est 5 fois plus petit que le taux de cisaillement moyen mesuré macroscopiquement [Ovarlez *et al.*,].

Dans nos expériences, les mesures macroscopiques sont effectuées dans une cellule de Couette avec un entrefer fin (5 mm). Avec un entrefer faible, les viscosités locales et macroscopiques sont identiques : il n'y a pas de décalage entre les deux viscosités. Nous interprétons cet accord entre mesures globales et locales par le fait que dans un entrefer fin, la migration des particules est fortement limitée. Dans ce cas, la viscosité macroscopique n'est pas diminuée par la déplétion de particules près du cylindre tournant et correspond à la viscosité réelle mesurée localement.

4.5 Conclusion

Dans une cellule de Couette, en régime non localisé ($\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$), l'évolution de l'écoulement est régie par la courbe d'écoulement de la pâte :

$$\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma}.$$

La viscosité est définie par l'équation de Krieger-Dougherty qui, dans le cas le plus général, s'écrit :

$$\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-n}.$$

$\phi_m = 60,8 \pm 0,1\%$ est proche de la fraction volumique maximale, et $n \approx 1,5$. Enfin, nous avons vu au chapitre 4 que, pour tout $\dot{\gamma}$:

$$\frac{\sigma}{N_1} \approx \mu_s.$$

L'équation de la courbe d'écoulement, l'équation de Krieger-Dougherty et l'invariance du rapport σ/N_1 forment une loi constitutive pour la pâte.

L'existence d'un profil de concentration explique également la diminution rapide de la vitesse avec la distance à la paroi du cylindre intérieur.

L'étape suivante consisterait à la compréhension quantitative de la migration des particules.

La définition de la viscosité repose sur la mesure (difficile) du profil de densité et sur la connaissance de la valeur de la contrainte locale, et n'est donc ni prédictive (car

dépendant de l'évolution éventuelle du profil de densité), ni directement applicable à d'autres situations d'écoulement, au contraire d'une « véritable » équation constitutive.

Des essais sont toutefois effectués en plan incliné (voir fig. 4.8), en collaboration avec Christophe Chevalier du PMMH, à l'ESPCI.

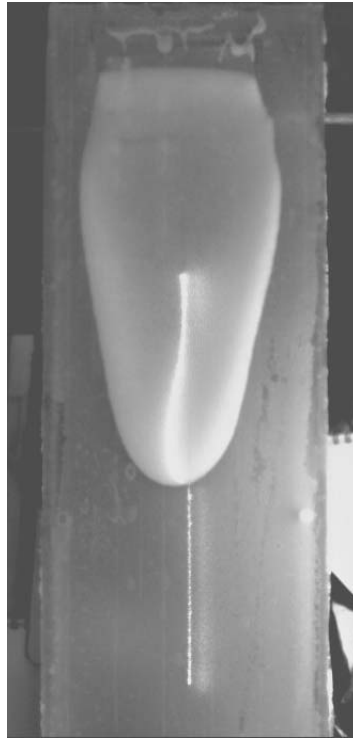


FIG. 4.8 – Écoulement d'une pâte granulaire (fraction volumique moyenne de 58%) sur un plan incliné à $27,8^\circ$ par rapport à l'horizontale. Le faisceau laser permet de mesurer l'épaisseur du front. Des particules identiques à celles constituant la pâte sont collées pour éviter le glissement sur le plan.

D'après les observations, la pâte s'écoule en accélérant, puis ralentit jusqu'à l'arrêt. La pâte, homogène au départ, devient très inhomogène au fur et à mesure de l'écoulement : son front s'accumule en particules, ce qui cause son ralentissement et son arrêt. L'étude et la mesure éventuelle d'une viscosité s'en retrouvent compliquées car il faudrait connaître en particulier la fraction volumique à l'intérieur de la pâte en écoulement, dont l'épaisseur à une distance donnée du front s'affine avec l'écoulement. Une étude plus approfondie permettrait peut-être de dégager des similitudes avec la géométrie de Couette dans l'établissement d'une loi constitutive.

Ajoutons enfin qu'il est possible d'envisager d'étendre la méthode proposée ici pour définir une viscosité lors de l'écoulement des matériaux granulaires secs, ce qui permettrait d'apporter une solution à la définition de la viscosité des matériaux granulaires en général.

Chapitre 5

Rhéoépaississement dans une suspension de fécule de maïs

Sommaire

5.1	Introduction	96
5.2	Système étudié et technique expérimentale	98
5.3	Expériences macroscopiques avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité	99
5.3.1	Aspect qualitatif	99
5.3.2	Courbes de viscosité et d'écoulement	102
5.3.3	Contraintes normales	103
5.3.4	Évolution du taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et de la contrainte critique σ_c en fonction de l'entrefer e	104
5.4	Expériences macroscopiques avec un solvant de 10 mPa.s de viscosité	106
5.4.1	Comportement rhéologique	106
5.5	Expériences en IRM avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité	107
5.5.1	Temps d'établissement d'un état stationnaire	107
5.5.2	Évolution temporelle du profil de vitesse	108
5.5.3	Profils de vitesse à l'état stationnaire	108
5.5.4	Ajustement des profils de vitesse	111
5.6	Interprétation	113
5.6.1	Origine possible des instabilités	113
5.6.2	Comparaison avec les pâtes granulaires	116

L'objectif de ce chapitre est d'étudier le rhéoépaississement d'une suspension de fécule de maïs, c'est-à-dire l'augmentation de la viscosité d'un mélange de fécule de maïs et d'un solvant lorsque le taux de cisaillement augmente.

Nous étudions une suspension très concentrée de fécule de maïs. Cette suspension se présente sous la forme de petites particules, les granules, immergés dans un solvant qui

joue le rôle de fluide interstitiel : il s'agit donc d'une pâte granulaire, tout comme les suspensions étudiées dans les chapitres précédents.

Dans la vie quotidienne, les fluides rhéoépaississants sont beaucoup moins fréquemment rencontrés que les fluides rhéofluidifiants (voir chapitre 1). Une suspension concentrée de fécule de maïs est un des rares fluides courants présentant de manière nette le phénomène de rhéoépaississement. Dans les pâtes granulaires étudiées dans les chapitres précédent, le rhéoépaississement n'a pu être observé de manière flagrante, car généralement les pâtes se fracturent à haut taux de cisaillement.

5.1 Introduction

La fécule de maïs (également connue sous le nom de Maïzena ©) est une substance blanche et farineuse extraite des graines de maïs. On la trouve sous forme de granules de forme irrégulière et arrondie et d'une taille d'une quinzaine de microns environ. En pratique, la fécule est notamment utilisée en cuisine pour épaissir les sauces.

La fécule de maïs est composée de deux variétés d'amidon (polymère naturel de glucose) : l'amylose et l'amylopectine. L'amidon est un polysaccharide, c'est-à-dire un polymère constitué de plusieurs unités glucosidiques. L'amylose est un polymère de glucose peu ramifié, tandis que l'amylopectine est un polymère très ramifié constitué de chaînes semblables à l'amylose. L'amylopectine est le constituant majoritaire de la plupart des végétaux : il représente approximativement 75% de la quantité d'amidon [Coulate, 2002, Atkins, 2003].

Dans l'état actuel des connaissances, on pense que les molécules d'amylopectine sont orientées radialement dans la granule, avec des ramifications partant du centre du granule (le *hilum*, parfois visible en microscopie optique) vers l'extérieur [Coulate, 2002] (fig. 5.1). La répartition des ramifications de l'amylopectine engendre la formation de régions (ou domaines) concentriques cristallines (car orientées régulièrement) alternant avec des régions amorphes : il en résulte des anneaux quelquefois visibles au microscope optique. Peu de choses sont connues sur la répartition des molécules d'amylose dans les granules, mais on suppose qu'elles forment des méandres autour des molécules d'amylopectine, en étant orientées plus ou moins radialement [Coulate, 2002].

Lorsque l'on observe les granules à travers des polariseurs croisés, on peut voir une figure en forme de croix de Malte de couleur sombre, caractéristique des milieux biréfringents (voir fig. 5.2), ce qui confirme un certain degré d'orientation moléculaire dans les granules.

En observant la fécule de maïs au microscope (sèche ou venant tout juste d'être imprégnée d'eau), on distingue des granules polydisperses de diamètres compris entre 5 et 25 μm (voir fig. 5.3, grossissement $\times 40$).

Les granules plongés dans l'eau sont translucides : on peut apercevoir certains granules à travers d'autres, flous car la mise au point n'a pas été faite sur eux. La forme extérieure des granules semble par contre inchangée, que les granules soient secs ou pas.

Sur la figure 5.4, on peut apercevoir des granules de maïzena immergés dans une solu-

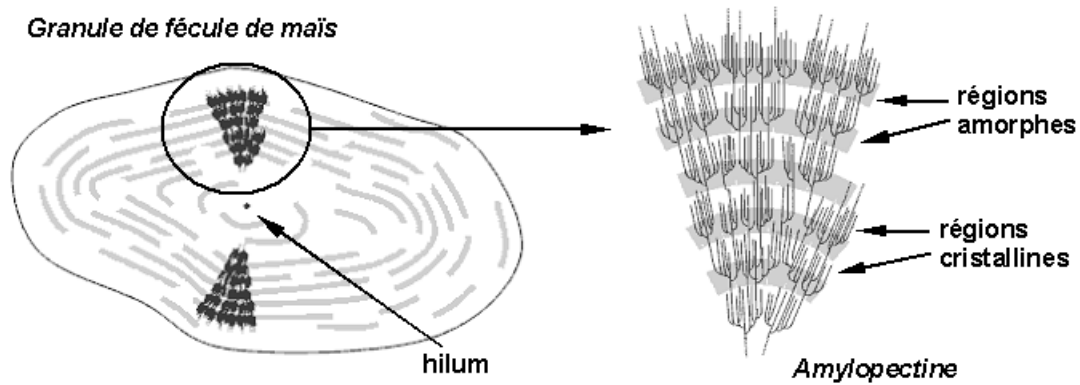


FIG. 5.1 – Représentation d’une section d’un granule d’amidon (à gauche) et d’une molécule d’amylopectine (à droite). On distingue sur l’amylopectine les régions (ou domaines) amorphes et cristallines. D’après [Coultrate, 2002].

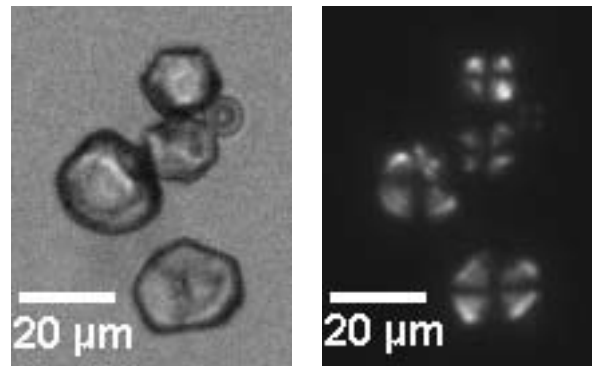


FIG. 5.2 – Granules de maïzena dans l’eau au microscope optique (grossissement $\times 40$). À gauche, sans polariseurs. À droite, sous polariseurs croisés : on distingue une figure sombre en forme de croix de Malte, caractéristique d’un milieu biréfringent, donc orienté.

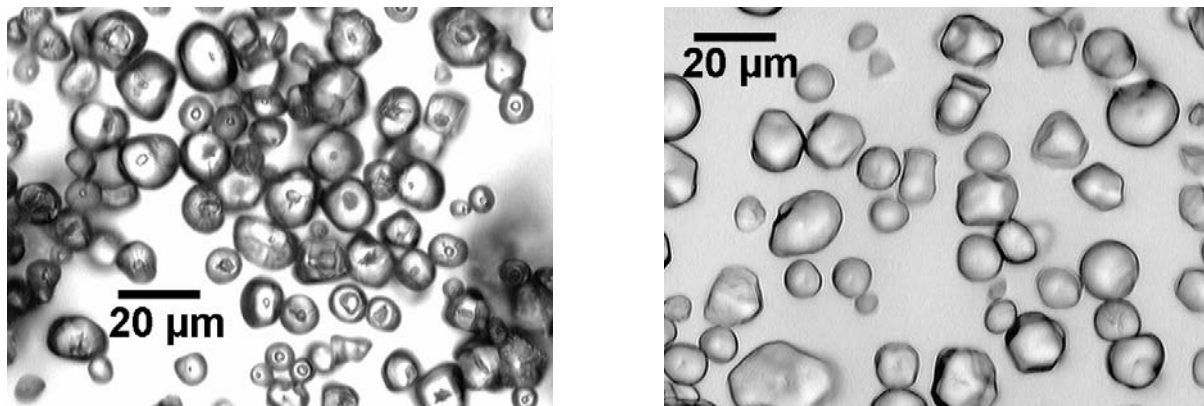


FIG. 5.3 – Granules de maïzena au microscope (grossissement $\times 40$). À gauche, granules secs (directement sortis du conditionnement du fournisseur). À droite, granules dans de l’eau distillée. Les granules dans l’eau sont translucides.

tion d'eau et de CsCl (chlorure de césium). Le CsCl est utilisé pour réaliser une suspension isodense (voir ci-après le sous-chapitre « Système étudié et technique expérimentale »).

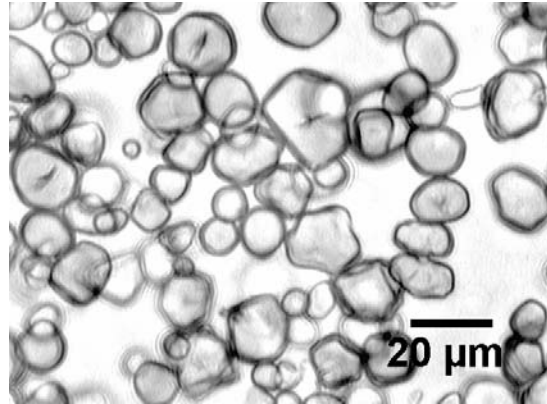


FIG. 5.4 – Grains de maïzena dans un mélange d'eau et de CsCl (grossissement $\times 40$).

