



HAL
open science

Etude de la sédimentation de particules non-browniennes dans un fluide thixotrope à seuil : la laponite

Blandine Gueslin

► **To cite this version:**

Blandine Gueslin. Etude de la sédimentation de particules non-browniennes dans un fluide thixotrope à seuil : la laponite. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. Français. NNT : . tel-00120321

HAL Id: tel-00120321

<https://theses.hal.science/tel-00120321>

Submitted on 14 Dec 2006

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

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



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS 6

Spécialité : PHYSIQUE DES LIQUIDES

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR de
L'UNIVERSITÉ de PARIS 6**

Présentée par

Blandine Michaud épouse GUESLIN

Sujet de la thèse :

**Étude de la sédimentation de particules non-browniennes dans un
fluide thixotrope à seuil : la laponite**

Soutenue le :

27 Novembre 2006

Devant le jury composé de :

C. Allain Directrice de Thèse
L. Bergougnoux Examineur
E. Clément Président
P. Coussot Rapporteur
F. Lequeux Rapporteur
Y. Peysson Examineur
L. Talini Directrice de Thèse

À Catherine

qui a dirigé cette thèse

pendant 3 ans

Remerciements

Tout d'abord, j'aurais aimé remercier de vive voix **Catherine Allain** qui a dirigé ma thèse pendant presque trois ans avec patience, disponibilité et un regard qui savait toujours se placer au bon endroit pour avancer, elle est restée d'une aide merveilleuse tout au long de ma thèse. Outre un suivi régulier et très pointu, Catherine savait aussi lier des rires à la recherche : elle savait lancer une plaisanterie souvent bien à propos. Elle n'a malheureusement pas pu relire ce manuscrit, j'espère qu'il est à la hauteur de tout ce qu'elle m'a apporté.

Je tiens aussi à remercier **Laurence Talini** qui a suivi mon sujet depuis le stage de DEA et qui a eu la lourde tâche d'encadrer ma thèse en l'absence de Catherine. Laurence ne se contente pas d'à peu près mais elle veut le meilleur ce qui a beaucoup apporté à ma thèse. Je tiens ainsi à la remercier chaleureusement.

Cette thèse a été financée par le biais d'une thèse CIFRE co-financée par l'**IFP**. Elle a été suivie de près par **Yannick Peysson** et **Benjamin Herzhaft**. Ils ont toujours été très intéressés par l'avancée des recherches. Ils m'ont apporté une connaissance très approfondie des fluides à seuil et du monde pétrolier je les en remercie tout particulièrement.

Je remercie **Dominique Salin** pour m'avoir accueillie chaleureusement dans son laboratoire.

Je remercie **Philippe Coussot** et **François Lequeux** d'avoir accepté de rapporter sur ma thèse. Leur vision du sujet m'a conduit à un nouveau regard au moment de la soutenance.

Je remercie **Eric Clément** d'avoir présidé le jury et **Laurence Bergounoux** de sa présence au sein du jury. J'ai beaucoup apprécié leurs questions sur le sujet.

Je remercie aussi tout particulièrement **Frédéric Doumenc** et **Frédéric Moisy**. Ils m'ont aidée dans l'avancée de ma thèse grâce à leur disponibilité, F. Doumenc par une aide au quotidien et F. Moisy par une introduction très réussie au logiciel *Davis*.

Je remercie également **Béatrice Guerrier**, **Jean-Pierre Hulin**, **Marc Rabaud**, **Dominique Gobin**, **Ludovic Pauchard**, **Frédérique Giorgiutti**, **Christian Ruyer-Quil**, **Harold Auradou**,

George Gauthier et tous les autres chercheurs et enseignant-chercheurs du laboratoire pour leurs nombreux services rendus et soutien pendant ma thèse et la préparation de la soutenance.

Je remercie également **Eric Lécolier**, **Bérangère Abou** ainsi que tous ceux avec qui j'ai pu discuter de mes expériences pour leurs conseils face aux difficultés rencontrées lors de l'utilisation de la laponite.

Je remercie tout spécialement **Rafaël Pidoux** technicien au laboratoire qui a réalisé de nombreuses cellules de sédimentation et qui a perdu un bout de doigt lors de la réalisation de l'une d'entre elles. Un grand merci à **Gérard Chauvin** qui a dirigé l'atelier et réalisé de nombreuses pièces des montages utilisés ici.

Je remercie également **Monique Sainte-Rose** qui a gardé mon fils pendant ma soutenance et qui avec **Maryse Labrude** ont réalisé toutes les tâches administratives pour réaliser ma thèse. **Léonor Alves** a également tous mes remerciements pour son application à nous rendre le lieu de travail agréable, je m'excuse de toutes mes affaires qui ont traînées souvent un peu n'importe où. Je remercie **Jean-Marie Hollier**, **Alban Aubertin** et **Christian Borget** qui ont travaillé à me faciliter la vie.

Je salue les compagnons de cette aventure **Yonko Gorand**, **Yann Bertho**, **Sylvain Courrech du Pont**, **Laurent Talon**, **Marc Leconte**, **Delphine Doppler**, **Thomas Séon**, **Cyprien Morize**, **Silvia Hirata**, **Marguerite d'Olce**, **Raphaël Fischer**, **Fahmi Loghmari**, **Angélique Deboeuf**, **Camille Duprat** et **Jemil Znaïen** mes collègues thésards. Je salue également **Serge Mora**, **Emilie Verneuil**, **Guillaume Toussaint** et **Stéphanie Deboeuf** les ATER qui sont passés au laboratoire et les stagiaires que j'ai côtoyés ou encadrés **Lorine**, **Nicolas**, **Claire**, **Guylaine**, **Aouatef** ...

Je remercie tout le personnel des **Noisetiers** de l'IFP pour leur accueil fabuleux alors que je n'y suis restée que deux fois dix jours.

Je remercie mes parents qui m'ont aidé pour le pot de thèse et qui m'ont laissé faire de la science. Je remercie Thibault mon mari et mon plus grand supporter. Je remercie également Quentin mon fils qui m'a laissé finir ma thèse sans problèmes et qui, je l'espère, saura un jour lire et comprendre ce manuscrit.

Enfin, je remercie tous ceux qui m'ont aidée à réaliser ma thèse et que j'ai pu oublier précédemment.

Table des matières

Introduction	13
1 Étude bibliographique	17
I La laponite	19
I.1 État chimique et structure microscopique	19
I.2 Forces d'interaction dans la laponite	20
I.3 Préparation de la laponite	21
I.4 État physique de la laponite	23
I.4.1 Description du vieillissement d'un gel	23
I.4.2 Description du vieillissement pour un verre colloïdal	23
I.4.3 Évolution des temps de relaxation dans la laponite	25
I.5 Conclusion sur la laponite	25
II Rhéologie	27
II.1 Modèles simples de description des fluides complexes	28
II.1.1 Fluides newtoniens généralisés	28
II.1.2 Description du caractère viscoélastique linéaire	28
II.1.3 Description du caractère thixotrope	29
II.1.4 Bifurcation de viscosité des fluides thixotropes	30
II.2 Lois de comportement ou "équations constitutives"	31
II.3 Mesures de viscosité élongationnelle	32
II.4 Mesures de rhéologie : précautions d'usage	33
II.5 Rhéologie de la laponite	34
III Vitesse de sédimentation de particules en milieu non-newtonien	37
III.1 Rappels sur la sédimentation en milieu newtonien	37
III.1.1 Interactions avec les parois	40
III.2 Vitesse de sédimentation de particules isolées en milieu non-newtonien	40

III.2.1	Cas rhéofluidifiant	40
III.2.2	Fluide à seuil	41
III.2.3	Fluide thixotrope	43
III.3	Sédimentation de quelques particules et suspensions	45
III.3.1	Influence des parois	46
IV	Écoulement du fluide autour d'une particule en sédimentation	49
IV.1	Fluide newtonien	50
IV.2	Fluide viscoélastique et/ou rhéofluidifiant	51
IV.3	Fluide à seuil non thixotrope	56
IV.3.1	Expériences	57
IV.3.2	Calculs numériques	57
V	Biréfringence	59
V.1	Généralités sur la biréfringence	60
V.1.1	Définitions	60
V.1.2	Origine de la biréfringence	60
V.1.3	Signe de la biréfringence	62
V.2	Biréfringence induite	62
V.2.1	Biréfringence de la laponite et d'argiles discoïdes	62
V.2.2	Mesures de rhéologie par biréfringence	65
V.2.3	Biréfringence de fluides complexes induite par la sédimentation ou la remontée d'objets	65
V.3	Conclusion sur la bibliographie	66
2	Système expérimental	67
I	Description de la laponite et caractérisation par rhéologie	69
I.1	Choix du fluide	70
I.2	Laponite	70
I.2.1	Protocole de préparation	70
I.2.2	Chronologie	71
I.2.3	Justification du protocole de préparation	72
I.2.4	Étude du pH	73
I.2.4.1	Pendant le "mûrissement"	74
I.2.4.2	Après utilisation	74
I.3	Rhéologie	75

I.3.1	Matériel et méthodes	75
I.3.1.1	Rhéomètres : principe et matériel	75
I.3.1.2	Géométries	76
I.3.1.3	Mesures de rhéologie	76
I.3.1.4	Types d'expériences	77
I.3.2	Résultats	77
I.3.2.1	Rampe de contrainte	78
I.3.2.2	Évolution sous contrainte	81
I.3.2.3	Modèle de description de la rhéologie de la laponite	82
I.3.2.4	Fluage	87
I.3.3	Mesures de viscosité élongationnelle	92
I.3.4	Conclusion	94
3	Étude de la sédimentation d'une particule isolée	95
I	Vitesse de sédimentation d'une particule isolée dans la laponite	97
I.1	Matériel et montage	98
I.1.1	Particules macroscopiques utilisées	98
I.1.2	Cellule de sédimentation	98
I.1.3	Montage et expérience	99
I.1.4	Notations	101
I.2	Résultats	102
I.2.1	Vitesse de sédimentation	102
I.2.2	Modèle de description de la sédimentation	102
I.2.3	Comparaison à la rhéologie	106
I.2.3.1	Temps caractéristique de vieillissement	106
I.2.3.2	Variation de la vitesse avec le type de particule	107
I.2.3.3	Comparaison avec les résultats de créneau de contrainte	107
I.2.4	Longueur d'arrêt	109
I.2.5	Comparaison aux autres résultats de la littérature	110
I.3	Conclusion	114
II	Écoulement autour d'une particule macroscopique isolée en sédimentation	115
II.1	Expérience	116
II.1.1	Montage et protocole	116
II.1.2	Principe du calcul du champ de vitesse par PIV	117
II.1.3	Calculs de PIV dans le cas de la sédimentation de particules dans la laponite	119

II.1.4	Conventions utilisées pour la présentation des résultats	120
II.2	Validation du montage	120
II.2.1	Précautions et erreurs	120
II.2.1.1	Influence des traceurs sur la laponite	121
II.2.1.2	Erreurs dues aux images	121
II.2.1.3	Erreurs dues au déplacement de la particule	124
II.2.1.4	Limite de mesure	125
II.2.2	Cas newtonien	126
II.2.3	Conclusion	129
II.3	Résultats dans la laponite	129
II.3.1	Champs de vitesse	130
II.3.2	Analyse en amont de la particule	133
II.3.3	Analyse de la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule	133
II.3.4	Analyse en aval de la particule : zone d'élongation	137
II.4	Conclusion	141
III	Étude de la sédimentation d'une particule isolée par biréfringence	143
III.1	Montage	144
III.1.1	Principe du montage	144
III.1.2	Principe de la mesure	145
III.1.3	Protocole expérimental	145
III.1.4	Description des résultats	146
III.1.5	Calibration	147
III.1.6	Limites de mesure	148
III.2	Résultats	148
III.2.1	Images brutes	148
III.2.2	Évolution de la biréfringence maximale	150
III.2.3	Description de la biréfringence à la verticale de la particule	151
III.2.4	Relaxation de la biréfringence après le passage de la particule	151
III.2.5	Analyse à l'horizontale de la particule en fonction du temps de vieillissement	155
III.3	Comparaison avec les résultats en champ de vitesse	158
III.3.1	Comparaison locale avec le champ de vitesse	158
III.3.2	Comparaison de la biréfringence avec le gradient de vitesse et le taux d'élongation	159
III.3.2.1	Discussion dans la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule	160
III.3.2.2	Discussion sur la zone en élongation à la verticale de la particule	160
III.3.3	Discussion	162
III.3.4	Conclusion sur la biréfringence	163

III.4 Conclusion sur la sédimentation d'une particule isolée	163
4 Étude de la sédimentation de plusieurs particules	165
I Sédimentation de doublets de particules dans la laponite	167
I.1 Dispositif expérimental	168
I.1.1 Protocole expérimental	168
I.1.2 Montage	168
I.1.3 Validation dans le cas newtonien	170
I.1.4 Particules	170
I.2 Résultats dans la laponite	171
I.2.1 Observation macroscopique	171
I.2.2 Comparaison aux résultats attendus dans le cas newtonien	172
I.2.3 Description du déplacement	175
I.2.4 Description de la dynamique observée	175
I.2.4.1 Dynamique de formation d'un agrégat	175
I.2.4.2 Comparaison des rapports de vitesses pour toutes les expériences	176
I.2.5 Angle de l'agrégat	178
I.2.6 Discussion	178
I.2.7 Conclusion	179
II Étude de la sédimentation de suspensions de particules dans la laponite	181
II.1 Système expérimental	182
II.1.1 Montage	182
II.1.2 Particules	183
II.1.3 Cellule de sédimentation	183
II.1.4 Protocole expérimental	183
II.1.5 Conversion $I-\phi$	183
II.2 Validation du système expérimental	184
II.3 Résultats dans la laponite	186
II.3.1 Résultats macroscopiques	186
II.3.2 Dynamique de la sédimentation	186
II.3.3 Dynamique du front de sédimentation	187
II.3.4 Agrégation	191
II.4 Discussion	191
II.5 Conclusion	192

Conclusion	195
Annexes	201
A Notations	201
B Principe et vocabulaire de la rhéologie	203
B.1 Cisaillement simple	204
B.2 Élongation uniaxe	205
B.3 Différents types de comportement des fluides	206
B.4 Description microscopique	207
C Calcul du déplacement d'un paquet de fluide à la verticale de la particule pendant son déplacement	209
Bibliographie	216

Introduction

Les fluides complexes sont couramment utilisés dans des applications domestiques et industrielles. Un fluide complexe (appelé aussi non-newtonien) est un fluide pour lequel la viscosité n'est plus une constante. Dans la vie courante, des fluides tels que le dentifrice ou la maïzena (dans l'eau) sont des exemples assez caractéristiques. Le dentifrice ne coulera que si on exerce une contrainte suffisamment élevée sur le tube : c'est un fluide à seuil. La maïzena coulera comme de l'eau si on exerce une contrainte faible mais aura un comportement proche d'un solide si on exerce une contrainte élevée : c'est un fluide rhéoépaississant. Dans le domaine pétrolier, des fluides complexes sont également souvent utilisés. Par exemple pour le transport de déblais de forage, on recherchera un fluide à seuil qui maintienne les particules en suspension lors d'un arrêt de circulation et qui soit peu visqueux lors du transport pour éviter trop de pertes de charge.

Ce travail se place dans le cadre de l'étude du transport de particules dans le domaine pétrolier qui intervient dans de nombreux procédés comme par exemple le forage ou la complétion.

Dans la phase de forage, il s'agit de remonter les déblais générés par la tête de forage du fond du puits à la surface ; pour cela des fluides aux propriétés particulières sont utilisés : des boues de forage. Ces fluides ont comme fonctions (entre autres) de refroidir l'outil pendant le forage, de maintenir mécaniquement les parois du puits au sein de la formation rocheuse et de remonter les déblais jusqu'à la surface. La formulation de ces produits est très complexe pour répondre à ces fonctions. Ces fluides sont en général à seuil et rhéofluidifiants. Ils contiennent de nombreux constituants, principalement des polymères et des argiles. La base du fluide peut être de l'eau ou de l'huile suivant l'utilisation. La sédimentation de particules peut intervenir lors d'un arrêt de circulation ; si elle est mal contrôlée, elle peut boucher le puits (ce qui engendre de lourdes pertes financières car le forage est une opération très coûteuse).

Dans une phase de complétion, un puits foré de perméabilité trop faible est préparé à la production. Dans le cadre d'opérations de fracturation, des fractures sont générées dans le puits, au moyen d'un fluide visqueux injecté à forte pression. Pour maintenir ces fractures ouvertes, on introduit des particules dans le fluide (particules naturelles ou céramiques appelées "proppant"). Le réservoir est ensuite

laissé au repos, la pression de l'environnement permet au fluide du réservoir de produire à travers ces fractures. Le fluide de fracturation doit ainsi répondre à de nombreux critères afin d'améliorer la productivité : il doit avoir une viscosité importante pour propager la fracture, ne pas être trop visqueux lors du pompage pour réduire les pertes de charge (fluide rhéofluidifiant), bien disperser les particules dans le fluide. Les fluides utilisés sont à base de polymère ou de solutions de micelles géantes. Lors de ce travail, il faut éviter de boucher le puits de pétrole avec les particules ajoutées. Le contrôle de la sédimentation est ainsi très important.

Dans chacun de ces cas une compréhension de la sédimentation des particules dans des fluides complexes est nécessaire. Sur le terrain, des modèles simples de rhéologie sont appliqués pour décrire le comportement des fluides. Les mesures rhéologiques consistent essentiellement à réaliser, à partir d'une cellule de Couette, une première courbe d'écoulement (rhéogramme), puis le fluide est laissé au repos 30 min et une seconde courbe est réalisée. De ces courbes une contrainte seuil est établie par extrapolation aux faibles gradients de cisaillement du rhéogramme ; ainsi les particules qui exercent une contrainte inférieure à cette valeur sont supposées maintenues en suspension. Des écarts souvent importants sont observés entre les résultats sur le terrain et les résultats prévus par les modèles. Il est donc nécessaire d'affiner les modèles existants. Cette étude est très complexe car les fluides possèdent de nombreuses propriétés à la fois ; de plus, les particules sont nombreuses et de tailles très variables (du μm au cm dans le cas du forage). Les conditions d'utilisation des fluides sont par ailleurs très spécifiques : température élevée, forte pression.

D'un point de vue académique, le problème de la sédimentation de particules isolées sphériques dans un fluide complexe est encore mal connu. Une étude sur le xanthane, solution de polymères rhéofluidifiante, a été réalisée au laboratoire FAST (Orsay) dans le cadre d'une thèse avec l'IFP (Institut Français du Pétrole) soutenue en novembre 2002 [1]. Lors de cette thèse une agrégation des particules a été observée si les particules sont suffisamment proches. Cette agrégation devient très importante dans le cas de la sédimentation de suspensions et a des conséquences majeures sur la cinétique de sédimentation : cette dernière est alors fortement accélérée en conséquence d'une structuration du fluide en colonnes de paquets de particules d'une part et colonnes de fluide clair d'autre part.

Le fluide choisi dans cette étude présente donc un autre aspect rhéologique, ce fluide est décrit comme un fluide "thixotrope à seuil". Nous avons utilisé un fluide modèle : une suspension de laponite. Cette argile est de constitution chimique assez proche de la bentonite (constituant des boues de forage), mais transparent.

Ce rapport est divisé en quatre parties, la première partie rappelle l'état des connaissances à la fois sur la physico-chimie du fluide, la rhéologie des fluides complexes, la vitesse de sédimentation

dans des fluides complexes et l'écoulement autour d'une particule en sédimentation dans un fluide complexe. La deuxième partie décrit le protocole utilisé pour préparer les échantillons ainsi que les caractéristiques rhéologiques du fluide. La troisième partie est consacrée à l'étude de la sédimentation d'une particule isolée sous différents aspects : vitesse de sédimentation de la particule, écoulement autour de cette particule et biréfringence induite autour de la particule. La quatrième partie est dédiée à l'étude de la sédimentation de plusieurs particules : doublets de particules et suspensions de particule.

Les termes et les notations utilisées sont rappelés dans l'annexe A intitulée "Notations" pour aider le lecteur qui pourra s'y référer à tout moment lors de la lecture de ce manuscrit.

Première partie

Étude bibliographique

Chapitre I

La laponite

Dans ce chapitre, la laponite est décrite, c'est une argile synthétique qui a fait récemment l'objet de différentes études physiques ; nous en présenterons quelques unes. Il s'agit d'une argile synthétique qui, en suspension dans l'eau, est transparente.