La fécule de maïs, lorsqu'elle est mélangée à un peu d'eau, est réputée pour présenter de manière nette une augmentation de la viscosité à haut taux de cisaillement : c'est le phénomène de rhéoépaississement. Dit de manière plus empirique, plus on essaie de touiller rapidement le mélange, plus cela est difficile.

La question que nous allons nous poser ici est de savoir comment se comporte rhéologiquement une pâte composée de fécule de maïs et d'un solvant. En particulier, nous voulons étudier le rhéoépaississement de cette pâte.

5.2 Système étudié et technique expérimentale

La fécule de maïs utilisée dans les expériences est composée de 27% d'amylose et de 73% d'amylopectine ; elle provient du fournisseur Sigma Aldrich. Dans de l'eau pure, la fécule de maïs sédimente rapidement car elle est beaucoup plus dense que l'eau. Pour éviter cette sédimentation, on ajoute du chlorure de césium (CsCl) dans l'eau, ce qui permet d'obtenir un solvant beaucoup plus dense que l'eau.

Le solvant est composé d'eau distillée (résistivité de $18 \text{ M}\Omega\cdot\text{cm}$) et de CsCl pur à plus de 98%. Le CsCl représente 55% de la masse totale du solvant ; on obtient ainsi une solution de $1,67 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$, de même densité que la fécule de maïs [Merkt *et al.*, 2004]. La viscosité de ce solvant est égale à celle de l'eau ($1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$).

Pour préparer 100 g d'une pâte de fécule de maïs, 41 g de fécule est mélangé à 59 g de solvant. Il convient de noter que la fraction de 41% massique de ce mélange est proche de la fraction maximale : à 43%, une partie de la fécule reste sèche, l'eau se trouvant en quantité insuffisante pour imbiber entièrement l'espace entre les grains d'amidon. Ceci est vraisemblablement dû à l'absorption du solvant par les granules : en plaçant 100 g de pâte dans un filtre Büchner (donc 41 g de fécule de maïs), il reste après filtration $81 \pm 2 \text{ g}$ de granules imbibés par le solvant. Ces granules ayant la même densité que le solvant,

la fraction volumique qu'ils occupent est d'environ 80%, ce qui devrait correspondre à la fraction volumique maximale pour un empilement aléatoire des particules polydisperses de fécule de maïs. La concentration élevée de la suspension et la densité du solvant permettent de limiter les effets de la sédimentation.

Le mélange est étudié au rhéomètre Stresstech, en géométrie plan-plan, et également en géométrie Couette pour des observations qualitatives. La géométrie plan-plan présente les avantages de pouvoir régler précisément l'entrefer à l'épaisseur désirée (on verra plus tard que l'entrefer joue un rôle important) et de pouvoir mesurer les contraintes normales. Les plans et les cylindres, en inox, sont lisses. Avant le début de chaque expérience, un léger précisaillement manuel est appliqué au matériau (légère rotation du plan supérieur).

5.3 Expériences macroscopiques avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité

5.3.1 Aspect qualitatif

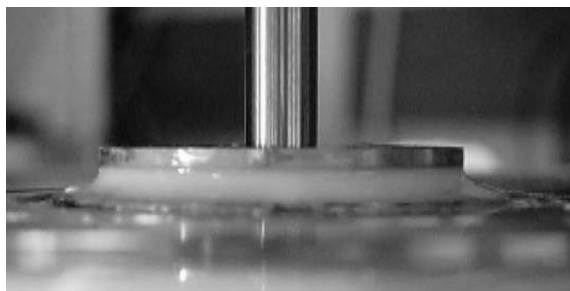
Les expériences se font à taux de cisaillement imposé, de 0,1 à 100 s⁻¹. Au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente, la viscosité se met d'abord à diminuer, puis atteint un minimum avant d'augmenter brusquement et très fortement : il y a alors rhéoépaississement.

La figure 5.5 montre le déroulement de l'expérience pour une géométrie plan-plan P40 (le disque supérieur tournant possède un diamètre de 40 mm), avec un entrefer de 2 mm.

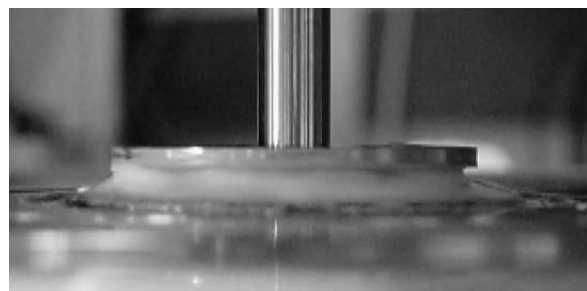
Pour de faibles taux de cisaillement, l'écoulement est régulier. Des instabilités apparaissent lorsque la courbe de viscosité s'approche de son minimum. Ensuite, le liquide commence à être expulsé de l'entrefer lors de l'augmentation brusque de la viscosité. L'expulsion du liquide peut entraîner une diminution ou une saturation apparente de la viscosité ; cependant, la viscosité reste très élevée. Par ailleurs, il n'est pas toujours possible d'atteindre un taux de cisaillement de 10 s⁻¹, car parfois le rhéomètre atteint avant la contrainte maximale qu'il peut appliquer.

La figure 5.6 montre le déroulement de l'expérience dans une cellule de Couette. Le récipient a un diamètre de 27 mm et le cylindre tournant a un diamètre de 15 mm ; l'entrefer est donc de 6 mm. Un traceur (bleu de méthylène), déposé radialement sur la surface visible, permet d'observer le profil de vitesse.

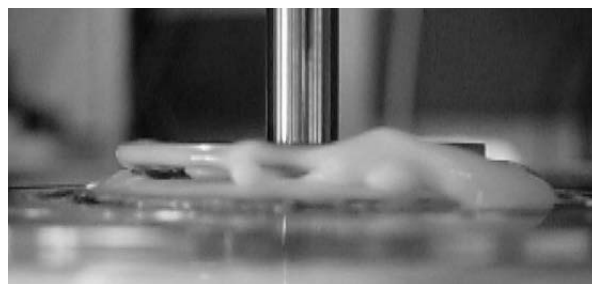
Pour de faibles taux de cisaillement, l'écoulement est localisé dans une bande de cisaillement ; ailleurs, le fluide reste immobile comme en témoigne le traceur bleu. La taille de la bande cisailée augmente avec le taux de cisaillement, jusqu'à ce que tout le fluide s'écoule (le traceur est alors complètement mélangé au fluide, et ce sur tout l'entrefer). Jusqu'ici, la viscosité ne fait que diminuer. Près du minimum de viscosité, les premières instabilités d'écoulement apparaissent. Puis l'écoulement devient très instable lors de l'augmentation brusque de la viscosité, et une partie du fluide est expulsée de l'entrefer.



(a) Rhéofluidication - Régime laminaire



(b) Minimum de viscosité - Apparition des instabilités



(c) Rhéoépaississement - Fortes instabilités

FIG. 5.5 – Comportement de la pâte de fécule de maïs pour des taux de cisaillement croissants (géométrie plan-plan, vue de profil).

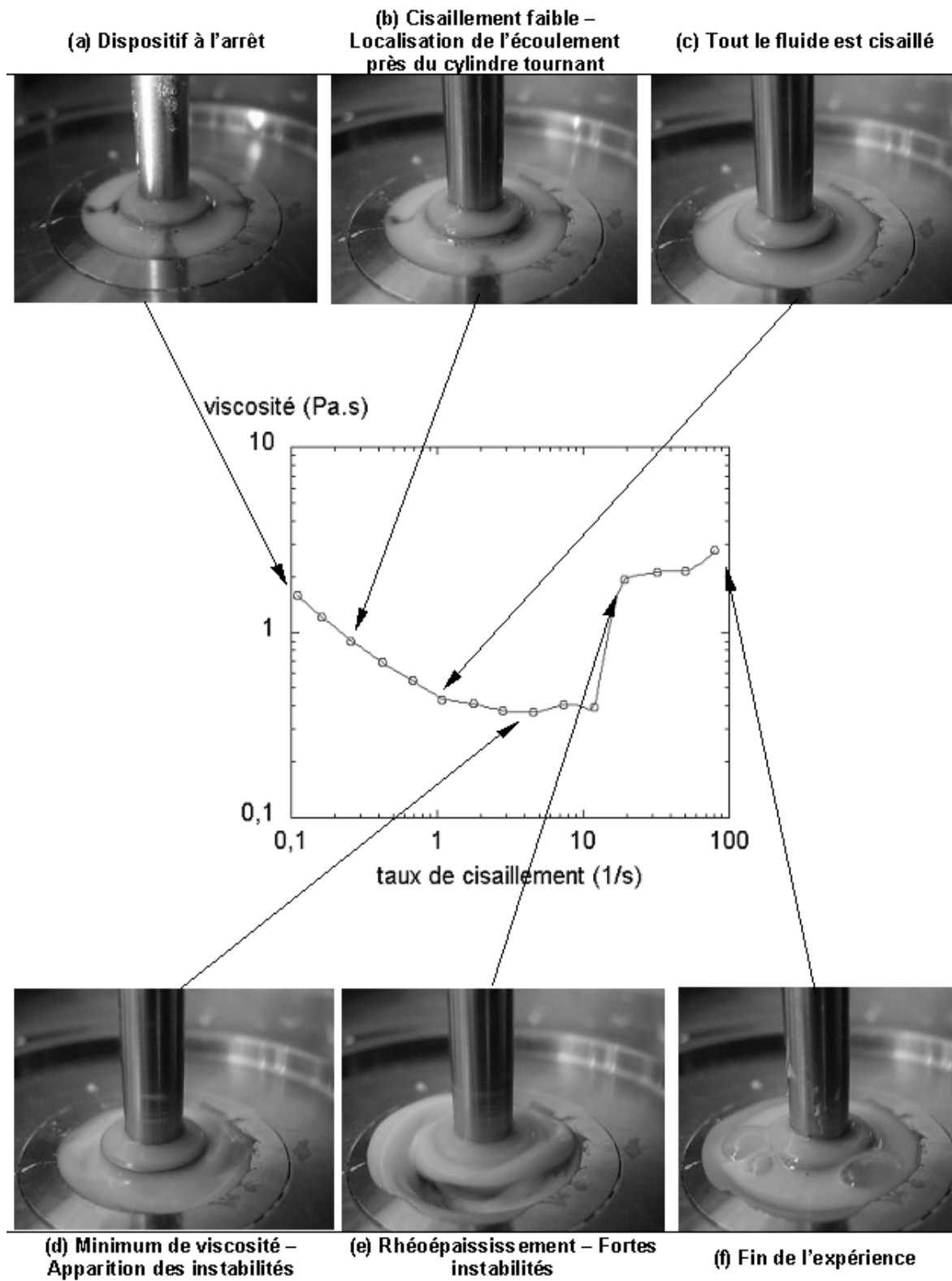


FIG. 5.6 – Comportement de la pâte de fécule de maïs pour des taux de cisaillement croissants (géométrie de Couette, vue plongeante) lors de l'évolution de la viscosité en fonction du taux de cisaillement.)

5.3.2 Courbes de viscosité et d'écoulement

La figure 5.7 montre la viscosité apparente η_{app} en fonction du taux de cisaillement apparent $\dot{\gamma}_{app}$, et ce pour plusieurs entrefers e . Les courbes en fonction de la contrainte sont montrées sur la figure 5.7 de droite. Les expériences ont été effectuées à taux de cisaillement imposé par boucle de rétroaction, le rhéomètre ne pouvant en réalité qu'imposer la contrainte.

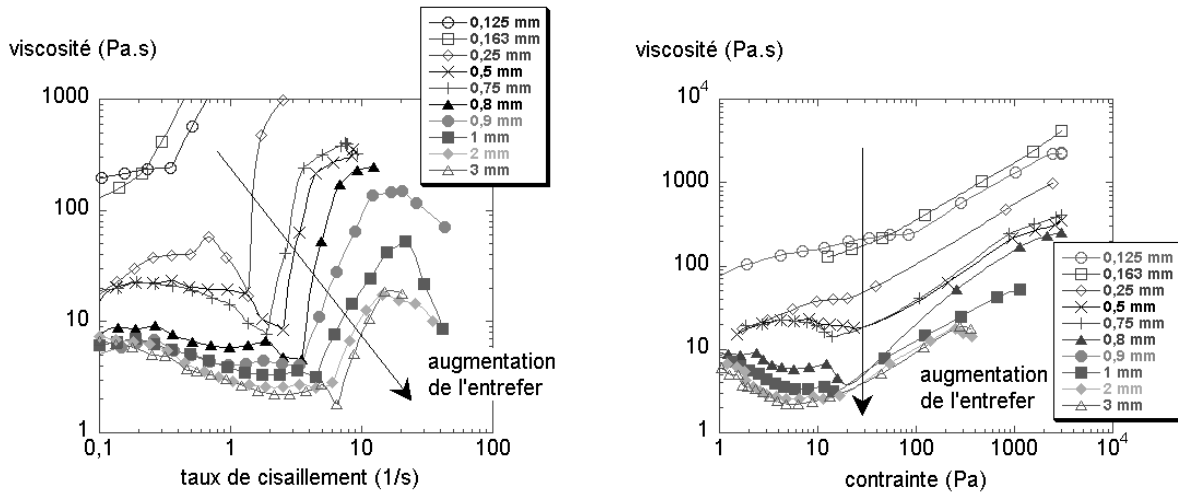


FIG. 5.7 – Viscosité d'un mélange de fécule de maïs à 41% en poids et d'un solvant (eau + CsCl) en fonction du taux de cisaillement.

La figure 5.7 de gauche met en évidence, pour un entrefers donné, une diminution de la viscosité suivie d'une augmentation brusque et surprenante de celle-ci d'au moins une décade au-delà d'un taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$. Sur la figure 5.7 de droite, la viscosité diminue puis augmente également au-delà d'un certain σ_c .