Sommaire

I.1	État chimique et structure microscopique	19
I.2	Forces d'interaction dans la laponite	20
I.3	Préparation de la laponite	21
I.4	État physique de la laponite	23
I.4.1	Description du vieillissement d'un gel	23
I.4.2	Description du vieillissement pour un verre colloïdal	23
I.4.3	Évolution des temps de relaxation dans la laponite	25
I.5	Conclusion sur la laponite	25

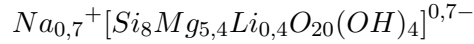
I.1 État chimique et structure microscopique

La laponite utilisée est fabriquée par l'entreprise Rockwood (anciennement Laporte) en Angleterre. Il existe plusieurs qualités de laponite ; celle utilisée dans cette étude est de qualité "RD" (parmi les produits proposés par le fabricant). Elle est composée d'un mélange d'oxydes métalliques :

SiO ₂	59.5%
MgO	27.5%
Li ₂ O	0.8%
Na ₂ O	2.8%

TAB. 1.1.1 – composition de la laponite (selon la notice du fabricant).

La laponite est un cristal dont la maille a une formule générale de la forme :



La laponite est classifiée comme une argile smectite c'est-à-dire que ses mailles se présentent sous la forme de trois feuillets : deux feuillets silicium entourant un feuillet à base de magnésium et lithium contenant, en suspension dans l'eau, des groupements fortement chargés (dépendants du pH d'utilisation). Un monocristal est constitué de 30 000 à 40 000 mailles et forme une plaquette discoïde comme le montre la figure 1.I.1 chargée (à pH 10) positivement sur le bord et négativement sur les faces. Ceci se traduit par des interactions entre particules présentées succinctement dans le paragraphe suivant.

Dans cette étude la "laponite" correspondra, par un certain abus de langage, à la fois à la poudre et aux suspensions issues de sa dispersion dans l'eau.

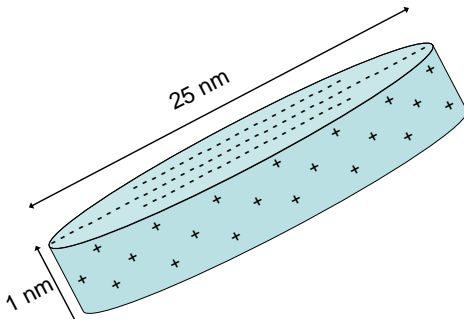


FIG. 1.I.1 – Particule de laponite.

I.2 Forces d'interaction dans la laponite

Dans la laponite, différentes forces permettent de décrire les interactions entre les plaquettes dans le fluide. De par leurs tailles, elles sont colloïdales. Une description détaillée des interactions colloïdales se trouve dans [2]. Les interactions électrostatiques conduisent ainsi à définir une longueur d'écrantage κ^{-1} dite longueur de Debye¹.

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\epsilon k_B T}{I}}$$

Dans la laponite, les interactions sont assez difficile à calculer en particulier à cause de la forme des particules et de la coexistence de charges positives et négatives sur les particules.

La structure des suspensions de laponite dépend donc de nombreux paramètres physicochimiques à contrôler (pH, force ionique etc.) [3]. Ainsi, à pH élevé, suivant la force ionique l'état macroscopique des suspensions sera très différent [4] :

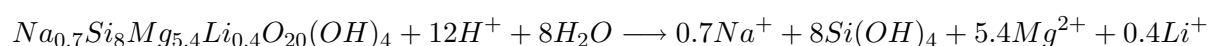
¹ ϵ est la permittivité de la solution, k_B la constante de Boltzmann, T la température et I la force ionique de la solution (soit la concentration en charges dans la solution).

- À force ionique élevée ($I > 10^{-2}$), il y a formation d'agrégats. Le mélange est turbide.
- À force ionique faible ($I < 10^{-4}$), la suspension est stabilisée par les forces répulsives entre particules; la suspension est transparente. En augmentant la concentration en particules, on passe d'état liquide à un état solide. Cette transition est correctement décrite en utilisant une taille effective des particules en prenant en compte la longueur de Debye [4].
- À force ionique intermédiaire, il y a une transition solide/liquide avec la concentration en laponite qui est discutée dans la suite de ce chapitre.

I.3 Préparation de la laponite

Différentes équipes ont travaillé ou travaillent encore sur la laponite à faible force ionique et à concentration en laponite inférieure à 3% en masse; certaines équipes cherchent à déterminer l'état physique de la laponite, d'autres à déterminer la rhéologie du fluide ou étudier la sédimentation d'un objet dans ce fluide. Citons les travaux de : l'équipe de P. Levitz à Orléans [5, 4] au centre de recherche de la matière divisée, l'équipe de J.M. Piau à Grenoble au laboratoire de Rhéologie [6, 7], l'équipe de D. Bonn à Paris au Laboratoire de Physique Statistique de l'ENS (LPS) [8, 9, 10, 11, 12, 13], l'équipe de J.F. Tassin au Mans au laboratoire Polymères Colloïdes et Interfaces [14, 15], l'équipe de J.C. Bacri à Paris au laboratoire Matière et Systèmes Complexes (MSC) [16] et l'équipe de P. Coussot à Champs sur Marne (Champs) au Laboratoire des Matériaux et des Structures du Génie Civil (LMSGC) [17]. Pour obtenir des résultats reproductibles, il est nécessaire de prendre de nombreuses précautions. Il est également important de noter que, comme nous le décrivons ci-après, les différentes équipes citées dans ce rapport n'utilisent pas exactement le même protocole et donc leurs résultats ne sont pas toujours directement comparables.

Une étude a été réalisée en 1992 à Bristol par D.W. Thompson *et al.* [18] et s'attachait à définir la physicochimie du produit (cette étude fait désormais référence). Les suspensions ont été préparées sous atmosphère inerte, agitées pendant 24 heures puis mises au repos pendant 7 jours. Enfin une analyse des ions en suspension a été réalisée. Les auteurs ont ainsi établi l'équation d'une réaction de dissolution de la laponite à pH faible.



Ils aboutissent en conclusion à des recommandations quant à la préparation et l'utilisation de la laponite : domaine de pH au dessus de 9 pour empêcher la dissolution, conservation dans des conditions très contrôlées (à l'abri de l'air ambiant).

Au Centre de Recherche de la Matière Condensée (Orléans) [5, 4], les suspensions ont été préparées sous ou hors azote et l'état physico-chimique des deux types de suspension ainsi préparées a été déterminé. L'étude réalisée porte sur le dosage des quantités de magnésium relarguées par les suspensions en regard avec l'état physique du système (gélifié, visqueux, liquide). L'étude montre que les suspensions conservées à l'air relarguent du magnésium (plus que $5 \cdot 10^{-4}$ mol.L⁻¹), les suspensions conservées sous azote ne relargaient rien pendant les 170 jours suivant leur préparation.

Au laboratoire de Rhéologie (Grenoble) [6, 7], les suspensions ont été préparées avec de l'eau doublement distillée (c'est la dissolution de la laponite qui contrôle le pH), la force ionique est ajustée à 10^{-3} M, en grandes quantités (bouteilles d'un kilogramme) et entreposées pendant 10 jours avant utilisation. Un contrôle du pH a été effectué pour vérifier l'état des suspensions lors de cette préparation. Les suspensions ont été soumises à des ultrasons avant utilisation pour leur donner un précisaillement contrôlé.

Au LPS (Paris) [8, 9, 10, 11, 12, 13], les suspensions de laponite sont réalisées par ajout de laponite dans de l'eau à pH=10 et agitation vigoureuse pendant 10 minutes. Ensuite les suspensions sont précisaiillées par des filtres à pores de $0,8 \mu\text{m}$ pour supprimer les particules de grande dimension et créer un précisaillement reproductible. Une étude de l'état physique de la laponite a été réalisée.

Au laboratoire des Polymères Colloïdes et Interfaces (Le Mans) [14, 15], les suspensions ont été préparées en ajoutant à de l'eau à pH 9,5-10 la poudre de laponite doucement. Puis cette solution est mélangée à une solution saline pour obtenir le mélange final à la bonne concentration en laponite et force ionique. Les solutions sont ensuite conservées dans des flacons étanches et dans un dessiccateur sous N₂.

Au laboratoire MSC (Paris) [16], les suspensions sont préparées en ajoutant la laponite à une solution de soude à pH 10. Les échantillons sont ensuite mis sous azote et laissés au repos pendant 10 à 12 jours. Avant utilisation, les solutions sont précisaiillées avec un filtre à pores de $0,8 \mu\text{m}$.

Au laboratoire LMSGC (Champs sur Marne) [17], les suspensions sont préparées en mélangeant fortement (2000 tr/min) la laponite et la soude nécessaire à un pH de 10 pendant 8 heures. Les suspensions sont ensuite laissées au repos pendant 7 jours. Avant utilisation, les suspensions sont de nouveau agitées pendant 30 min.

Il n'existe donc pas de consensus quant à la préparation de la laponite. Le tableau 1.1.2 rappelle la méthode utilisée dans chaque équipe.

TAB. 1.I.2 – Préparation de la laponite selon les équipes.

équipe	mise sous azote	vieillissement avant utilisation	précisaillement
Bristol	oui	7 jours	non utilisé
Grenoble	non	étude de ce vieillissement	ultrasons
Orléans	étude de son effet	étude de ce vieillissement	non utilisé
Paris (LPS)	non	non	rhéomètre, filtre 0,8 μm
Le Mans	oui après préparation	étude de ce vieillissement	étude de son effet
Paris (MSC)	oui après préparation	10 à 12 jours	filtre 0,8 μm
Champs	non	7 jours	30 min à 2000 tr/min

I.4 État physique de la laponite

Dans ces différentes études, l'état physique de la laponite a été étudié par différents types de mesures : rhéologie et diffusion X, neutrons ou de lumière visible. L'un des avantages de la laponite est en effet la transparence du milieu. Les conclusions présentent des divergences qualitatives selon les équipes.