Comme décrit ci-dessus, lorsque la viscosité augmente, le système devient très fortement instable et le matériau est en partie éjecté de l'entrefers. Ceci explique la décroissance apparente de la viscosité en fin d'expérience. En tout état de cause, à cause de ces instabilités, les données obtenues après l'augmentation de viscosité ne sont plus fiables.

En définissant le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ (resp. la contrainte critique σ_c) comme étant le taux de cisaillement au-delà duquel (resp. la contrainte au-delà de laquelle) la viscosité augmente, on remarque que plus l'entrefers e est fin, plus la viscosité apparente η_{app} du matériau est grande et plus $\dot{\gamma}_c$ est petit. De 0,25 à 3 mm d'épaisseur d'entrefers, la variation de $\dot{\gamma}_c$ se fait sur une décade. La contrainte critique σ_c , elle, semble *a priori* moins dépendante de l'épaisseur e de l'entrefers.

Notons que pour des écoulements avec des entrefers de 0,125 mm et 0,163 mm, on ne peut déterminer de valeurs critiques à partir des courbes des figures 5.7. La viscosité semble augmenter continuellement dans les deux cas.

Enfin, remarquons que les courbes des figures 5.7 ne sont pas confondues. Ceci est très surprenant, car s'agissant pour chaque expérience du même matériau, les courbes de

viscosité devraient être indépendantes de l'entrefer, ce qui n'est pas le cas.

5.3.3 Contraintes normales

La géométrie plan-plan nous permet d'étudier l'évolution de la différence des contraintes normales N_1 en fonction de la contrainte et du taux de cisaillement. Rappelons qu'habituellement, N_1 est positif alors que N_2 est négatif et négligeable devant N_1 d'au moins un ordre de grandeur [Larson, 1999]. On négligera donc par la suite l'influence de N_2 .

La figure 5.8 de gauche montre l'évolution de N_1 en fonction du taux de cisaillement et la figure 5.8 de droite montre l'évolution de N_1 en fonction de la contrainte de cisaillement.

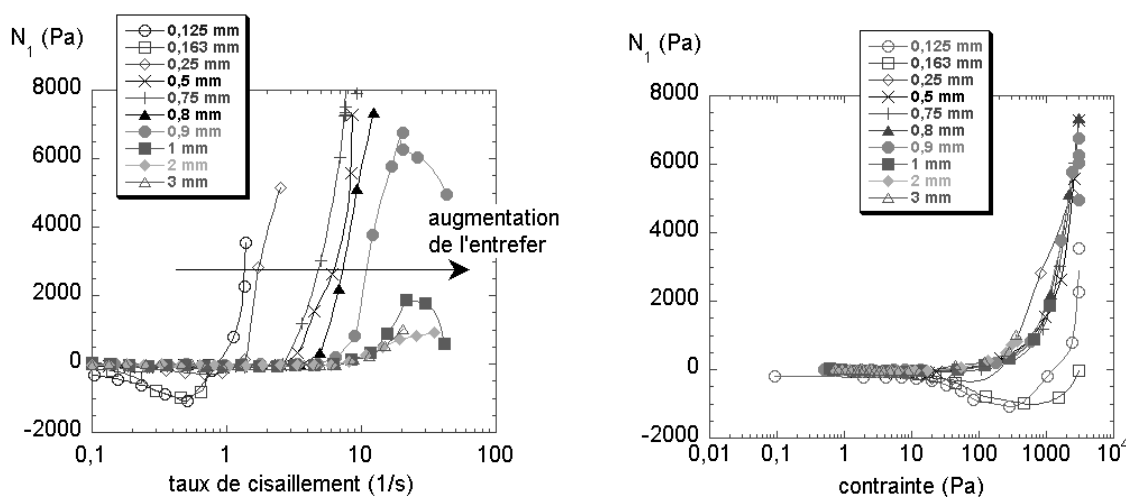


FIG. 5.8 – Contraintes normales N_1 de la pâte de fécule de maïs en fonction du taux de cisaillement (à gauche) et en fonction de la contrainte (à droite).

On s'aperçoit que l'évolution de N_1 est fortement corrélée à l'augmentation de la viscosité : une augmentation brusque de la viscosité entraîne une augmentation brusque de N_1 . N_1 est donc un autre critère pour la détermination des valeurs critiques $\dot{\gamma}_c$ et σ_c . Au-dessous des valeurs critiques, N_1 est nulle dans l'incertitude expérimentale (les valeurs comprises entre -100 et 0 sur les courbes correspondent au zéro de l'appareil de mesure et non à un rapprochement des plaques entre elles).

Ces résultats confortent les observations obtenues à partir des courbes de viscosité : le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ augmente avec l'entrefer e et la contrainte critique σ_c semble à peu près constante.

Les valeurs critiques obtenues suivant le critère retenu, viscosité ou contraintes normales, peuvent différer très légèrement. En règle générale, en prenant les contraintes normales comme critère, les valeurs critiques semblent légèrement plus élevées. Toutefois, ces dernières restent dans les marges d'erreur des valeurs critiques obtenues avec la viscosité.

Dans le reste de l'exposé, c'est le critère de viscosité qui a été retenu. Notons que le critère de contraintes normales permet ici de déterminer les $\dot{\gamma}_c$ pour les entrefers de 0,125 et 0,163 mm (resp. $0,5$ et $0,8 \pm 0,1 \text{ s}^{-1}$). Toutefois, les courbes de N_1 en fonction de σ pour ces entrefers ne se superposent pas avec les autres, ce qui laisse supposer que l'écoulement est différent pour ces entrefers très fins. On ne tiendra donc pas compte de ces entrefers par la suite.

5.3.4 Évolution du taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et de la contrainte critique σ_c en fonction de l'entrefer e

La figure 5.9 montre les évolutions de $\dot{\gamma}_c$ et de σ_c , déduites des courbes $\eta(\dot{\gamma})$, en fonction de l'entrefer e . Plusieurs expériences pour le même entrefer y figurent.

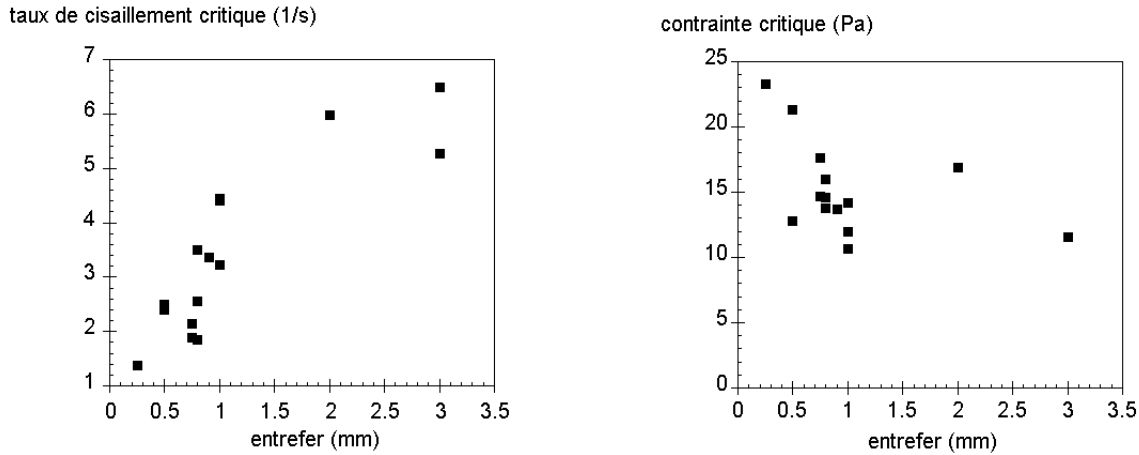


FIG. 5.9 – Évolutions des valeurs critiques en fonction de l'entrefer déduites des courbes $\eta(\dot{\gamma})$: taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ à gauche et contrainte critique σ_c à droite.

Entre 0 et 1 mm d'entrefer, l'évolution de $\dot{\gamma}_c$ semble à peu près linéaire. Au-delà de 1 mm, il y a saturation de $\dot{\gamma}_c$, qui atteint une valeur limite.

σ_c n'évolue pas avec l'entrefer suivant une tendance particulière pour un entrefer supérieur à 0,5 mm. Les deux points pour lesquels $\sigma_c > 20$ Pa se distinguent nettement des autres points et semblent aberrants (une autre mesure pour un entrefer de 5 mm donne $\sigma_c = 12,8$ Pa). La moyenne des valeurs est de 15 ± 8 Pa.

Pour confirmer ces résultats, deux autres échantillons sont utilisés avec un échantillonnage en entrefer plus resserré (voir fig. 5.10). Pour ces expériences, un nombre plus important de taux de cisaillement sont appliqués et mesurés : l'échantillonnage est plus dense, et l'augmentation de viscosité est caractérisée par un plus grand nombre de points. Par conséquent, l'augmentation de viscosité est moins brusque comparée aux expériences précédentes, même s'il est toujours possible de repérer un moment où la viscosité croît nettement. Par contre, l'augmentation de la contrainte normale est toujours aussi brusque,

et intervient soit au même moment que l'augmentation de la viscosité, soit un peu après, à $\pm 0,5 \text{ s}^{-1}$.

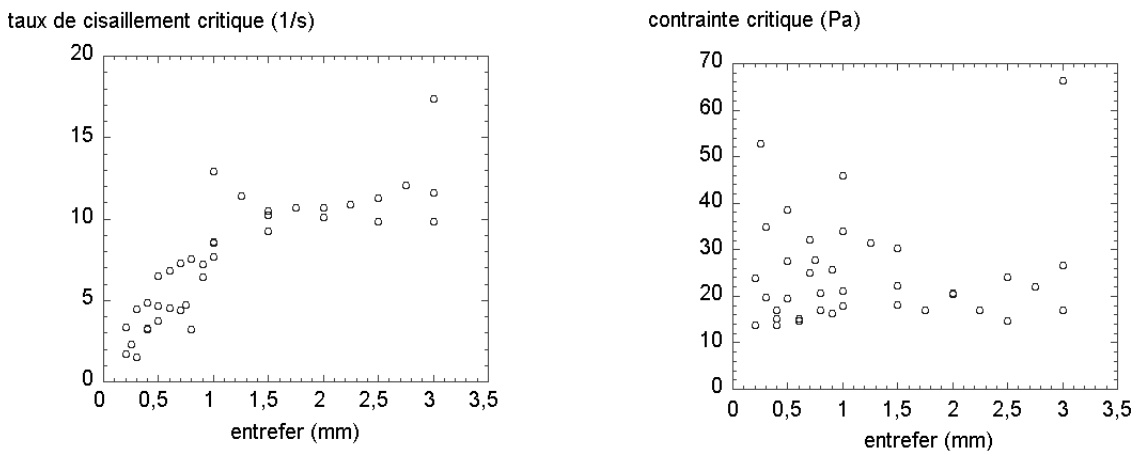


FIG. 5.10 – Évolutions des valeurs critiques en fonction de l'entrefer e déduits des courbes $\eta(\dot{\gamma})$: taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ à gauche et contrainte critique σ_c à droite.

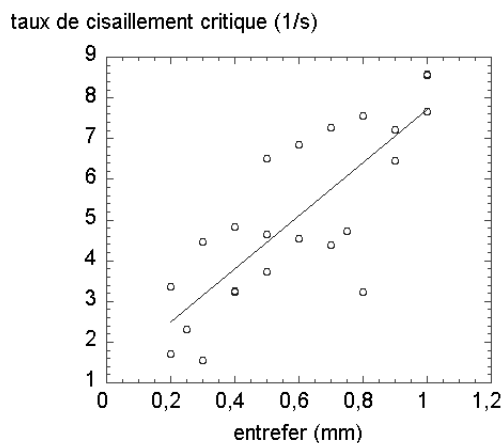


FIG. 5.11 – Évolution du taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ déduits des courbes $\eta(\dot{\gamma})$ pour un entrefer e variant entre 0 et 1 mm.

Bien que les mesures soient toujours et encore bruitées, l'évolution linéaire puis la saturation de $\dot{\gamma}_c$ apparaissent plus nettement. La figure 5.11 présente un agrandissement pour un entrefer compris entre 0 et 1 mm et avec un ajustement linéaire. L'autre valeur critique σ_c fluctue beaucoup, entre 14 et 67 Pa avec une moyenne à 24 Pa, mais évolue avec l'entrefer toujours sans tendance particulière. σ_c semble donc indépendant de l'entrefer, ce qui n'est pas le cas de $\dot{\gamma}_c$. Ces deux observations indiquent donc que c'est la contrainte qui vraisemblablement gouverne le rhéoépaississement, et pas le taux de cisaillement. Ce

résultat est en accord avec les expériences de Maranzano et Wagner sur des suspensions denses et colloïdales de silice [Maranzano and Wagner, 2001].

Il semble que 1 mm corresponde à une taille critique au sein du fluide. Cette taille peut peut-être être reliée à la taille des amas ou structures qui peuvent se former pendant le cisaillement et qui peuvent être à l'origine du rhéoépaississement.

5.4 Expériences macroscopiques avec un solvant de 10 mPa.s de viscosité

Pour étudier l'influence de la viscosité du solvant, une solution de fécule de maïs avec un solvant 10 fois plus visqueux que précédemment a été préparée.

Pour préparer le solvant, on ajoute du glycérol au mélange eau + CsCl contenant 55% de CsCl en poids jusqu'à obtenir une solution de 10 mPa.s de viscosité. Puis on ajoute du CsCl à la solution jusqu'à ce que sa densité atteigne 1,67 g/cm³. Le solvant ainsi obtenu a une densité identique à la solution de 1 mPa.s de viscosité, mais avec une viscosité 10 fois plus grande.

Une quantité de 100 g d'une pâte de fécule de maïs (Sigma-Aldrich) est préparée en mélangeant 41 g de fécule à 59 g du solvant eau-glycérol-CsCl. Les proportions sont donc les mêmes que pour les expériences précédentes. L'homogénéisation de la pâte est beaucoup plus délicate à cause de la viscosité élevée du fluide.

Les expériences se font en plan-plan P40 (40 mm de diamètre) avec des surfaces lisses en inox.

5.4.1 Comportement rhéologique

La pâte est rhéoépaississante : la viscosité, en fonction du taux de cisaillement ou de la contrainte, augmente très brusquement à partir d'un certain seuil (voir fig. 5.12).

En observant les courbes de la viscosité en fonction du taux de cisaillement, il est cette fois difficile de dégager une tendance nette de l'évolution de $\dot{\gamma}_c$. Cela peut s'expliquer par la grande difficulté à obtenir une pâte homogène, l'état initial de la pâte jouant un plus grand rôle sur la valeur de $\dot{\gamma}_c$ que la taille de l'entrefer. L'ordre de grandeur de $\dot{\gamma}_c$ est de 1 s⁻¹, comme pour les expériences avec un solvant de 1 mPa.s.

De même, l'évolution de la viscosité η_c (viscosité à $\dot{\gamma}_c$) en fonction de l'entrefer n'est pas claire, et évolue entre 3 et 6 Pa.s (pour un solvant de 1 mPa.s, η_c diminue avec l'augmentation de l'entrefer e).

La contrainte critique σ_c , elle, semble constante et ne présente aucune tendance. σ_c vaut 12 ± 8 Pa (voir fig. 5.12). La variation de $\dot{\gamma}_c$ avec l'entrefer e n'est pas nette, mais on observe que $\dot{\gamma}_c$ est du même ordre de grandeur (≈ 1 s⁻¹) pour $\eta_s = 1$ mPa.s et pour $\eta_s = 10$ mPa.s. La viscosité du solvant η_s ne semble donc pas influencer significativement sur les valeurs critiques σ_c et $\dot{\gamma}_c$.

Les résultats sur la contrainte critique σ_c sont cohérents avec ceux de Shenoy et Wagner, qui ont étudié l'influence du solvant dans des suspensions colloïdales de silice

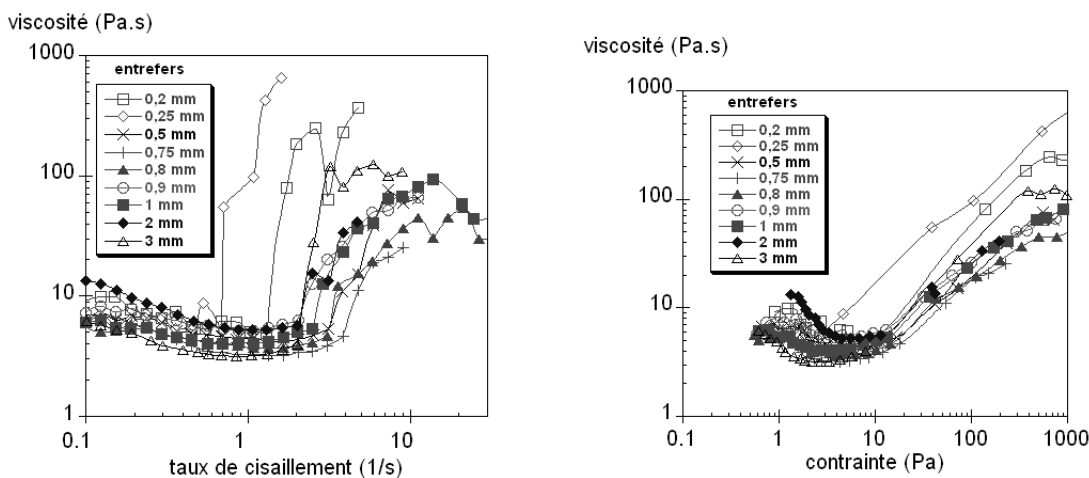


FIG. 5.12 – Viscosité en fonction du taux de cisaillement (à gauche) et de la contrainte (à droite) pour une pâte de fécule de maïs de solvant à 10 mPa.s de viscosité.

[Shenoy and Wagner, 2005]. Dans ces expériences, deux paramètres permettent de faire varier la viscosité du solvant η_s : la température et le poids moléculaire du solvant. Shenoy et Wagner concluent que σ_c est constant avec la viscosité du solvant, mais pas $\dot{\gamma}_c \eta_s$ [Shenoy and Wagner, 2005].

Enfin, comme pour les expériences avec le solvant à 1 mPa.s, la contrainte normale augmente brusquement au moment du rhéoépaississement.

5.5 Expériences en IRM avec un solvant de 1 mPa.s de viscosité

L'appareil IRM utilisé pour les mesures locales de vitesse est le même que celui pour les pâtes granulaires. Les expériences sont menées dans une cellule de Couette composée d'un cylindre intérieur en PVC de 4,1 cm de rayon et de 11,5 cm de hauteur et d'un cylindre extérieur en plexiglas de 4,7 cm de rayon (entrefer de 6 mm) ou de 5,1 cm de rayon (entrefer de 10 mm), et de 18 cm de hauteur. La mesure de la vitesse s'effectue dans un cadre délimitant un barreau radial comprenant tout l'entrefer, de 1 cm d'épaisseur et de 5 cm de hauteur.

5.5.1 Temps d'établissement d'un état stationnaire

En combien de temps s'établit un état stationnaire ? Pour répondre à cette question, on mesure l'évolution du profil de vitesse du fluide en fonction du temps dans la cellule de Couette de l'IRM.

Une série de 50 profils à 5 tr/mn est mesurée, à la fréquence d'un profil toutes les 4 s (voir fig. 5.13). La durée de l'expérience est de 200 s.

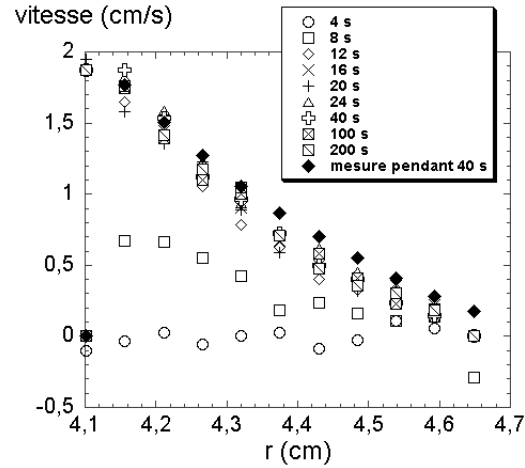


FIG. 5.13 – Profils de vitesse à 5 tr/mn d'un mélange de fécule de maïs à 41% en poids et d'un solvant (eau + CsCl) pour un entrefer de 6 mm. Un profil est mesuré pendant 4 s. Les temps indiqués dans l'encadré correspondent aux temps écoulés après le début de l'expérience. Ces profils sont comparés à un profil de vitesse mesuré pendant 40 s. Il n'y a pas de précisaillement.

Tous les profils sont confondus au delà de 12 s de cisaillement. Les profils sont alors comparables à celui mesuré pendant un temps de 40 s. L'état stationnaire est donc atteint en 12 s au maximum.

5.5.2 Évolution temporelle du profil de vitesse

Pour voir s'il existe de grandes fluctuations, on étudie l'évolution temporelle du profil de vitesse sur 120 s.

Deux séries de profils ont été mesurées (Fig. 5.14) :

- 1) une série à 14 tr/mn, en mesurant 12 profils avec 1 profil toutes les 10 s ;
- 2) une série à 15 tr/mn, en mesurant 12 profils avec 1 profil toutes les 10 s.

Les profils sont tous confondus. Il n'y a donc pas d'évolution temporelle du profil de vitesse sur 120 s.

5.5.3 Profils de vitesse à l'état stationnaire

Comment varient les profils de vitesse en fonction du taux de cisaillement appliqué ?

Les différents profils de vitesse pour la pâte sont mesurés en IRM, chaque profil étant mesuré pendant 40 s. Ce sont donc des profils à l'état stationnaire. Deux entrefers sont utilisés : 10 mm et 6,2 mm.

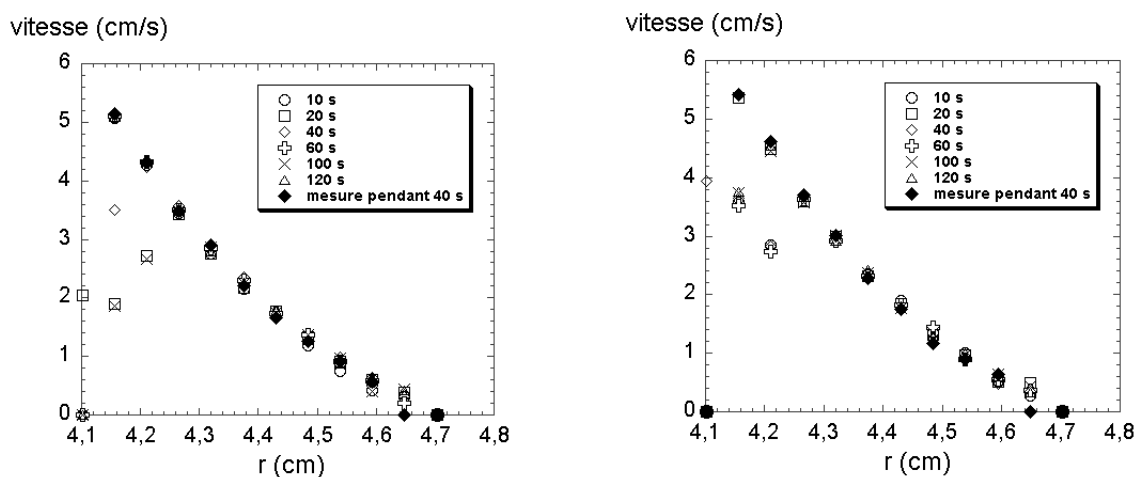


FIG. 5.14 – Profils de vitesse à 14 tr/mn (à gauche) et à 15 tr/mn (à droite) d’un mélange de fécule de maïs à 41% en poids et d’un solvant (eau + CsCl) pour un entrefer de 6 mm. Un profil est mesuré pendant 10 s. Les temps indiqués dans l’encadré correspondent aux temps écoulés après le début de l’expérience. Ces profils sont comparés à des profils de vitesse mesurés pendant 40 s. Les mesures pendant 10 s se font après un précisaillement d’une minute à la vitesse de mesure.

Pour un entrefer de 10 mm

Les profils obtenus, adimensionnés par la vitesse à la paroi V_i , sont les suivants (voir fig. 5.15 à gauche). Après le rhéoépaississement, la viscosité augmente brusquement et l’appareil IRM ne peut plus appliquer la contrainte suffisante pour faire tourner le cylindre intérieur à la vitesse désirée.

Comme pour les pâtes granulaires, il y a localisation de l’écoulement pour des cisaillements de 8 tr/mn et au-dessous. Au fur et à mesure de l’augmentation du taux de cisaillement, l’écoulement envahit tout l’entrefer.

L’évolution de la taille de la zone cisailée en fonction de la vitesse V_i du cylindre intérieur est donnée par la figure 5.16. L’ajustement de la courbe est effectué avec une loi de puissance. Cet ajustement est excellent ($R = 0,99$) et donne un exposant de 0,52. L’évolution semble donc se faire en racine carrée, ce qui n’était pas le cas pour les pâtes granulaires où l’évolution était linéaire avant saturation.

Enfin, il est possible d’adimensionner sur les deux axes. L’ordonnée est toujours adimensionnée par V_i , et l’abscisse est adimensionnée par la taille de la zone cisailée d_c : la nouvelle coordonnée en abscisse est alors $(r - R_i)/d_c$. Une courbe maîtresse apparaît (voir fig. 5.15 à droite) et souligne l’universalité du profil, comme pour les pâtes granulaires. Et comme pour les pâtes granulaires, le profil de vitesse est d’allure exponentiel.

Pour un entrefer de 6,2 mm

Les résultats pour un entrefer de 6,2 mm sont très similaires aux résultats pour un entrefer de 10 mm. Les profils obtenus, adimensionnés en ordonnée par V_i , sont montrés

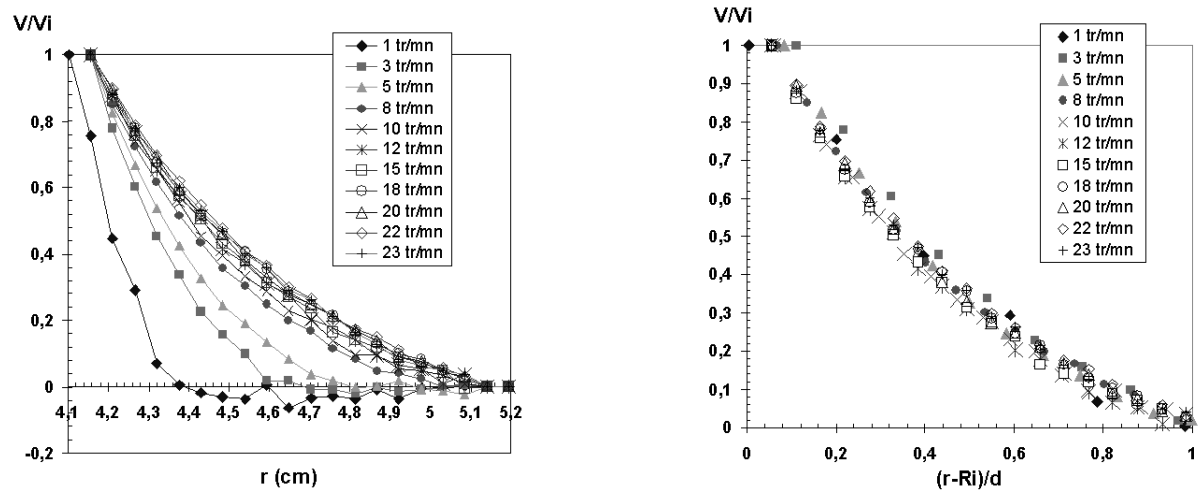


FIG. 5.15 – Profils de vitesse, adimensionnés en ordonnée (à gauche) et adimensionnés sur les deux axes (à droite), du mélange de fécule de maïs à 41% obtenu en IRM dans une cellule de Couette (entrefer : 10 mm), pour différentes vitesses du cylindre intérieur. Un profil est mesuré pendant 40 s. Il n’y a pas de précisaillement.