La diffusion de rayonnements à différentes longueurs d'onde permet de sonder les tailles caractéristiques du matériau sur des échelles de longueur différentes. Les résultats par diffusion de la lumière des équipes de D. Bonn [8, 9, 10, 11, 12, 13] et P. Levitz [5, 4] aboutissent à une définition de la laponite comme un verre, les résultats des équipes de J.M. Piau [6, 7] et J.F. Tassin [14, 15] décrivent un comportement plutôt de type gel agrégatif et une transition sol-gel au passage d'un état à l'autre. Les autres équipes citées étudient d'autres paramètres (rhéologie, sédimentation) qui seront détaillés dans les chapitres suivants. Dans les deux cas (verre ou gel), le vieillissement de la laponite a une origine différente.

I.4.1 Description du vieillissement d'un gel

Le vieillissement résulte de réarrangements des agrégats qui constituent le gel (J.M. Piau [6, 7] et J.F. Tassin [14, 15]). Les agrégats sont fractals avec une dimension fractale qui augmente avec la fraction volumique en particules.

I.4.2 Description du vieillissement pour un verre colloïdal

Les verres colloïdaux se forment à forte fraction volumique. Dans le cas de la laponite, un verre peut se former dès $\phi=1\%$ en raison de l'anisotropie des plaquettes (D. Bonn [8, 9, 10, 11, 12, 13] et P. Levitz [5, 4]). Dans les verres colloïdaux, les particules sont "coincées" dans des cages formées par les particules voisines. Deux modes de relaxation permettent de décrire la relaxation des déplacements d'une particule dans ce système. On appelle "relaxation β " la relaxation de la position de la particule dans la

cage formée par les autres particules, on appelle "relaxation α " la relaxation hors de cette cage comme présenté figure 1.I.2. Le vieillissement du fluide est la conséquence des chocs des particules entre elles qui rigidifient la cage. Pendant le vieillissement, la cage ne change pas de dimension mais la probabilité de s'échapper de la cage diminue et le temps entre deux sorties augmente. Ceci peut se décrire sous la forme de la fonction de distribution des temps de relaxation avec le temps de vieillissement (présenté figure 1.I.3). Le temps de relaxation du mode β ne varie pas avec le temps de vieillissement (la taille de la cage n'est pas modifiée par le temps de vieillissement). Le temps de relaxation α augmente avec le temps de relaxation. Ainsi le système n'atteint jamais d'équilibre puisque le temps qu'il lui faudrait pour l'atteindre augmente avec le temps.

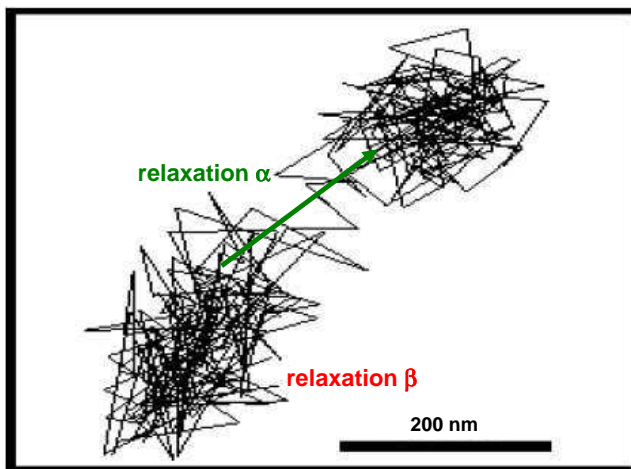


FIG. 1.I.2 – Schéma des deux modes de relaxation β au sein de la cage des particules voisines, α entre deux cages.

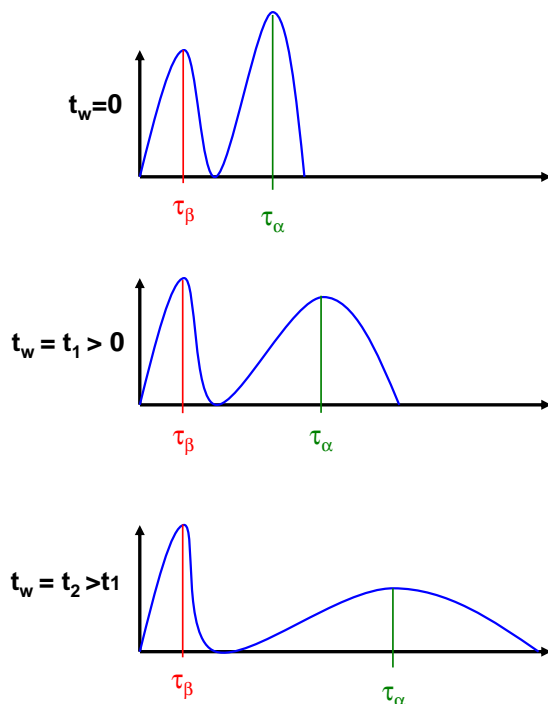


FIG. 1.I.3 – Fonction de distribution des temps de relaxation dans un verre colloïdal pour trois temps de vieillissement.

I.4.3 Évolution des temps de relaxation dans la laponite

Différentes études ont été réalisées sur l'évolution des temps de relaxation dans la laponite. Cette évolution est cohérente avec la description d'un verre colloïdal : un temps de relaxation très court (de l'ordre de la ms) qui ne varie pas avec le vieillissement et un temps de relaxation long qui augmente avec le temps de vieillissement. Une étude par Bellour *et al.* [19] montre l'existence de deux régimes de relaxation α : un premier régime où le temps de relaxation augmente exponentiellement et un deuxième régime où le temps de relaxation augmente linéairement avec le temps de vieillissement. Le passage d'un régime à l'autre se fait quand le temps de vieillissement atteint le temps de relaxation τ_α .

Une autre étude par S. Jabbari-Farouji *et al.* porte sur la relaxation dans la laponite à 2,5 % et 3 % en masse [20]. Cette étude a été réalisée à l'aide d'expériences de diffusion dynamique de lumière polarisée et dépolarisée en fonction du temps de vieillissement ce qui permet de mesurer les caractéristiques de la diffusion à la fois en rotation et en translation. Les fonctions de corrélation obtenues en rotation et translation après différents temps de vieillissement sont bien décrites par une somme d'une exponentielle (de temps caractéristique τ_1) et d'une exponentielle étirée (de temps caractéristique τ_2 et d'exposant β). τ_1 ne varie pas avec le temps de vieillissement il vaut 0,2 ms en rotation soit 22 fois plus que ce que donne un calcul simple de plaquettes dures non chargées $\tau_{1nc} = \frac{1}{D_0^r} = \frac{32\eta a^3}{3kT}$ (cette différence est imputée aux interactions hydrodynamiques et électrostatiques). τ_2 augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement avec un temps caractéristique de 60 min pour la rotation et la translation. L'exposant β diminue avec le temps de vieillissement signe que les différents degrés de liberté des particules ne relaxent pas à la même vitesse et que la distribution de temps de relaxation s'élargit.

I.5 Conclusion sur la laponite

Les différentes équipes qui ont travaillé sur la laponite n'utilisent pas toutes la même méthode pour préparer les suspensions de laponite. Dans toutes ces études, la laponite est présentée comme un fluide à seuil fortement thixotrope, rhéofluidifiant et qui vieillit. Nous définirons et décrirons ces comportements en détail dans le chapitre sur la rhéologie. Les premières études à caractère chimique ont conduit à l'établissement de règles d'utilisation de la laponite (en particulier utilisation à pH élevé pour éviter la dissolution et contrôle de l'atmosphère). L'étude des propriétés physiques a conduit certains à définir l'état de la laponite comme un gel agrégatif (dans lequel le vieillissement résulte du réarrangement des agrégats), d'autres ont défini cet état comme un verre colloïdal. Le travail que nous avons réalisé ne cherche pas à clarifier cet aspect mais nous utiliserons ces descriptions pour comprendre les effets observés. Notre objectif est d'étudier la sédimentation dans un fluide à seuil thixotrope. Dans le chapitre suivant, nous allons décrire les propriétés d'écoulements dans des fluides non-newtoniens. Dans le dernier paragraphe de ce chapitre, nous reviendrons plus en détail sur les résultats de rhéologie

concernant la laponite.

Chapitre II

Rhéologie

Sommaire

II.1 Modèles simples de description des fluides complexes	28
II.1.1 Fluides newtoniens généralisés	28
II.1.2 Description du caractère viscoélastique linéaire	28
II.1.3 Description du caractère thixotrope	29
II.1.4 Bifurcation de viscosité des fluides thixotropes	30
II.2 Lois de comportement ou "équations constitutives"	31
II.3 Mesures de viscosité élongationnelle	32
II.4 Mesures de rhéologie : précautions d'usage	33
II.5 Rhéologie de la laponite	34

Avant de présenter les résultats de la littérature sur la sédimentation dans des fluides non-newtoniens comme la laponite et les fluides avec lesquels nous allons faire des comparaisons, il est important de bien spécifier les quantités qui permettent de caractériser le comportement de tels fluides. La rhéologie décrit les propriétés mécaniques des fluides non-newtoniens à travers un formalisme spécifique qui permet d'une part de caractériser les fluides et d'autre part de prévoir leurs écoulements.

En annexe A, nous avons rappelé les différentes géométries d'écoulements de base, le principe des expériences de rhéologie ainsi que les grandes classifications de fluide qui existent. Les principales quantités que nous allons utiliser dans la suite sont les suivantes :

- η : viscosité de cisaillement (définie à l'aide d'un écoulement de cisaillement simple)
- N_1 et N_2 : 1^{ère} et 2^{de} différence de contraintes normales (définies à partir d'un écoulement de cisaillement simple)
- $\bar{\eta}$: viscosité élongationnelle (définie à partir d'un écoulement d'élongation uniaxe)

Nous allons étudier dans cette section les principaux modèles qui correspondent à la description des fluides newtoniens généralisés, puis une description plus complexe sous forme de lois de comportement, les précautions nécessaires pour comparer les résultats expérimentaux aux modèles et en dernier nous présenterons les résultats de la littérature concernant la rhéologie de la laponite. Cette partie a été rédigée à l'aide des ouvrages [21, 22, 23, 24].

II.1 Modèles simples de description des fluides complexes

II.1.1 Fluides newtoniens généralisés

On appelle "fluide newtonien généralisé" tout fluide indépendant du temps sans contrainte normale. La description du fluide est donc entièrement contenue dans une description scalaire du type $\eta(\dot{\gamma})$. Il existe divers modèles pour décrire les différents fluides. Le caractère rhéofluidifiant est souvent caractérisé par l'équation suivante (appelé modèle d'Ostwald ou loi de puissance) :

$$\eta(\dot{\gamma}) = m\dot{\gamma}^{(n-1)} \quad (1.2.1)$$

Le paramètre n caractérise la rhéofluidification, il est souvent compris entre 0,4 et 1 (1 pour un fluide newtonien).