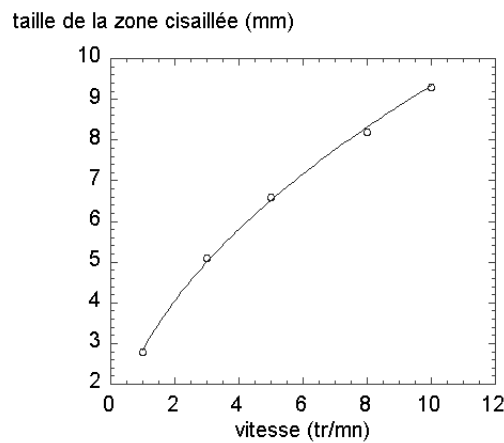


FIG. 5.16 – Évolution de la taille de la zone cisailée en fonction de la vitesse du cylindre intérieur. L’ajustement de la courbe, en loi de puissance avec un exposant de 0,52, est excellent ($R = 0,99$).

sur la figure 5.17, à gauche.

Il y a là encore localisation de l'écoulement, mais uniquement pour un cisaillement de 1 tr/mn, vitesse pour laquelle la taille de la zone cisailée est d'environ 5 mm. L'écoulement envahit tout le gap dès le deuxième cisaillement appliqué, à 3 tr/mn.

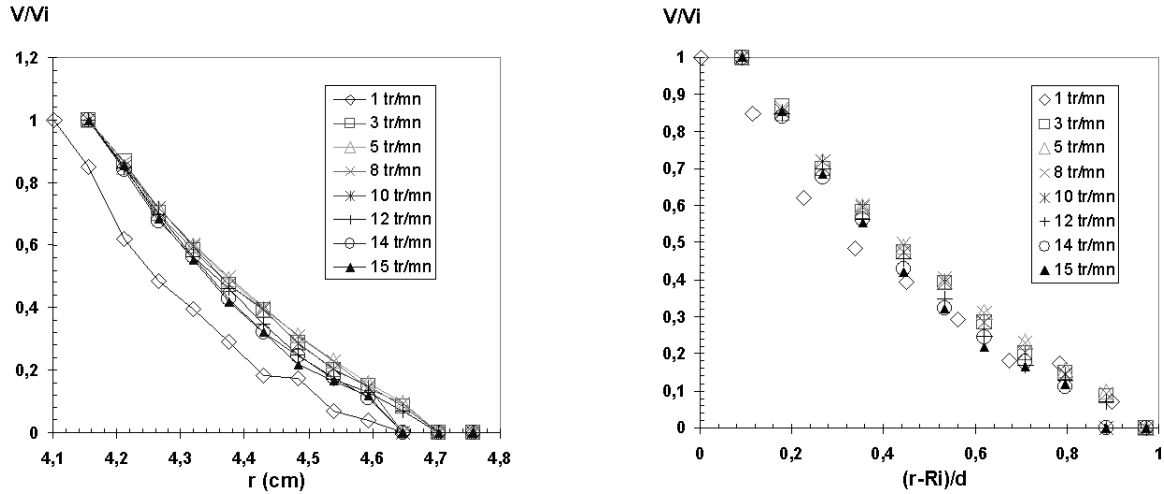


FIG. 5.17 – Profils de vitesse, adimensionnés en ordonnée (à gauche) et adimensionnés sur les deux axes (à droite), du mélange de fécule de maïs à 41% obtenu en IRM dans une cellule de Couette (entrefer : 6,2 mm), pour différentes vitesses du cylindre intérieur. Un profil est mesuré pendant 40 s. Il n’y a pas de précisaillement.

Enfin, comme pour l'entrefer de 10 mm, en adimensionnant sur les deux axes, une courbe maîtresse apparaît (voir fig. 5.17 à droite). L'abscisse est adimensionnée par la taille de la zone cisailée d_c : la nouvelle coordonnée en abscisse est $(r - R_i)/d_c$. Dans la zone cisailée, la physique de l'écoulement est la même quelle que soit la vitesse de l'écoulement et le profil exponentiel de vitesse est unique, comme pour un entrefer de 10 mm et comme pour les pâtes granulaires.

En conclusion, pour une suspension de fécule de maïs, il y a localisation lorsque $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_c$, et la fin de la localisation intervient lorsque $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_c$. L'écoulement se fait dans tout l'entrefer lorsque $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_c$. Le seuil de rhéoépaississement joue le rôle de seuil d'écoulement d'un fluide à seuil.

5.5.4 Ajustement des profils de vitesse

Des ajustements de courbes sur les profils de vitesse obtenus en IRM permettent de préciser si le fluide se comporte comme un fluide newtonien ou non. Effet, dans une cellule de Couette, les équations de Navier-Stokes couplées à l'équation de la courbe d'écoulement $\sigma = f(\dot{\gamma})$ donnent les équations des profils de vitesse suivantes :

$$v_{\theta}(r) = \omega r \frac{(R_2/r)^2 - 1}{(R_2/R_1)^2 - 1} \quad \text{si le fluide est newtonien,}$$

$$v_{\theta}(r) = \omega r \frac{(R_2/r)^{2/n} - 1}{(R_2/R_1)^{2/n} - 1} \quad \text{si le fluide est non-newtonien.}$$

avec v_{θ} la vitesse radiale, R_1 la rayon du cylindre intérieur, R_2 le rayon du cylindre extérieur, r le rayon dans l'entrefer, ω la vitesse angulaire du cylindre intérieur, et n la puissance dans le cas d'un fluide non-newtonien dont la courbe d'écoulement est du type $\sigma = k \dot{\gamma}^n$, k étant une constante.

La figure 5.18 montre les ajustements de quelques profils de vitesse mesurés en IRM avec les entrefers de 6 et 10 mm.

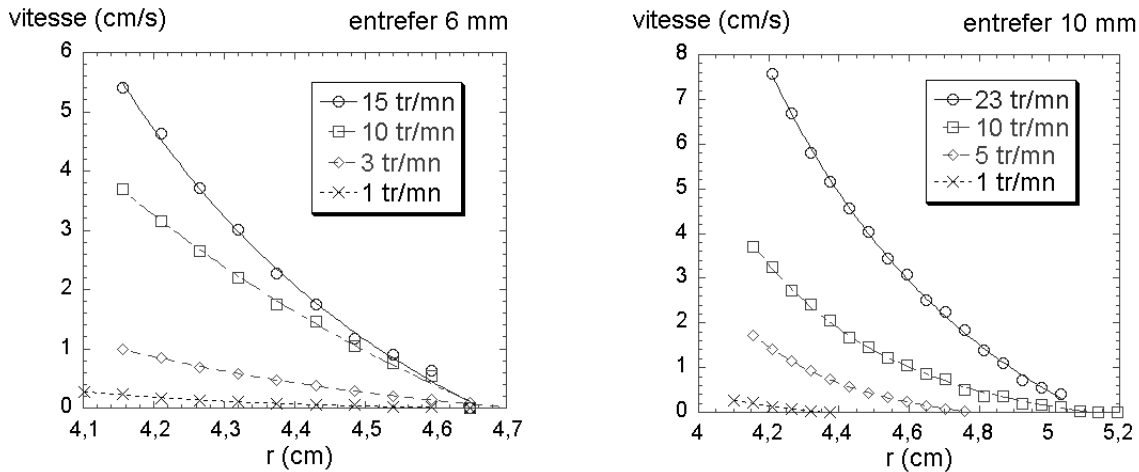


FIG. 5.18 – Profils de vitesse d'un mélange de fécule de maïs à 41% en poids et d'un solvant (eau + CsCl) pour des entrefers de 6 et 10 mm, avec des ajustements correspondant à des fluides non-newtoniens à courbes d'écoulement en loi de puissance. Pour les profils représentés, il y a localisation à 1 tr/mn pour un entrefers à 6 mm, et il y a localisation à 1 et 5 tr/mn pour un entrefers à 10 mm.

Pour les profils représentés sur la figure 5.18, il y a localisation à 1 tr/mn pour un entrefers à 6 mm, et il y a localisation à 1 et 5 tr/mn pour un entrefers à 10 mm. Dans tous les cas de figure, c'est-à-dire ici pour les deux entrefers et qu'il y ait localisation ou non de l'écoulement, le meilleur ajustement est le profil de vitesse d'un fluide non-newtonien dont la courbe d'écoulement est en loi de puissance. La figure 5.19 montre l'évolution du paramètre n pour chaque ajustement des profils des vitesses, et pour les deux entrefers.

Sur la figure 5.19, pour un entrefers de 10 mm, n semble croître linéairement avec la vitesse, mais cette tendance est infirmée par les mesures en entrefers de 6 mm pour lesquelles la variation de n est plus irrégulière. L'ordre de grandeur de n reste toutefois comparable pour les deux entrefers. En effet, une étude sur tous les profils mesurés en IRM donne, pour la courbe d'écoulement en loi de puissance du fluide, une valeur n comprise entre 0,12 et 0,31, avec une valeur moyenne de 0,20. Rappelons qu'une valeur de la puissance n inférieure à 1 indique un comportement rhéofluidifiant du fluide, ce qui indique bien que les mesures IRM ont été prises alors que le fluide était dans le régime rhéofluidifiant précédant le rhéoépaississement. Pour un entrefers de 6 mm, au-delà de

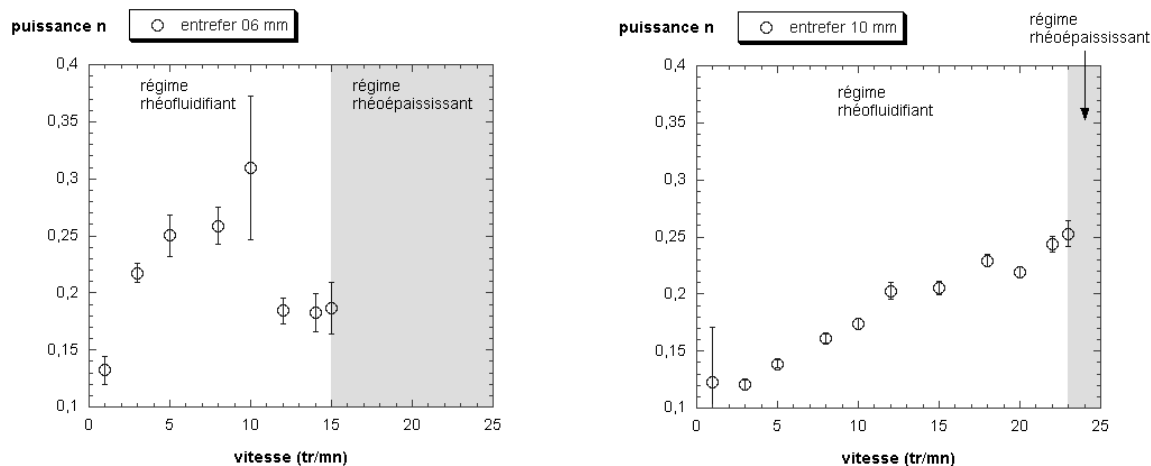


FIG. 5.19 – Évolution du paramètre n pour chaque ajustement des profils des vitesses, et pour les entrefers de 6 mm (à gauche) et 10 mm (à droite). Les barres d'erreur représentent les incertitudes sur les ajustements. n est toujours inférieur à 1 et indique donc un comportement rhéofluidifiant du fluide. Cela montre que les mesures IRM ont été prises alors que le fluide était dans le régime rhéofluidifiant qui précède le rhéoépaississement.

23 tr/mn, le cylindre intérieur de l'appareil IRM se bloque à cause de l'augmentation de la viscosité : on est alors dans le régime rhéoépaississant. Pour un entrefers de 10 mm, le régime rhéoépaississant commence à partir de 15 tr/mn.

5.6 Interprétation

5.6.1 Origine possible des instabilités

Nous nous proposons ici d'étudier deux origines possibles des instabilités observées lors du rhéoépaississement : des origines viscoélastiques et des origines granulaires frictionnelles¹.

Instabilités viscoélastiques

Larson *et al.* ont étudié l'instabilité viscoélastique qui se produit dans une cellule de Couette lorsque les contraintes normales l'emportent sur les contraintes visqueuses [Larson *et al.*, 1989]. On voit alors apparaître dans la cellule des rouleaux similaires aux rouleaux de Taylor-Couette. Le paramètre qui caractérise cette instabilité est le nombre de

¹Les instabilités ne sont pas liées à la turbulence inertielle, puisque le calcul du nombre de Reynolds Re donne un nombre très inférieur au nombre de Reynolds critique $Re_c \approx 2000$ au-delà duquel la turbulence se développe, et ce sur toute la gamme de taux de cisaillement étudiée : on observe donc, pour la suspension de fécule de maïs, des instabilités même pour des nombres de Reynolds faibles. Cela a déjà été observé par ailleurs pour des fluides complexes [Larson, 1999].

Déborah, rapport entre un temps caractéristique de relaxation et un temps caractéristique de sollicitation du fluide. Un fluide pour lequel $De = 0$ est un fluide à temps de relaxation instantané (comme pour un fluide newtonien), alors qu'un fluide pour lequel $De \neq 0$ est un fluide présentant des propriétés viscoélastiques. Le nombre de Déborah peut être exprimé comme étant la compétition entre les forces élastiques et visqueuses, ou encore le rapport entre la différence des contraintes normales et la contrainte de cisaillement. Il s'exprime donc comme étant :

$$De = \frac{N_1}{\sigma}.$$

On considère un modèle de fluide de type Oldroyd-B, c'est-à-dire un modèle dans lequel le fluide serait composé de sphères reliées deux à deux par un ressort à réponse linéaire. Ce modèle sert à représenter de manière simple un fluide viscoélastique [Larson, 1999, Wilson, 2006]. Pour un tel fluide, le nombre de Déborah critique dans une géométrie plan-plan est, d'après Phan-Thien [Phan-Thien, , Shaqfeh, 1996] :

$$De_c = \frac{\pi}{\sqrt{(1-S)(5-2S)}},$$

avec $S = \frac{\eta_s}{\eta_s + \eta_{fluide}}$ le rapport de la viscosité du solvant sur la viscosité totale. Dans nos expériences, $S \approx 0,001$, et donc $De_c \approx 1,4$. Notons toutefois que d'après cette formule, De_c varie peu avec S : de $\eta_s = \eta_p$ à $\eta_s \ll \eta_p$, S varie entre 0,5 et 0, et De_c varie par conséquent entre 2,221 et 1,405. Par ailleurs, des comparaisons expérimentales montrent une différence d'un facteur 2 ou 3 avec la théorie de Phan-Thien [Shaqfeh, 1996]. On peut néanmoins estimer que l'ordre de grandeur pour De_c , en géométrie plan-plan et pour un fluide d'Oldroyd-B, est de 1.