Dans le cadre des fluides à seuil il n'y a pas de consensus pour décrire l'écoulement au-delà de la contrainte seuil σ_0 . Le modèle le plus simple dit de Bingham (1.2.2) est loin de la réalité à faible gradient de cisaillement. Le modèle de Casson (1.2.3) est souvent décrit comme le modèle le plus physique. Le modèle de Herschel-Buckley (1.2.4) est souvent utilisé pour son aspect de compilation des modèles d'Ostwald et de Bingham mais les trois paramètres ajustables assureront une meilleure corrélation avec les résultats expérimentaux sans présenter une description physique plus précise [25].

$$\sigma = \sigma_0 + \eta_B \dot{\gamma} \quad (1.2.2)$$

$$\sqrt{\sigma} = \sqrt{\sigma_0} + \sqrt{\eta_c \dot{\gamma}} \quad (1.2.3)$$

$$\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}^n \quad (1.2.4)$$

II.1.2 Description du caractère viscoélastique linéaire

En plus du caractère visqueux les fluides non-newtoniens peuvent présenter des propriétés de viscoélasticité, c'est-à-dire que l'écoulement met un certain temps à s'établir. Un nombre caractéristique est associé à cette propriété : le nombre de Deborah¹.

¹On utilise aussi le nombre de Weissenberg qui compare le temps caractéristique du fluide à l'inverse du cisaillement ; il est égal au nombre de Deborah si le temps caractéristique de l'écoulement est $\dot{\gamma}^{-1}$.

Le nombre de Deborah² (De) compare le temps de relaxation propre du fluide à un temps caractéristique de l'écoulement. Ce nombre permet de caractériser l'importance relative de la viscoélasticité dans un écoulement (en effet pour observer la viscoélasticité, il faut se placer à une échelle de temps comparable au temps caractéristique du fluide).

$$De = \frac{\text{temps du fluide}}{\text{temps de l'observation}} = \frac{\lambda_1}{T_0} \quad (1.2.5)$$

Les modèles de fluides newtoniens généralisés ne sont valables que pour décrire des fluides dont $De \ll 1$ (on observe sur un temps plus long que le temps caractéristique du fluide).

L'effet viscoélastique s'observe par exemple sur la réponse temporelle à un échelon de contrainte. La description de cette dépendance en temps nécessite l'introduction d'équations différentielles. Le modèle le plus simple est le modèle de Maxwell, qui décrit le fluide comme un liquide visqueux ayant des propriétés de solide aux temps courts (équation (1.2.6)). Le fluide aux temps longs s'écoule comme un liquide mais il faudra un certain temps à l'écoulement pour s'établir. Il est possible de généraliser ce modèle en écrivant une somme pour divers temps de relaxation λ_i (équation (1.2.7)).

$$-\eta_0 \dot{\gamma}(t) = \lambda_1 \frac{d\sigma}{dt} + \sigma \quad (1.2.6)$$

$$\sigma(t) = \sum_{i=1}^n \sigma_i(t) \quad ; \quad -\eta_i \dot{\gamma}(t) = \lambda_i \frac{\partial \sigma_i}{\partial t} + \sigma_i \quad (1.2.7)$$

Les expériences de type fluage et oscillatoire permettent de caractériser la réponse temporelle de ces types de fluide. En général, il est seulement possible de déterminer un temps moyen d'évolution du système et de caractériser l'allure de la distribution des temps caractéristiques.

II.1.3 Description du caractère thixotrope

Certains fluides réels complexes (et c'est très souvent le cas des fluides à seuil) ont aussi parfois un comportement thixotrope. H.A. Barnes a décrit "l'état de l'art" en la matière rappelant les grandes étapes de la description de ce phénomène [27]. Il s'agit de prendre en compte l'évolution complexe de la microstructure interne du fluide avec le temps et le gradient de cisaillement appliqué. Cet aspect est à différencier du caractère viscoélastique qui sépare l'aspect élastique et visqueux. Les caractéristiques du fluide vont donc dépendre de son histoire. Ce point a fait l'objet de nombreuses études à ce jour.

Il existe plusieurs approches pour décrire ce type de comportement. Une première approche microscopique consiste à relier la thixotropie à des caractéristiques internes du fluide et en particulier à la présence d'agrégats [28, 29] : c'est-à-dire relier l'évolution instantanée de la viscosité à l'évolution du

²Deborah était une prophétesse de la Bible qui a affirmé que [26] : "Les montagnes ruisselleront devant Dieu." Les montagnes "coulent" si on se met à l'échelle des temps les plus longs et que l'on regarde par exemple les glaciers éroder les montagnes.

nombre de liaisons entre particules élémentaires ou du nombre de particules élémentaires dans chaque agrégat. L'évolution peut alors être comprise comme une compétition entre les effets de structuration dus aux interactions entre particules qui construisent des agrégats sous l'effet du mouvement brownien ou de déstructuration due au cisaillement qui casse les agrégats constitués. Une autre approche plus phénoménologique [17, 27] consiste à définir un paramètre de structure du matériau sans connexion explicite avec la microstructure et à faire correspondre les paramètres avec les résultats expérimentaux. L'approche que nous présentons dans cette étude est basée sur cette description phénoménologique.

Ces modèles décrivent l'évolution de la structure à travers un paramètre de structure λ . Ce paramètre est relié aux propriétés du fluide par la relation générale suivante $\eta(\dot{\gamma}, \lambda)$ ou $\sigma(\dot{\gamma}, \lambda)$. En général $\lambda = 0$ correspond à un état complètement déstructuré et $\lambda = 1$ ou $+\infty$ (suivant les auteurs) correspond à un état complètement structuré du fluide. La dépendance temporelle de ce paramètre est ensuite décrite. De manière générale le phénomène est décrit sous la forme d'une somme d'un terme de déstructuration et d'un terme de structuration [27] comme présenté équation (1.2.8). Les divers auteurs donnent des valeurs assez variées aux exposants a et b .

$$\frac{d\lambda}{dt} = -k_1\lambda\dot{\gamma}^a + k_2(1-\lambda)^b \quad (1.2.8)$$

Le lien avec les propriétés macroscopiques peut être réalisé de diverses manières selon les auteurs, par exemple (respectivement issu de [17] et [28]) :

$$\eta = \eta_0(1 + \lambda^n) \quad (1.2.9)$$

$$\sigma = \lambda G\dot{\gamma} + (1 - \lambda)K\dot{\gamma}^n \quad (1.2.10)$$

Ainsi les modèles peuvent être comparés aux observations des expériences de rhéologie.

II.1.4 Bifurcation de viscosité des fluides thixotropes

Pour des fluides présentant à la fois un seuil et un fort effet de la thixotropie (comme la laponite), une bifurcation de viscosité peut exister montrant l'existence d'un seuil critique. P. Coussot *et al.* ont étudié, sur une suspension de bentonite (argile assez proche de la laponite) [30, 31], l'effet du vieillissement à la fois en régime permanent et en régime transitoire pour différents temps de vieillissement du fluide. En régime permanent, une contrainte constante est appliquée au fluide, cette constante étant de valeur variable selon les expériences. L'évolution du gradient de cisaillement observé est présentée en fonction du temps de vieillissement pour différentes contraintes appliquées figure 1.II.1. Pour une contrainte faible, le fluide continue à se restructurer et l'écoulement tend vers un état figé ($\dot{\gamma} \rightarrow 0$), pour une contrainte intermédiaire, le fluide s'écoule avant de tendre vers un état figé et pour une contrainte élevée le fluide est déstructuré par la contrainte appliquée et un écoulement permanent

s'établit ($\dot{\gamma} \rightarrow \text{constante}$). Il est ainsi possible de définir une contrainte limite séparant les cas où l'écoulement s'arrête de celui où l'écoulement devient permanent. Ce passage correspond à une bifurcation de viscosité. En effet si la contrainte appliquée est inférieure à une contrainte seuil, la viscosité augmente continûment (diverge) ; si l'on applique une contrainte supérieure à la contrainte seuil, la viscosité diminue et tend vers une constante. La contrainte seuil augmente avec le temps de vieillissement. Pour comprendre ce type d'écoulement, les auteurs ont utilisé une équation du type (1.2.8) simplifiée. Cette équation permet de décrire qualitativement les comportements extrêmes observés. Le régime intermédiaire ($\dot{\gamma} \nearrow$ puis \searrow) ne peut pas être expliqué par ce type d'équation car pour un même état microscopique λ et une même contrainte appliquée, l'évolution est déterminée par l'équation (1.2.8). Ce comportement est également assez proche du comportement des matériaux granulaires qui s'écoulent par avalanche [31].

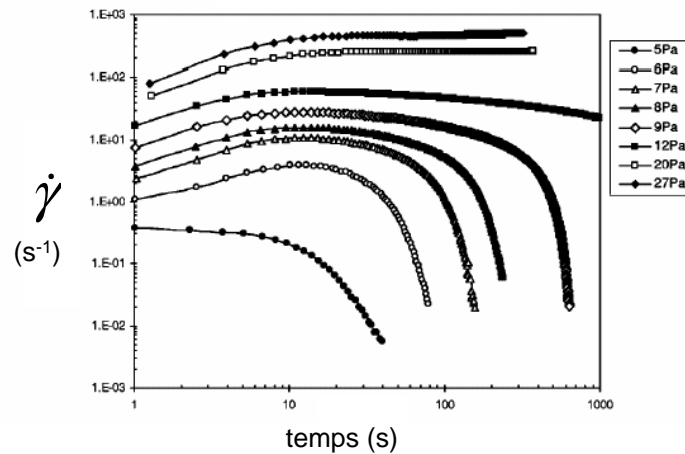


FIG. 1.II.1 – Évolution du gradient de cisaillement pendant l'application d'une contrainte constante après 20 s de vieillissement dans la bentonite (issu de [30]).

II.2 Lois de comportement ou "équations constitutives"

Les modèles précédemment introduits décrivent l'écoulement de fluides sous un caractère scalaire indépendant du temps dans le cas des fluides newtoniens généralisés, dépendant des temps antérieurs dans les cas thixotrope et viscoélastique linéaire. Dans beaucoup de fluides complexes d'autres propriétés existent et ne sont pas décrites par ces modèles. Par exemple, la présence de différences de contraintes normales dans des solutions de polymères conduisent à l'effet Weissenberg. Pour prendre en compte ce genre de phénomène, il faut décrire le système avec des équations sous forme tensorielle car toutes les composantes ne sont plus interchangeables. Notons que ces théories ont été pour l'instant principalement développées pour des solutions de polymères.

Une description sous forme de lois de comportement appelées couramment "équations constitutives" qui relient entre elles les différentes composantes des tenseurs peut alors être utilisée. Différents modèles ont été établis comme rassemblés dans les chapitres 6 à 9 de l'ouvrage [22]. Des équations différentielles du type équation de Maxwell sont mises sous forme tensorielle. La complexité des équations vient du fait qu'il faut supprimer la rotation et la translation d'ensemble qui ne modifient pas l'état du fluide. Ces modèles sont développés sous différentes formes : avec différents temps de relaxation, différentes évolutions temporelles. Une approche microscopique de ces modèles consiste à considérer des haltères en interaction dans un fluide newtonien. Des conditions sur la raideur des ressorts et leur extension maximale sont des conditions utilisées fréquemment. Ces modèles sont utilisés pour calculer numériquement les écoulements de fluides complexes. Le modèle reprenant l'équation de Maxwell est appelé "Oldroyd-B", citons des modèles dérivés permettant de décrire un fluide pseudoplastique comme ceux de Phan-Thien-Tanner et Giesekus qui ont été utilisés lors d'études citées dans ce manuscrit.

II.3 Mesures de viscosité élongationnelle

D'autres expériences permettent de mesurer une viscosité élongationnelle. L'écoulement élongationnel est simple en théorie, il n'est cependant pas facile à mettre en œuvre. De nombreuses techniques existent pour mesurer une viscosité élongationnelle. Les résultats sont souvent différents car les mesures sont réalisées sur des fluides dans des conditions différentes. Une mesure de viscosité élongationnelle nécessite un écoulement purement élongationnel et un régime permanent établi. En général, la viscosité élongationnelle n'est pas strictement mesurée c'est seulement une viscosité élongationnelle transitoire. Un article (en instance de publication) [32] rappelle les résultats de différentes mesures pour un même échantillon comme présenté sur la figure 1.II.2. Dans cet article, une simulation a été faite pour différentes "histoires" d'un fluide décrit par lois de comportement aux paramètres donnés, on obtient alors un étalement sur deux ordres de grandeur de viscosités élongationnelles transitoires obtenue pour des sollicitations différentes d'un même fluide. Les mesures de viscosité élongationnelle sont donc difficiles à réaliser.

Un exemple de technique de mesure de viscosité élongationnelle est donné par la technique proposée par G. McKinley [33] : un cylindre de fluide est réalisé entre deux disques (figure 1.II.3). Ce film s'amincit avec le temps, le rayon du cylindre au centre est mesuré en fonction du temps. Pour décrire la dynamique de ce système, il faut équilibrer la tension de surface et la contrainte de viscosité élongationnelle dans le fluide suivant l'équation (1.2.11). La gravité est négligée et l'écoulement est supposé stationnaire (ces expériences sont du même type que celle de Jones *et al.*, Matta & Tytus,

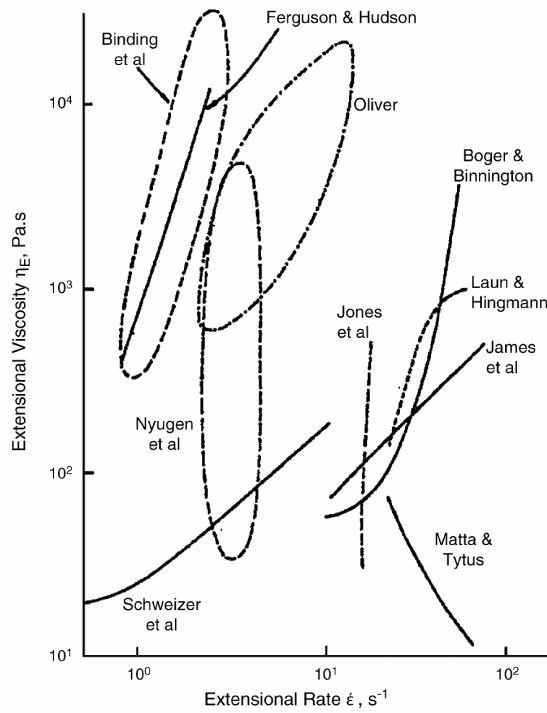


FIG. 1.II.2 – Mesures de viscosité élongationnelle du fluide M1 par différentes équipes issu de [32].

Nguyen *et al.* présentées précédemment figure 1.II.2).

$$\bar{\eta}\dot{\epsilon} = \frac{\gamma_{LV}}{R_{mid}} \quad (1.2.11)$$

$$\dot{\epsilon} = \frac{-2}{R_{mid}} \frac{dR_{mid}}{dt} \quad (1.2.12)$$

$$\bar{\eta} = \frac{\gamma_{LV}}{2 \frac{dR_{mid}}{dt}} \quad (1.2.13)$$

Avec γ_{LV} la tension de surface liquide vapeur du fluide étudié, R_{mid} le rayon au centre du film liquide. L'évolution du rayon du film est linéaire avec le temps pour un fluide newtonien et en exponentielle pour un fluide rhéofluidifiant.

Nous n'avons pas trouvé d'articles concernant les mesures de viscosité élongationnelle dans des suspensions d'argile. Dans le cas de solutions polymères rhéofluidifiantes, les mesures sont possibles et peuvent montrer de très fortes valeurs de viscosités élongationnelles.

II.4 Mesures de rhéologie : précautions d'usage

Les mesures de propriétés rhéologiques doivent s'accompagner de précautions assez importantes. En effet, la mesure doit être sensible aux propriétés intrinsèques du matériau et non à des artefacts. Dans un rhéomètre, on ne réalise pas exactement un cisaillement simple et on ne mesure pas directement les

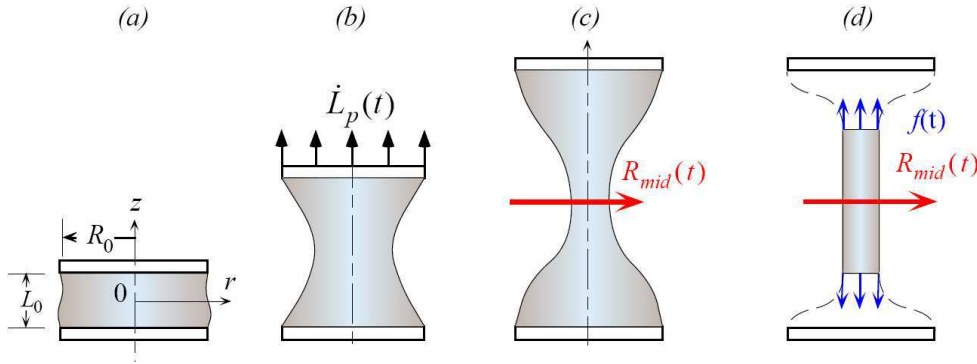


FIG. 1.II.3 – Principe et Notations utilisées pour l'expérience d'élongation d'un filament entre deux disques. En (a) préparation de l'échantillon, en (b) étirement du film, en (c) et (d) la mesure du rayon au centre est mesuré à l'aide d'un laser (figure issu de [33]).

tenseurs caractéristiques (mais plutôt un couple au lieu d'une contrainte, une vitesse angulaire au lieu d'un gradient de cisaillement).

Pour les mesures de fluides à seuil, il peut se passer en outre de nombreuses "choses désagréables" comme signalé par l'équipe de J.M. Piau à Grenoble [34, 35, 36]. L'écoulement au sein du fluide n'est pas toujours celui pensé par l'utilisateur. Il peut ainsi y avoir du glissement sur des surfaces lisses ou une fracturation du fluide. Le fluide est alors cisailé sur une épaisseur plus faible que celle de la totalité de l'échantillon. Ceci peut être décrit comme des hétérogénéités locales du gradient de cisaillement. Les recommandations de ces auteurs sont donc de veiller à maîtriser l'écoulement dans le rhéomètre et pour cela de préférer des surfaces rugueuses.

II.5 Rhéologie de la laponite

Des expériences de rhéologie sur la laponite ont été réalisées dans plusieurs équipes dont celles de D. Bonn [9, 11, 10], de J.F. Tassin [14], de J.M. Piau [6] et de J.C. Bacri [16]. Les différentes équipes ont travaillé avec un protocole de préparation différent que nous avons présenté dans le premier chapitre de la première partie (concentrations différentes, un ajout de sel (NaCl) en quantités variables). Nous présenterons ici uniquement les caractéristiques des propriétés rhéologiques de la laponite sans retenir les valeurs exactes.

Les expériences réalisées dans l'équipe de D. Bonn [9, 11, 10] ont été réalisées avec des suspensions assez peu concentrées en régime oscillatoire. Les résultats montrent que la viscosité de cisaillement complexe augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement et varie en loi de puissance (équation (1.2.1)) avec le gradient de cisaillement. L'exposant de rhéofluidification n varie de 0,33 à 0,1 avec la concentration en laponite, validé par le calcul lorsque l'on approche de la transition vitreuse qui signifie que le fluide est fortement rhéofluidifiant. L'application d'un gradient constant met en évidence un temps caractéristique de mise en place de l'écoulement de l'ordre de $1/\dot{\gamma}$. Dans ces expériences la détermination d'un seuil d'écoulement n'est pas recherchée. Il est fait allusion de "seuil apparent" sans donner de valeur au seuil.

Les expériences réalisées dans l'équipe de J.F. Tassin [14] ont également été réalisées en oscillatoire et montrent le caractère viscoélastique du milieu. Pour des temps de vieillissement courts, le fluide est surtout visqueux ; pour des temps de vieillissement longs, le fluide est élastique. Si on rajeunit le système et que l'on recommence l'expérience, le fluide subit la même transformation mais plus rapidement. Au bout de plusieurs cycles, le système tend vers une même cinétique. À temps de vieillissement long et pour des faibles contraintes appliquées, le fluide a un comportement de solide, la mesure de la contrainte seuil a été estimée dans un cas (2500 s après la préparation) à 6 Pa pour une suspension à 1% et une force ionique de $5 \cdot 10^{-3}$ M pendant l'application de contraintes oscillatoires croissantes.