L'idée est de comparer avec nos expériences le nombre de Déborah critique $De_c \approx 1$ pour lequel se produisent les instabilités. On trace donc le rapport $De = N_1/\sigma$ en fonction de la contrainte σ (le régime rhéoépaississant commençant à la même contrainte critique $\sigma_c = 12 \pm 8$ Pa) pour les différents entrefers utilisés (voir fig. 5.20). Les valeurs négatives du rapport $De = N_1/\sigma$ proviennent des incertitudes sur la mesure de N_1 par le rhéomètre : N_1 fluctue en effet fortement entre -100 et 0 Pa pour $\sigma < \sigma_c$. Cela ne gêne pas la mesure de N_1 lorsque $\sigma > \sigma_c$, puisque N_1 augmente rapidement vers des valeurs de l'ordre du millier de Pa (voir fig. 5.8).

Dans le régime rhéoépaississant, le nombre de Déborah De est de $2 \pm 0,5$. La valeur critique théorique est $De_c \approx 1,4$. À cause des différences possibles entre la valeur critique et expérimentale de De_c qui peuvent varier d'un facteur 2 ou 3, on peut juste dire que le régime rhéoépaississant se situe à la limite, voire au-delà, de la limite d'instabilités viscoélastiques.

Ces éléments ne constituent bien sûr pas une preuve, mais plutôt des indices vers une explication viscoélastique des instabilités de rhéoépaississement (compétition entre forces visqueuses et forces élastiques). Cela reste à confirmer, ou à infirmer.

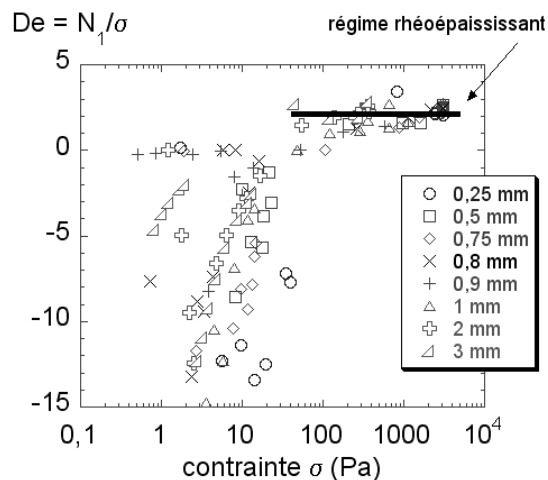


FIG. 5.20 – Nombre de Deborah $De = N_1/\sigma$ en fonction de la contrainte σ .

Régime granulaire frictionnel

Le régime rhéoépaissant peut-il être un régime granulaire frictionnel ?

Étudions le rapport σ/N_1 en fonction de la contrainte σ (le régime rhéoépaissant commençant à la même contrainte critique $\sigma_c = 12 \pm 8$ Pa quel que soit l'entrefes e , ce qui n'est pas le cas de $\dot{\gamma}_c$) (voir fig. 5.21).

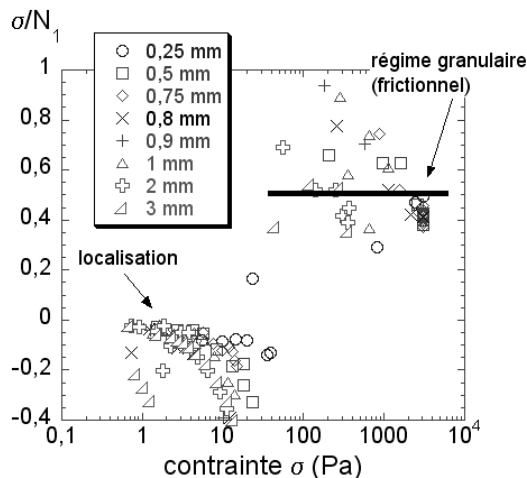


FIG. 5.21 – σ/N_1 en fonction de σ .

On distingue nettement sur la figure 5.21 deux régimes de part et d'autre des taux de cisaillement critiques $\dot{\gamma}_c$. Le régime situé avant $\dot{\gamma}_c$ correspond à la localisation de l'écoulement. Après $\dot{\gamma}_c$, N_1 augmente brusquement pour atteindre $0,6 \pm 0,2$. Cette valeur cor-

respond à l'ordre de grandeur d'un coefficient de frottement entre particules solides.

Rappelons que dans le cas des pâtes granulaires, σ/N_1 vaut $0,4 \pm 0,1$. Ceci est donc peut-être l'indication du développement d'un régime granulaire frictionnel qui, par dilatance, pourrait être une cause de l'écoulement rhéoépaississant du fluide.

5.6.2 Comparaison avec les pâtes granulaires

Nous comparons le comportement rhéologique d'une suspension de maïs avec le comportement d'une pâte granulaire de billes de polystyrène.

L'écoulement d'une suspension de fécule de maïs est un écoulement localisé avant le seuil de rhéoépaississement. C'est également le cas des pâtes granulaires avant le taux de cisaillement critique d'écoulement. Lors de la localisation, la viscosité apparente diminue avec le taux de cisaillement (rhéofluidification). La localisation disparaît au seuil de rhéoépaississement pour la fécule, au seuil d'écoulement pour les pâtes de billes de polystyrène. L'apparition du rhéoépaississement à la fin du régime localisé suggère que l'augmentation de la viscosité est due à l'encombrement.

La suspension de fécule de maïs et les pâtes granulaires présentent des profils de vitesse très similaires. En particulier, ils s'adimensionnent de la même façon lorsqu'il y a localisation, en abscisse et en ordonnée.

La localisation de l'écoulement pour des cisaillements faibles indiquent que la suspension concentrée de fécule de maïs présente un seuil d'écoulement, comme pour les pâtes granulaires.

Calculons maintenant un ordre de grandeur du nombre de Leighton critique pour la suspension de fécule de maïs. On a : $\dot{\gamma}_c \approx 1 \text{ s}^{-1}$, $\eta_s = 1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ et $\sigma_c \approx 10 \text{ Pa}$. Le nombre de Leighton vaut donc :

$$Le_c = \frac{\eta_s \dot{\gamma}_c}{\sigma_c} \approx \frac{10^{-3} \cdot 1}{10} = 10^{-4}.$$

Le nombre de Leighton critique Le_c pour la suspension de fécule de maïs étudiée est donc de 10^{-4} , comparable au nombre de Leighton calculé pour les pâtes de billes de polystyrène à $\phi = 58\%$ ($Le_c \approx 7 \pm 5 \times 10^{-4}$). Ce nombre sépare les régimes localisé et non-localisé pour les pâtes granulaires (voir chapitre 3). $Le_c \approx 10^{-4}$ semble donc être une valeur universelle pour les pâtes dont la fraction volumique est proche de l'encombrement maximal. Néanmoins, des expériences complémentaires à différents η_s pour les suspensions de fécule de maïs devraient être menées pour confirmer ou infirmer l'universalité de la valeur de 10^{-4} pour Le_c .

À la différence des pâtes de billes de polystyrène, pour les pâtes de fécule de maïs, il y a fracturation de la pâte à haut cisaillement et l'outil de cisaillement tourne alors à vide. Au contraire, pour la pâte de fécule de maïs, il y a rhéoépaississement. Le fluide semble se dilater fortement plutôt que se fracturer, causant l'augmentation brusque de la viscosité et de la contrainte normale. Ce régime rhéoépaississant est similaire à un

régime granulaire frictionnel, et pourrait être le siège d'instabilités viscoélastiques. Ces hypothèses ne sont pas incompatibles avec l'explication maintenant communément admise de formation d'agrégats pour expliquer le rhéoépaississement.

Conclusion

Nous pouvons maintenant répondre aux questions posées lors de l'introduction de cette thèse.

Quelle sont les paramètres physiques qui gouvernent la transition frictionnelle-visqueuse d'une pâte granulaire ?

La transition frictionnelle-visqueuse est gouvernée par la contrainte critique σ_c , le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et la viscosité du solvant η_s . Ces paramètres permettent de calculer un nombre adimensionnel, le nombre de Leighton Le , défini comme étant :

$$Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}.$$

Ce nombre, qui représente le rapport entre les forces de lubrification et les forces frictionnelles, régit entièrement la transition entre les deux régimes. Par ailleurs, nous avons montré que dans le régime « frictionnel », le cisaillement est localisé dans une zone qui augmente avec le taux de cisaillement macroscopique, au contraire des écoulements granulaires secs. Dans le régime « lubrifié », la pâte n'est pas simplement visqueuse : le rapport σ/N_1 entre contraintes de cisaillement et contraintes normales est constant et est à peu près égal au coefficient de frottement statique μ_s entre les particules de polystyrène, comme dans le régime frictionnel. Enfin, les profils de vitesse sont globalement exponentiels et peuvent être réajustés de manière universelle dans les deux régimes.

La bifurcation de viscosité donne à la fois la contrainte critique σ_c et le taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$, $\dot{\gamma}_c$ étant inversement proportionnel à la viscosité η_s du fluide interstitiel et σ_c étant constant en fonction de η_s . À partir de ces paramètres physiques critiques, on peut déterminer le nombre de Leighton critique $Le_c = \frac{\eta_s \dot{\gamma}_c}{\sigma_c}$, qui est une frontière entre les deux régimes. Si $Le < Le_c$, le régime est frictionnel ; si $Le \approx Le_c$, le régime est visqueux. Pour nos pâtes, en faisant varier η_s de 10^{-3} à 2,3 Pa.s, on a : $Le_c \approx (7 \pm 5).10^{-4}$.

Toutefois, le fait d'avoir un rapport de contraintes σ/N_1 égal au coefficient de frottement statique μ_s des particules, et le fait que les profils de vitesse soient réajustables dans les deux régimes, suggèrent que la transition serait plus justement une transition entre un régime d'écoulement localisé et un régime d'écoulement non localisé à taux de cisaillement imposé. À contrainte imposée et à l'état stationnaire, la pâte transite cette fois entre un état coincé et un état d'écoulement non localisé.

Le comportement rhéologique d'une pâte granulaire est interprété comme étant la compétition entre le vieillissement et le rajeunissement de la pâte pendant l'écoulement.

Peut-on définir une viscosité pour le matériau ?

Oui, à l'aide d'une loi constitutive qui fait intervenir trois équations : l'équation de la courbe d'écoulement $\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma}$ et l'équation de Krieger-Dougherty $\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2,5 \phi_m}$, et le rapport $\frac{\sigma}{N_1} \approx \mu_s$.

Des expériences en IRM ont permis de déterminer des courbes d'écoulement reliant la contrainte σ au taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ à partir de mesures locales. Or il y a à la fois désaccord entre les différentes courbes d'écoulement locales et avec la courbe d'écoulement macroscopique. Il s'agit pourtant du même matériau ! Un tel désaccord suggère une inhomogénéité du fluide sous écoulement. Un autre indice est l'augmentation de la viscosité en s'éloignant de l'axe du Couette cylindrique (car σ décroît en $1/r^2$, alors que le taux de cisaillement décroît exponentiellement). Il pourrait donc y avoir un profil de densité de particules croissant en s'approchant du cylindre fixe.

Le profil de densité des particules a pu être mesuré par IRM. Elle est croissante, confirmant de façon qualitative l'hypothèse précédente, et linéaire. Fait surprenant, elle n'évolue pas avec la vitesse du cylindre intérieur. C'est le précisaillement, imposé au fluide pour obtenir un même état initial avant chaque expérience, qui régit l'établissement du profil de densité. Au-delà d'une vitesse de précisaillement donnée (inférieure ou égale à 9 tr/mn dans nos expériences), le profil reste le même.

En tenant compte de ce profil de densité, identique quelle que soit l'expérience, on obtient l'évolution de la viscosité η en fonction de la fraction volumique ϕ : cette évolution suit l'équation de Krieger-Dougherty, qui s'écrit dans le cas le plus général :

$$\eta = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-n}.$$

$\phi_m = 60,8 \pm 0,1\%$ est proche de la fraction volumique maximale, et $n \approx 1,5$.

Cette équation, couplée avec la courbe d'écoulement de la pâte :

$$\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma},$$

permet de définir une viscosité pour la pâte.

On observe également l'invariance du rapport entre la contrainte de cisaillement et la première différence de contraintes normales N_1 :

$$\frac{\sigma}{N_1} \approx \mu_s.$$

L'équation de la courbe d'écoulement de la pâte, l'équation de Krieger-Dougherty et l'invariance du rapport σ/N_1 forment une loi constitutive pour la pâte granulaire étudiée.

Ainsi, une seule expérience locale en IRM, dans un grand entrefer, permet d'obtenir la courbe $\eta(\phi)$. Les mesures globales dans un petit entrefer donnent les mêmes résultats que

les mesures locales, et donc caractérisent elles-aussi correctement la pâte. L'accord entre les mesures locales et globales suggèrent par ailleurs que la migration des particules est contrariée dans un petit entrefer. A contrario, dans un entrefer plus grand, la migration engendre une diminution significative de la viscosité apparente, ce qui était l'observation initiale de Leighton et Acrivos [Leighton and Acrivos, 1987]. Il reste néanmoins à vérifier expérimentalement que le profil de densité dans un petit entrefer est bien plat, ou peu marqué.

La loi constitutive reste toutefois difficilement applicable directement à d'autres conditions d'écoulement. Outre le fait de devoir connaître la contrainte locale, il faut déterminer le profil de densité des particules pour pouvoir prédire l'écoulement.