Les expériences réalisées dans l'équipe de J.M. Piau [6] montrent une dynamique similaire aux expériences de l'équipe de J.F. Tassin. Ils déterminent aussi un seuil d'écoulement à l'aide d'un rhéogramme réalisé 25 jours après la préparation pour des suspensions à 1,2 % en volume : un gradient de cisaillement est imposé au fluide, la contrainte nécessaire pour "casser" le fluide est alors de 40 Pa.

Contrairement aux expériences citées précédemment, l'équipe de J.C. Bacri [16] n'a pas utilisé de rhéomètre. Les expériences ont été réalisées à l'aide d'une bille ou d'une aiguille magnétique introduites dans le fluide soumises à un champ magnétique. La méthode a été validée par un fluide aux propriétés connues. Les expériences ont été réalisées avec des suspensions de laponite à 2,7 %. La laponite a alors montré un comportement rhéofluidifiant à seuil dynamique. Le temps de relaxation augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement avec un temps caractéristique entre 6 et 12 min, la viscosité évolue en loi de puissance avec le gradient de cisaillement avec un exposant n de 0,3, le seuil de contrainte augmente avec le temps de vieillissement avec un temps caractéristique du même ordre de grandeur que pour la relaxation de la rhéologie. Le seuil de contrainte obtenu est donc compris entre 16 et 95 Pa.

La laponite présente une rhéologie complexe connue seulement partiellement présentant des pro-

riétés de thixotropie, de rhéofluidification, de viscoélasticité et de seuil de contrainte. Peu de mesures quantitatives sont présentes dans la littérature.

Chapitre III

Vitesse de sédimentation de particules en milieu non-newtonien

Après un bref rappel sur la sédimentation en milieu newtonien, cette partie décrira les principaux travaux qui ont porté sur la sédimentation en milieu non-newtonien d'une particule isolée, de plusieurs particules et de suspensions pour différents types de fluide.

Sommaire

III.1 Rappels sur la sédimentation en milieu newtonien	37
III.1.1 Interactions avec les parois	40
III.2 Vitesse de sédimentation de particules isolées en milieu non-newtonien	40
III.2.1 Cas rhéofluidifiant	40
III.2.2 Fluide à seuil	41
III.2.3 Fluide thixotrope	43
III.3 Sédimentation de quelques particules et suspensions	45
III.3.1 Influence des parois	46

La description de la sédimentation se fera comme le montre la figure 1.III.1 : l'axe vertical (z) passant par le centre de la particule est orienté vers le bas ; son origine est au centre de la particule. L'écoulement "amont" est situé en avant de la particule, correspond aux $z > 0$ et "aval" aux $z < 0$.

III.1 Rappels sur la sédimentation en milieu newtonien

La sédimentation d'une particule isolée sphérique en milieu newtonien infini est connue analytiquement. La vitesse d'une particule peut être décrite par la vitesse de Stokes (quand le nombre de Reynolds $Re = \frac{\rho_{\text{fluide}} V_p a}{\eta}$ est petit $Re \ll 1$) qui est obtenue en compensant le poids réduit de la poussée d'Archimède et la force de traînée (force de Stokes pour une particule sphérique dans un milieu

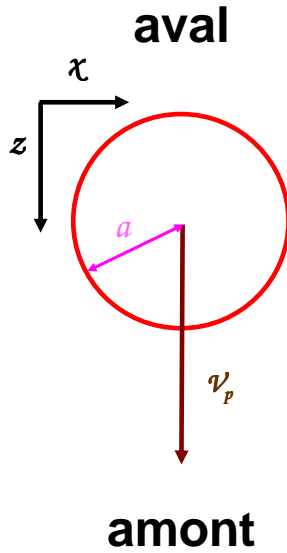


FIG. 1.III.1 – Notations utilisées pour décrire les différentes zones d'espace. L'**amont** correspond à la zone de fluide "frais" qui n'a pas encore été en contact avec l'objet (soit en dessous d'une particule en sédimentation) ; pour la présentation des vitesses cette zone correspond à $z > 0$. L'**aval** correspond à la zone après le passage de l'objet (soit au dessus d'une particule en sédimentation) ; pour la présentation des vitesses cette zone correspond à $z < 0$. Ces notations permettent de comparer des objets en sédimentation et en ascension (comme des bulles qui remontent).

infini) :

$$V_{Stokes} = \frac{2a^2 g \Delta \rho}{9\eta} \quad (1.3.1)$$

avec η viscosité du fluide suspendant, $\Delta \rho$ la différence de masse volumique entre la particule qui sédimente et le fluide suspendant, g l'accélération de la pesanteur.

La sédimentation de **doublets** de particules est également bien connue. La vitesse d'une particule au sein du doublet peut être décrite au premier ordre comme la vitesse d'une particule isolée plus une correction due à la seconde particule comme indiqué dans [37] en utilisant les propriétés d'additivité des écoulements décrits par l'équation de Stokes. Cette correction peut se calculer à partir du champ de vitesse autour d'une particule isolée en prenant la vitesse à la position de la seconde particule. En faisant ainsi, on obtient que la vitesse de la particule amont est augmentée par rapport à la vitesse d'une particule isolée, la particule aval est aussi augmentée et de la même quantité que la particule amont à cause de la symétrie de l'écoulement. Ainsi lors de la sédimentation de doublets de particules, celles-ci restent à la même distance l'une de l'autre et sédimentent à une vitesse plus élevée que si elles étaient seules. L'augmentation de vitesse du doublet est d'autant plus importante que la distance initiale entre les particules est faible. Les expériences en milieu newtonien vérifient cette description au premier ordre.

Si on augmente suffisamment le nombre de particules, il n'est plus possible de décrire les interactions entre toutes les particules. Dans le cas de suspensions diluées et monodisperses le problème a été résolu par Batchelor en 1972 [38]. Ce qui gouverne la sédimentation d'une suspension est la remontée du fluide clair : la conservation du débit global impose que pour contrebalancer la sédimentation des

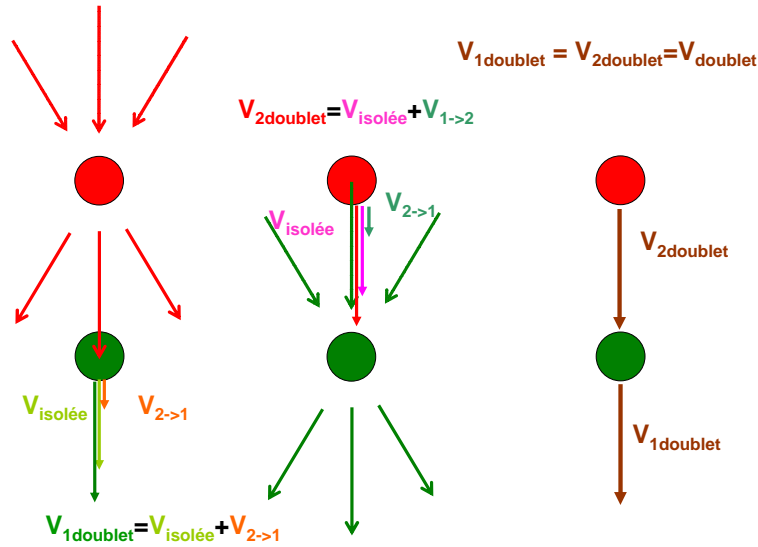


FIG. 1.III.2 – Principe de l'additivité des vitesses appliqué au cas de doublets de particules dans le cas newtonien.

particules du fluide clair doit remonter du même volume. On obtient alors la vitesse moyenne V_{susp} de sédimentation de la suspension au premier ordre en ϕ :

$$V_{susp} = V_p(1 - S\phi) \quad (1.3.2)$$

Avec $S = 6,55$.

Expérimentalement, cette expression linéaire est validée pour les suspensions diluées ($\phi < 5\%$). La valeur du coefficient S n'est cependant expérimentalement pas toujours la même, elle varie entre 4,7 et $6,7 \pm 1$ comme répertorié dans [39].

Si la fraction volumique en particules est plus importante, la loi empirique de Richardson-Zaki [40] (1.3.3) décrit la vitesse de sédimentation d'une suspension.

$$V_{susp} = V_p(1 - \phi)^S \quad (1.3.3)$$

Avec $S = 5$ pour des particules non browniennes.

L'étude des suspensions en milieu newtonien fait l'objet d'études actuelles car les fluctuations de vitesses des particules dans une suspension ne sont pas encore bien comprises.

III.1.1 Interactions avec les parois

La présence de parois verticales et horizontales influence la sédimentation de particules. La vitesse d'une particule isolée est réduite, sa réduction est connue en fonction du rapport entre la taille de la particule a et la taille de la cellule de sédimentation R ou de la distance au fond h . Si le rapport R/a ou h/a est suffisamment important (> 10), on peut négliger les effets de parois.

III.2 Vitesse de sédimentation de particules isolées en milieu non-newtonien

Dans le cas non-newtonien, il n'y a pas de résolution analytique possible du problème à cause de la complexité de l'équation du mouvement qui dépend de plus du modèle choisi pour décrire le fluide (lequel n'est pas toujours bien connu ou caractérisé). Une description simple couramment utilisée consiste à introduire le gradient de cisaillement caractéristique (en ordre de grandeur) créé par une particule sédimentant à la vitesse V_p :

$$\dot{\gamma} \sim \frac{V_p}{2a} \quad (1.3.4)$$

la vitesse de sédimentation est ensuite déterminée en prenant la loi de Stokes (1.3.1) avec la viscosité du fluide correspondant à ce gradient de cisaillement, viscosité déterminée à partir d'expériences de rhéologie.