Un autre phénomène mal compris pour les pâtes granulaires est le rhéoépaississement. On étudie dans le cadre de cette thèse une pâte granulaire de fécule de maïs, qui présente de manière flagrante ce phénomène, et on compare les résultats avec les résultats obtenus avec les pâtes de billes de polystyrène.

Pour les pâtes de billes de polystyrène, il y a localisation de l'écoulement à faible taux de cisaillement. Pour les suspensions de fécule de maïs, le rhéoépaississement survient en régime non localisé, pour des taux de cisaillement supérieurs à un taux de cisaillement critique. La contrainte critique et le taux de cisaillement critique de rhéoépaississement jouent le même rôle que la contrainte critique et le taux de cisaillement critique d'écoulement : ces grandeurs séparent un régime localisé² d'un régime non localisé.

L'apparition du rhéoépaississement lorsque l'écoulement envahit tout l'entrefer (donc à la fin du régime localisé) suggère que l'augmentation de la viscosité est due à l'encombrement.

Pendant le rhéoépaississement apparaissent également des instabilités dont les origines restent à établir clairement.

²Ou un régime bloqué pour les pâtes de billes de polystyrène, à contrainte imposée.

Bibliographie

- [Abou *et al.*, 2003] B. Abou, D. Bonn, and J. Meunier. Nonlinear rheology of laponite suspensions under an external drive. *J. Rheol.*, 47, 2003.
- [Acrivos *et al.*, 1993] A. Acrivos, R. Mauri, and X. Fan. Shear-induced resuspension in a Couette device. *Int. J. Multiphase Flow*, 19 :797, 1993.
- [Acrivos, 1995] A. Acrivos. Bingham award lecture - 1994. shear-induced particle diffusion in concentrated suspensions on noncolloidal particles. *J. Rheol.*, 39 :813, 1995.
- [Alderman *et al.*, 1991] N. J. Alderman, G. H. Meeten, and J. D. Sherwood. Vane rheometry of bentonite gels. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 39 :291, 1991.
- [Ancey and Coussot, 1999] C. Ancey and P. Coussot. Transition frictionnelle/visqueuse pour une suspension granulaire. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 327(Série II b), 1999.
- [Ancey, 2001] C. Ancey. Role of lubricated contacts in concentrated polydisperse suspensions. *J. Rheol.*, 45 :1421, 2001.
- [Arrhenius, 1917] S. Arrhenius. The viscosity of solutions. *Biochem. J.*, 11, 1917.
- [Atkins, 2003] P. W. Atkins. *Atkins' molecules*. Cambridge University Press, 2003.
- [Aurengo *et al.*, 1997] A. Aurengo, T. Petitclerc, and F. Grémy. *Biophysique*, 2^{ème} édition. Flammarion, 1997.
- [Bagnold, 1954] R. A. Bagnold. Experiments on a gravity-free dispersion of large solid spheres in a Newtonian fluid under shear. *Proc. R. Soc. Lond.*, 225 :49, 1954.
- [Ball and Richmond, 1980] R. Ball and P. Richmond. The dynamics of colloidal dispersions. *J. Phys. Chem. Liquids*, 9, 1980.
- [Barentin *et al.*, 2004] C. Barentin, E. Azanza, and B. Pouligny. Flow and segregation in sheared granular slurries. *Europhys. Lett.*, 66 :139, 2004.
- [Barnes *et al.*, 1989] H. A. Barnes, J. F. Hutton, and K. Walters. *An introduction to rheology*. Elsevier, 1989.
- [Barnes, 1989] H. A. Barnes. Shear-thickening ("dilatancy") in suspensions of nonaggregating solid particles dispersed in Newtonian liquids. *J. Rheol.*, 33 :329, 1989.
- [Barnes, 1995] H. A. Barnes. A review of the slip (wall depletion) of polymer solutions, emulsions and particle suspensions in viscometers : its cause, character, and cure. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 56, 1995.

- [Barnes, 1997] H. A. Barnes. Thixotropy - a review. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 98 :1, 1997.
- [Barnes, 1999] H. A. Barnes. The yield stress - a review - or 'παντα ρει' - everything flows? *J. Newtonian Fluid Mech.*, 81 :133, 1999.
- [Batchelor, 1977] G. K. Batchelor. Effect of Brownian motion on bulk stress in a suspension of spherical particles. *J. Fluid Mech.*, 83, 1977.
- [Baudez and Coussot, 2004] J. C. Baudez and P. Coussot. Abrupt transition from viscoelastic solidlike to liquidlike behavior in jammed materials. *Phys. Rev. Lett.*, 93(128302), 2004.
- [Bender and Wagner, 1995] J. W. Bender and N. J. Wagner. Optical measurement of the contributions of colloidal forces to the rheology of concentrated colloidal dispersions. *J. Coll. Int. Sci.*, 172(1), 1995.
- [Bender and Wagner, 1996] J. Bender and N. J. Wagner. Reversible shear thickening in monodisperse and bidisperse colloidal dispersions. *J. Rheol.*, 40(5), 1996.
- [Bergenholtz *et al.*, 2002] J. Bergenholtz, J. F. Brady, and M. Vucic. The non-Newtonian rheology of dilute colloidal suspensions. *J. Fluid Mech.*, 456 :239, 2002.
- [Bird *et al.*, 1982] R. B. Bird, G. C. Dai, and B. Y. Yarusso. The rheology and flow of viscoplastic materials. *Rev. Chem. Eng.*, 1 :1, 1982.
- [Bird *et al.*, 1987] R.B. Bird, R.C. Armstrong, , and O. Hassager. *Dynamics of polymeric liquids, vol. 1 : Fluid mechanics, second edition*. Wiley, New York, 1987.
- [Bonn *et al.*, 2002] D. Bonn, S. Tanase, B. Abou, H. Tanaka, and J. Meunier. Laponite : aging and shear rejuvenation of a colloidal glass. *Phys. Rev. Lett.*, 89, 2002.
- [Brady and Bossis, 1988a] J. F. Brady and G. Bossis. Stokesian dynamics. *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 20 :11137, 1988.
- [Brady and Bossis, 1988b] J. F. Brady and G. Bossis. Stokesian dynamics. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 20 :111, 1988.
- [Brady and Morris, 1997] J. F. Brady and J. F. Morris. Microstructure of strongly sheared suspensions and its impact on rheology and diffusion. *J. Fluid Mech.*, 348 :103, 1997.
- [Brady, 1996] J. F. Brady. Model hard-sphere dispersions : statistical mechanical theory, simulations, and experiments. *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.*, 1 :472, 1996.
- [Brien and Mackay, 2000] V. T. O Brien and M. E. Mackay. Stress components and shear thickening of concentrated hard sphere suspensions. *Langmuir*, 16 :7931, 2000.
- [Cates *et al.*, 1998] M. E. Cates, J. P. Wittmer, J.-P. Bouchaud, and P. Claudin. Jamming, force chains, and fragile matter. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :1841, 1998.
- [Chow and Zobowski, 1995] M. K. Chow and C. F. Zobowski. Nonequilibrium behavior of dense suspensions of uniform particles : volume fraction and size dependence of rheology and microstructure. *J. Chem. Phys.*, 39(1), 1995.
- [Cipra, 1998] B. Cipra. Mathematics : Packing challenge mastered at last. *Science*, 281 :1267, 1998.

- [Couarraze and Grossiord, 2000] G. Couarraze and J.-L. Grossiord. *Initiation à la rhéologie, 3^{ème} édition*. Lavoisier, 2000.
- [Coultrate, 2002] T. P. Coultrate. *Food : the chemistry of its components*. Royal Society of Chemistry, 2002.
- [Coussot and Ancy, 1999a] P. Coussot and C. Ancy. Rheophysical classification of concentrated suspensions and granular pastes. *Phys. Rev. E.*, 59 :4445, 1999.
- [Coussot and Ancy, 1999b] P. Coussot and C. Ancy. *Rhéophysique des pâtes et des suspensions*. EDP Sciences, Paris, 1999.
- [Coussot and Grossiord, 2001] P. Coussot and J.-L. Grossiord. *Comprendre la rhéologie (ouvrage collectif coordonné par P. Coussot et J.-L. Grossiord)*. EDP Sciences, 2001.
- [Coussot *et al.*, 2002a] P. Coussot, Q. D. Nguyen, H. T. Huynh, and D. Bonn. Avalanche behavior in yield stress fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 88(175501), 2002.
- [Coussot *et al.*, 2002b] P. Coussot, Q. D. Nguyen, H. T. Huynh, and D. Bonn. Viscosity bifurcation in thixotropic, yielding fluids. *J. Rheol.*, 46 :573, 2002.
- [Coussot *et al.*, 2002c] P. Coussot, J. S. Raynaud, E. Bertrand, P. Moucheron, J. P. Guibaud, H. T. Huynh, S. Jarny, and D. Lesueur. Coexistence of liquid and solid phases in flowing glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 88(218301), 2002.
- [Coussot *et al.*, 2005] P. Coussot, N. Roussel, S. Jarny, and H. Chanson. Continuous or catastrophic solid-liquid transition in jammed systems. *Physics of fluids*, 17(011704), 2005.
- [Coussot, 2005] P. Coussot. *Rheophysics of pastes, suspensions and granular materials*. Wiley - Interscience, 2005.
- [Cugliandolo *et al.*, 1997] L. F. Cugliandolo, J. Kurchan, P. Le Doussal, and L. Peliti. Glassy behaviour in disordered systems with nonrelaxational dynamics. *Phys. Rev. Lett.*, 78, 1997.
- [da Cruz *et al.*, 2002] F. da Cruz, F. Chevoir, D. Bonn, and P. Coussot. Viscosity bifurcation in foams, emulsions and granular systems. *Phys. Rev. E.*, 66(051305), 2002.
- [da Cruz, 2004] F. da Cruz. Écoulement de grains secs : frottement et blocage. *Thèse de doctorat, ENPC*, 2004.
- [D’Haene *et al.*, 1993] P. D. D’Haene, J. Mewis, and G. G. Fuller. Scattering dichroism measurements of flow-induced structure of a shear thickening suspension. *J. Colloid Interface Sci.*, 156 :350, 1993.
- [Doraiswamy, 2002] D. Doraiswamy. The origins of rheology : a short historical excursion. *Rheology Bulletin*, 71(1), 2002.
- [Einstein, 1906] A. Einstein. Investigations on the theory of the Brownian movement (corrections, *Ann. Phys.*, 1911, vol. 34, p.311), traduction de A. D. Cowper, 1926. *Annalen der Physik*, 19 :289, 1906.
- [Farr *et al.*, 1997] R. S. Farr, J. R. Melrose, and R. C. Ball. Kinetic theory of jamming in hardsphere startup flows. *Phys. Rev. E.*, 55 :7203, 1997.

- [Fermigier, 2004] M. Fermigier. *Hydrodynamique physique*. Polycopié de cours, 2004.
- [Fielding *et al.*, 2000] S. M. Fielding, P. Sollich, and M. E. Cates. Aging and rheology in soft materials. *J. Rheol.*, 44, 2000.
- [Frankel and Acrivos, 1967] N. A. Frankel and A. Acrivos. On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres. *Chem. Eng. Sci.*, 22, 1967.
- [Fuller, 1995] G. G. Fuller. *Optical rheometry of complex fluids*. Oxford University Press, New York, 1995.
- [Gadala-Maria and Acrivos, 1980] F. Gadala-Maria and A. Acrivos. Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres. *J. Rheol.*, 24 :799, 1980.
- [GDRMiDi, 2004] GDRMiDi. On dense granular flows. *Eur. Phys. J. E*, 14 :341, 2004.
- [Giesekus, 1966] H. Giesekus. Zur Stabilität von Strömungen viskoelastischen Flüssigkeiten. *Rheol. Acta*, 8 :239, 1966.
- [Guyon *et al.*, 2001] E. Guyon, J.-P. Hulin, and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences/CNRS Éditions, 2001.
- [Hales, 2005] T. C. Hales. A proof of the Kepler conjecture. *Ann. Math.*, 162 :1065, 2005.
- [Halsey and Levine, 1998] T. C. Halsey and A. J. Levine. How sandcastles fall. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :3141, 1998.
- [Herminghaus, 2005] S. Herminghaus. Dynamics of wet granular matter. *Adv. Phys.*, 54 :221, 2005.
- [Hoffmann, 1972] R. L. Hoffmann. Discontinuous and dilatant viscosity behavior in concentrated suspensions. I. Observations of a flow instability. *Trans. Soc. Rheol.*, 16 :155, 1972.
- [Hornbaker *et al.*, 1997] D.J. Hornbaker, R. Albert, I. Albert, A.-L. Barabási, and P. Schiffer. What keeps sandcastles standing. *Nature*, 387 :765, 1997.
- [Huang *et al.*, 2005] N. Huang, G. Ovarlez, F. Bertrand, S. Rodts, P. Coussot, and D. Bonn. Flow of wet granular materials. *Phys. Rev. Lett.*, 94(028301), 2005.
- [Hunt *et al.*, 2002] M. L. Hunt, R. Zenit, C. S. Campbell, and C. E. Brennen. Revisiting the 1954 suspension experiments of R. A. Bagnold. *J. Fluid Mech.*, 452 :1, 2002.
- [Jaeger *et al.*, 1996] H. M. Jaeger, S. R. Nagel, and R. P. Behringer. Granular solids, liquids, and gases. *Rev. Mod. Phys.*, 68 :1259, 1996.
- [James *et al.*, 1987] A. E. James, D. J. A. Williams, and P. R. Williams. Direct measurement of static yield properties of cohesive suspensions. *Rheol. Acta*, 26 :437, 1987.
- [Kepler, 1611] J. Kepler. *L'étrenne ou la neige sexangulaire, Strena seu de nive sexangula, Traduction critique de Robert Halleux*. Vrin pour l'édition 1975, 1611.
- [Khalidoun *et al.*, 2005] A. Khalidoun, E. Eiser, G. H. Wegdam, and D. Bonn. Liquefaction of quicksand under stress. *Nature*, 437, 2005.
- [Krieger and Dougherty, 1959] I. M. Krieger and T. J. Dougherty. A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *T. Soc. Rheol.*, 3 :137, 1959.

- [Krim, 1996] J. Krim. Les frottements à l'échelle atomique. *Pour la science*, 230, 1996.
- [Kytömaa and Prasad, 1993] H. K. Kytömaa and D. Prasad. Transition from quasi-static to rate dependent shearing of concentrated suspensions. *Powders and Grains*, 93, 1993.
- [Lagrée and Lhuillier, 2006a] P.-Y. Lagrée and D. Lhuillier. Communication privée. 2006.
- [Lagrée and Lhuillier, 2006b] P.-Y. Lagrée and D. Lhuillier. The Couette flow of dense and fluid-saturated granular media. *Eur. J. Mech. B/Fluids*, 25 :960, 2006.
- [Larson *et al.*, 1989] R. G. Larson, E. S. G. Shaqfeh, and S. J. Muller. A purely elastic instability in Taylor-Couette flow. *J. Fluid Mech.*, 218 :573, 1989.
- [Larson, 1999] R. G. Larson. *The structure and rheology of complex fluids*. Oxford University Press, New York, 1999.
- [Laun *et al.*, 1997] H. M. Laun, R. Bung, S. Hess, O. Hess, W. Loose, K. Hahn, E. Hagedicke, R. Hingmann, F. Schmidt, and P. Lindner. Rheological and small angle neutron scattering investigation of shear induced particle structures of concentrated polymer dispersions submitted to plane Poiseuille and Couette flow. *J. Rheol.*, 36(5), 1997.
- [Lee *et al.*, 2003] Y. S. Lee, E. D. Wetzel, and N. J. Wagner. The ballistic impact characteristics of kevlar woven fabrics impregnated with a colloidal shear thickening fluid. *J. Mat. Sci.*, 38 :2825, 2003.
- [Leighton and Acrivos, 1987] D. Leighton and A. Acrivos. The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions. *J. Fluid Mech.*, 181 :415, 1987.
- [Lenoble *et al.*, 2005] M. Lenoble, P. Sabre, and B. Pouligny. The flow of a very concentrated slurry in a parallel-plate device : influence of gravity. *Phys. Fluids*, 17(073303), 2005.
- [Liu and Nagel, 1998] A. J. Liu and S. R. Nagel. Jamming is not just cool anymore. *Nature*, 396 :21, 1998.
- [Lohse *et al.*, 2004] D. Lohse, R. Rauhé, R. Bergmann, and D. van der Meer. Creating a dry variety of quicksand. *Nature*, 432, 2004.
- [Lu *et al.*, 2000] C. Y. David Lu, P. D. Olmsted, and R. C. Ball. Effects of nonlocal stress on the determination of shear banding flow. *Phys. Rev. Lett.*, 84 :642, 2000.
- [Macosko, 1994] C. W. Macosko. *Rheology, Principles, Measurements and Applications*. Wiley-VCH, 1994.
- [Mandl and Fernandez-Luque, 1970] G. Mandl and R. Fernandez-Luque. Fully developed plastic shear flow of granular materials. *Géotechnique*, 20, 1970.
- [Maranzano and Wagner, 2001] B. J. Maranzano and N. J. Wagner. The effects of particle size on reversible shear thickening of concentrated colloidal dispersions. *J. Chem. Phys.*, 114(23), 2001.
- [Maranzano and Wagner, 2002] B. J. Maranzano and N. J. Wagner. Flow small angle neutron scattering measurements of colloidal dispersion microstructure evolution through the shear thickening transition. *J. Chem. Phys.*, 117(22), 2002.

- [McDonald and Anderson, 1996] R. R. McDonald and R. S. Anderson. Constraints on eolian grain flow dynamics through laboratory experiments on sand slopes. *J. Sediment. Res.*, 66 :642, 1996.
- [Melrose *et al.*, 1996] J. R. Melrose, J. H. Van Vliet, and R. C. Ball. Continuous shear thickening and colloid surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :4660, 1996.
- [Merkt *et al.*, 2004] F. S. Merkt, R. D. Deegan, D. I. Goldman, E. C. Rericha, and H. L. Swinney. Persistent holes in a fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 92(184501), 2004.
- [Metzner and Whitlock, 1958] A.B. Metzner and M. Whitlock. Flow behaviour of concentrated (dilatant) suspensions. *Trans. Soc. Rheol.*, 2 :239, 1958.
- [Mewis, 1979] J. Mewis. Thixotropy - a general review. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 6 :1, 1979.
- [Mitarai and Nori, 2006] N. Mitarai and F. Nori. Wet granular materials. *Adv. Phys.*, 55 :1, 2006.
- [Møller *et al.*, 2006] P. C. F. Møller, J. Mewis, and D. Bonn. Yield stress and thixotropy : on the difficulty of measuring yield stresses in practice. *Soft Matter*, 3, 2006.
- [Morrison, 2001] F. A. Morrison. *Understanding rheology*. Oxford University Press, 2001.
- [Mueth *et al.*, 2000] D. M. Mueth, G. F. Debregeas, G. S. Karczmar, S. R. Nagel P. J. Eng, and H. M. Jaeger. Signatures of granular microstructure in dense shear flows. *Nature, London*, 406 :385, 2000.
- [Muller *et al.*, 1989] S. J. Muller, R. G. Larson, and E. S. G. Shaqfeh. A purely elastic transition in Taylor-Couette flow. *Rheol. Acta*, 28 :499, 1989.
- [Newstein *et al.*, 1999] M. C. Newstein, H. Wang, and N. P. Balsara. Microstructural changes in a colloidal liquid in the shear thinning and shear thickening regimes. *J. Chem. Phys.*, 111(10), 1999.
- [Newton, 1687] I. S. Newton. *Principia mathematica philosophiae naturalis, Principes mathématiques de la philosophie naturelle, Traduit de l'anglais par La Marquise du Châtelet, Préface de Monsieur de Voltaire*. Dunod pour l'édition 2005, Traduction de 1769, 1687.
- [Nguyen and Boger, 1992] Q. D. Nguyen and D. V. Boger. Measuring the flow properties of yield stress fluids. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 24 :47, 1992.
- [Nowak *et al.*, 2005] S. Nowak, A. Sadamani, and A. Kudrolli. Maximum angle of stability of a wet granular pile. *Nature Phys.*, 1 :52, 2005.
- [Onoda and Liniger, 1990] G.Y. Onoda and E.G Liniger. Random loose packings of uniform spheres and the dilatancy onset. *Phys. Rev. Lett.*, 64, 1990.
- [Ovarlez *et al.*,] G. Ovarlez, F. Bertrand, and S. Rodts. Local determination of the constitutive law of a dense suspension of non-colloidal particles through MRI.
- [Phan-Thien,] N. Phan-Thien. Coaxial-disk flow of an Oldroyd-B fluid : exact solution and stability. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*

- [Philippe and Bideau, 2003] P. Philippe and D. Bideau. Granular medium under vertical tapping : change of compaction and convection dynamics around the liftoff threshold. *Phys. Rev. Lett.*, 91(104302), 2003.
- [Phillips *et al.*, 1992] R. J. Phillips, R. C. Armstrong, R. A. Brown, A. L. Graham, and J. R. Abbott. A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration. *Phys. Fluids*, 4 :30, 1992.
- [Pouliquen *et al.*, 1997] O. Pouliquen, M. Nicolas, and P. D. Weidman. Crystallization of non-Brownian spheres under horizontal shaking. *Phys. Rev. Lett.*, 79, 1997.
- [Pouliquen, 2001] O. Pouliquen. *Les milieux granulaires, entre solide et liquide*. Polycopié de cours, 2001.
- [Prasad and Kytömaa, 1995] D. Prasad and H. K. Kytömaa. Particle stress and viscous compaction during shear of dense suspensions. *Int. J. Multiphase Flow*, 21 :775, 1995.
- [Raynaud *et al.*, 2002] J. S. Raynaud, P. Moucheront, J. C. Baudez, F. Bertrand, J. P. Guilbaud, and P. Coussot. Direct determination by nuclear magnetic resonance of the thixotropic and yielding behavior of suspensions. *J. Rheol.*, 46 :709, 2002.
- [Reiner, 1964] M. Reiner. The Deborah number. *Phys. Today*, 17 :62, 1964.
- [Robertson and Wang, 2005] C. G. Robertson and X. Wang. Isoenergetic jamming transition in particle-filled systems. *Phys. Rev. Lett.*, 95(075703), 2005.
- [Rodts *et al.*, 2004a] S. Rodts, F. Bertrand, S. Jarny, P. Poullain, and P. Moucheront. Développements récents dans l'application de l'IRM à la rhéologie et à la mécanique des fluides. *C. R. Chimie*, 7 :275, 2004.
- [Rodts *et al.*, 2004b] S. Rodts, F. Bertrand, S. Jarny, P. Poullain, and P. Moucheront. Développements récents dans l'application de l'IRM à la rhéologie et à la mécanique des fluides. *C. R. Chimie*, 7 :275, 2004.
- [Saunders, 1961] F. L. Saunders. Rheological properties of monodisperse latex systems I. Concentration dependence of relative viscosity . *J. Colloid Sci.*, 16, 1961.
- [Savage, 1984] S. B. Savage. The mechanics of rapid granular flows. *Adv. Appl. Mech.*, 24, 1984.
- [Scott and Kilgour, 1969] G. D. Scott and D. M. Kilgour. The density of random close packing of spheres. *Brit. J. Appl. Phys. ser.2*, 2, 1969.
- [Scott, 1962] G. D. Scott. Radial distribution of the random close packing of equal spheres. *Nature*, 194, 1962.
- [Shaqfeh, 1996] E. S. G. Shaqfeh. Purely elastic instabilities in a viscometric flows. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 28 :129, 1996.
- [Shauly *et al.*, 1998] A. Shauly, A. Wachs, and A. Nir. Shear-induced article migration in a polydisperse concentrated suspension. *J. Rheol.*, 42 :1329, 1998.
- [Shenoy and Wagner, 2005] S. S. Shenoy and N. J. Wagner. Influence of medium viscosity and adsorbed polymer in the reversible shear thickening transition in concentrated colloidal dispersions. *Rheol. Acta*, 44 :360, 2005.

- [Sollich *et al.*, 1997] P. Sollich, F. Lequeux, P. Hébraud, and M. Cates. Rheology of soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 78, 1997.
- [Sollich, 1998] P. Sollich. Rheological constitutive equation for a model of soft glassy materials. *Phys. Rev. E*, 58, 1998.
- [Szpiro, 2003] G. Szpiro. Mathematics : Does the proof stack up? *Nature*, 424 :12, 2003.
- [Taylor, 1923] G. I. Taylor. Stability of a viscous liquid contained between rotating cylinders. *Phil. Trans. Roy. Soc. London Serie A*, 223 :289, 1923.
- [Trappe *et al.*, 2001] V. Trappe, V. Prasad, L. Cipelletti, P. N. Segre, and D. A. Weitz. Jamming phase diagram for attractive particles. *Nature*, 411 :772, 2001.
- [VanDamme *et al.*, 2002] H. VanDamme, S. Mansoutre, P. Colombet, C. Lesaffre, and D. Picart. Pastes : lubricated and cohesive granular media. *C. R. Physique*, 3 :229, 2002.
- [Weitz, 2001] D. A. Weitz. Memories of paste. *Nature*, 410, 2001.
- [Weitz, 2004] D. A. Weitz. Packing in the spheres. *Science*, 303, 2004.
- [Wilson, 2006] H. J. Wilson. *Polymeric fluids*. Notes de cours, 2006.

Rhéologie des pâtes granulaires

Cette thèse porte sur la rhéologie des pâtes granulaires. L'image classique pour les pâtes granulaires est qu'il y a une transition d'un écoulement frictionnel vers un écoulement lubrifié lors de l'augmentation du taux de cisaillement. Nous montrons qu'il existe en réalité une transition d'un écoulement localisé vers un écoulement non-localisé. Le paramètre pertinent caractérisant cette transition est le nombre de Leighton $Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}$, qui est le rapport entre les forces lubrifiées et frictionnelles. Le définit un taux de cisaillement critique au-dessous duquel aucun écoulement stationnaire sans localisation ne peut exister. Par ailleurs, en menant à la fois des expériences en IRM et des expériences de rhéologie classique, nous définissons une viscosité pour les pâtes granulaires. Il faut pour cela tenir compte de la migration des particules vers les zones faiblement cisailées lors de l'écoulement, migration qui engendre un profil de concentration des particules. La viscosité est donnée par une loi constitutive constituée de trois équations : l'équation de la courbe d'écoulement $\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma}$, l'équation de Krieger-Dougherty $\eta(\phi) = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2,5 \phi_m}$, et le rapport $\frac{\sigma}{N_1} \approx \mu_s$. Enfin, nous étudions des suspensions rhéoépaississantes de fécule de maïs qui présentent également une transition d'un régime localisé vers un régime non-localisé autour d'un seuil de rhéoépaississement.

Rheology of granular pastes

We study the rheology of a non-Brownian granular paste. The usual picture for granular pastes is that there is a transition from frictional to lubricated flows with increasing shear rate. We show that, in fact, there is a transition from a localized flow to a flow without localization. The pertinent parameter characterizing this transition is the Leighton number $Le = \frac{\eta_s \dot{\gamma}}{\sigma}$, the ratio of lubrication to frictional forces. Le defines a critical shear rate below which no steady flow without localization exists. Moreover, using both MRI investigation techniques and classical rheology studies, we define a viscosity for granular pastes. To do such, migration of particles towards weakly sheared regions must be taken into account. This migration leads to a particle concentration profile. The viscosity is given by the constitutive law, with three equations intervening : the flow curve equation $\sigma = \eta(\phi) \dot{\gamma}$, the Krieger-Dougherty equation $\eta(\phi) = \eta_s \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2,5 \phi_m}$, and the ratio $\frac{\sigma}{N_1} \approx \mu_s$. Finally, we study shear-thickening corn starch suspensions, which also present a transition from a localized to a non-localized regime around a critical shear-thickening threshold.