III.2.1 Cas rhéofluidifiant

En reprenant l'expression de la vitesse de Stokes pour une viscosité dépendant du gradient cisaillement (donc de la vitesse de la particule), il est possible de calculer pour un fluide décrit par la loi d'Ostwald (équation (1.2.1) dans le chapitre précédent) la loi de variation de la vitesse des particules :

$$V_p = \left(\frac{2^n g \Delta \rho}{9m} \right)^{\frac{1}{n}} a^{\frac{n+1}{n}} \quad (1.3.5)$$

Une étude de B. Mena *et al.* en 1987 [41] présente des mesures du coefficient de traînée pour différentes tailles de particules dans différents fluides : newtonien, viscoélastique, inélastique et élastique (Boger). Les auteurs estiment la force de traînée par la loi de Stokes $6\pi\eta a V_p$ en prenant comme valeur de viscosité, une viscosité apparente déterminée pour le gradient de cisaillement issu de l'équation (1.3.4). Cette étude leur permet de confirmer la validité de l'équation proposée (1.3.5). Par ailleurs la même étude a montré que les effets des parois sont plus faibles dans un fluide non-newtonien que dans un fluide newtonien surtout pour les fluides rhéofluidifiants : la zone cisailée étant davantage confinée autour de la sphère.

Une étude réalisée au laboratoire FAST par S. Daugan *et al.* [1] s'intéressait à la sédimentation de particules isolées dans des solutions de xanthane (polymère dont les solutions dans l'eau donnent des fluides rhéofluidifiants peu élastiques ou ayant de très faibles contraintes normales). La vitesse de sédimentation a été comparée à l'équation (1.3.5). Les résultats montrent un bon accord en ce qui concerne la variation avec le rayon de la particule, cependant, l'expression (1.3.5) donne des valeurs différant parfois d'un ordre de grandeur des valeurs expérimentales.

Il existe d'autres expériences dans lesquelles l'expression (1.3.5) n'est pas vérifiée en particulier lorsque la viscosité élongationnelle du fluide est importante [42, 43, 44]. Dans ces cas la vitesse de la particule est beaucoup plus faible que celle évaluée à l'aide de l'équation (1.3.5). Elle peut même être inférieure à la vitesse évaluée à partir de la viscosité η_0 à gradient de cisaillement nul.

III.2.2 Fluide à seuil

Une première approche qualitative peut être simplement développée. En effet, le fluide s'il est sollicité en dessous de sa contrainte seuil, ne s'écoulera pas. Ainsi une particule qui exerce sur le fluide une contrainte inférieure à la contrainte seuil, ne va pas sédimenter. Au contraire, si la particule exerce une contrainte supérieure à la contrainte seuil, elle va sédimenter avec une vitesse égale à celle de Stokes calculée pour le gradient de cisaillement effectif exercé par la particule (suivant la loi rhéologique on obtient une viscosité et donc une vitesse différente).

Une étude publiée en 2001 de Y.B. He *et al.* [45] décrit le fonctionnement d'un séparateur de densité pour particules métalliques (*Dense Media Separation*) avec pour fluide suspendant une suspension d'argile : la magnétite. Ce fluide possède des propriétés proches de la laponite : fluide à seuil rhéofluidifiant. Il est décrit par le modèle de Casson (1.2.3). Le calcul de la vitesse de sédimentation des particules est réalisé en remplaçant la viscosité par sa valeur apparente (calculée pour $\dot{\gamma} = \frac{V_p}{2a}$) dans l'expression de la force de friction ; on obtient l'équation suivante :

$$F_t = 12\pi a^2 \left(\left(\frac{\eta_c V_p}{2a} \right)^{\frac{1}{2}} + \sigma_0^{\frac{1}{2}} \right)^2$$

Cette force est contrebalancée par le poids réduit de la poussée d'Archimède $F_t = \frac{4}{3}\pi a^3 \Delta\rho g$. Au seuil d'écoulement ($V_p = 0$), on aura ainsi l'égalité :

$$12\pi a^2 \sigma_0 = \frac{4}{3}\pi a^3 \Delta\rho g$$

Ce qui nous donne une taille limite de sédimentation de particules :

$$a_0 = \frac{9\sigma_0}{\Delta\rho g} \tag{1.3.6}$$

Il est à noter qu'un calcul simple qui contrebalance la contrainte exercée par la particule sur le fluide $\frac{4}{3} \frac{\pi a^3 \Delta \rho g}{\pi a^2}$ et la contrainte seuil σ_c conduit à $a_0 = \frac{3}{4} \frac{\sigma_0}{\Delta \rho g}$. Cette expression diffère de (1.3.6) par le préfacteur¹.

Il est également possible à partir de cette expression estimer une contrainte dans le fluide due à la présence de la particule que nous allons appeler dans la suite "la contrainte exercée par la particule sur le fluide"² puisqu'on est au seuil d'écoulement :

$$\sigma_{part} = \frac{a \Delta \rho g}{9} \quad (1.3.7)$$

Des expériences de sédimentation de particules sphériques dans des solutions de carbopol ont été rapportées [46] [47] [48]. Ces solutions de polymère ont, en effet, la propriété de former des gels présentant un seuil d'écoulement. Plusieurs difficultés expérimentales sont rapportées dans ces différentes expériences. La vitesse d'une particule dépend de son numéro de lâché ; un régime permanent n'est atteint qu'après un certain nombre de particules lâchées. Cet effet est expliqué dans [48] comme étant dû à une instabilité thermodynamique qui éjecte les polymères hors de la traînée de la particule (sans doute par effets osmotiques).

Une récente étude quantitative dans la bentonite vient d'être réalisée par N.P. Chafe *et al.* [49]. La bentonite peut être considérée comme un fluide de Bingham dans les conditions expérimentales de l'étude. Des particules sphériques sont déplacées verticalement au bout d'un fil à une vitesse constante pendant une même expérience. Entre deux expériences le fluide est laissé au repos 30 s. Au cours d'un cycle d'expériences, le fluide vieillit légèrement. La force sur le fil est mesurée en fonction du temps pendant la phase de déplacement de la particule et pendant la phase d'arrêt. Cette force augmente pendant la mise en mouvement jusqu'à atteindre une valeur constante. Pendant la relaxation, la force diminue mais il reste une force résiduelle signe d'une contrainte seuil dans le fluide. La force maximale appliquée lors de la mise en mouvement évolue en exponentielle décroissante avec le temps de vieillissement du fluide. La dynamique de l'évolution de la force appliquée avec le temps lors de la mise en mouvement et lors de l'arrêt est correctement décrite par une somme de deux exponentielles décroissantes avec des temps caractéristiques qui diminuent avec la vitesse de la particule. Le seuil du fluide est mesuré à partir de l'extrapolation à une vitesse de particule nulle de la force nécessaire à appliquer pour induire le mouvement. Ce seuil augmente avec le temps de vieillissement.

¹Notons également que la valeur 9 pour le préfacteur est également trouvée par la même estimation pour toute loi rhéologique ayant pour $\sigma = \sigma_0$, $\eta = \frac{\sigma_0 2a}{V_p}$ et tant que la force de traînée garde la même expression que dans le cas newtonien.

²Le calcul "simple" évoqué précédemment donne $\sigma_{part} = \frac{4}{3} \Delta \rho g a$ soit un ordre de grandeur de différence

III.2.3 Fluide thixotrope

La sédimentation dans le cas d'un fluide thixotrope a été encore peu étudiée. Une première étude par T. Ferroir *et al.* a été réalisée récemment [17]; nous la présenterons en détail. Dans cette étude des particules sphériques sont lâchées dans une suspension de laponite. La vitesse de la particule est mesurée pour différents temps de vieillissement du fluide à diverses hauteurs dans la colonne de sédimentation. Différents cas sont observés : aux temps de vieillissement courts, la vitesse est presque constante dans toute la colonne de sédimentation ; aux temps plus longs, elle diminue avec le temps très fortement et aux temps de vieillissement très longs les particules s'arrêtent. Dans cette étude, les auteurs comparent leurs résultats expérimentaux avec les résultats théoriques obtenus avec un modèle simple. Le paramètre de structure du fluide, λ , est décrit par l'équation (1.2.8) pour des paramètres simplifiés soit $a = 1$ et $b = 0$; il ne reste ainsi comme paramètres que k_1 et k_2 deux constantes indépendantes de l'état du matériau (1.3.8). La relation entre le paramètre de structure et la viscosité est rappelé équation (1.3.9).

$$\frac{d\lambda}{dt} = -k_1 \dot{\gamma} \lambda + k_2 \quad (1.3.8)$$

$$\eta \sim (1 + \lambda)^n \quad (1.3.9)$$

La vitesse de la particule est décrite de la même manière que précédemment avec une vitesse de Stokes calculée avec la viscosité effective du fluide (1.3.10). Cette équation, bien que très simple, n'est cependant pas très facile à utiliser : il est difficile d'obtenir la vitesse de la particule simplement et explicitement.

Une première approche consiste à simplifier le problème en ne considérant que la restructuration du fluide pour calculer λ ($\dot{\gamma} = 0$). Ainsi la vitesse de la particule en fonction du temps peut s'écrire selon l'équation (1.3.11). Cette expression ne permet pas de décrire les résultats des expériences réalisées. Une étude plus approfondie a donc été réalisée dans la suite de cet article.

$$V_p = \frac{2}{9} \frac{\Delta \rho g a}{\eta_0 (1 + \lambda^n)} = \frac{V_{Stokes} \eta_0}{1 + \lambda^n} \quad (1.3.10)$$

$$V_p = \frac{V_{Stokes} \eta_0}{1 + (\lambda_0 + t k_2)^n} \quad (1.3.11)$$

Dans cette étude, le fluide est décrit différemment selon les zones de l'espace comme présenté sur la figure 1.III.3.

Autour de la particule on définit un volume de contrôle Ω dans lequel le paramètre de structure évolue à la fois en fonction du temps et de la position verticale x . Il est caractérisé par une hauteur H et un diamètre D . Dans ce volume de contrôle Ω , λ est caractérisé par sa valeur moyenne. Son

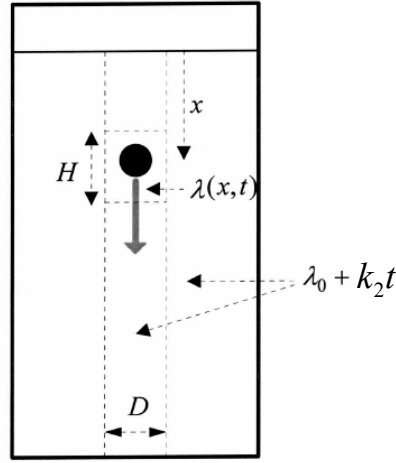


FIG. 1.III.3 – Représentation des différentes zones d’espaces définies dans [17].

évolution obéit à la loi (1.3.12). Un premier terme s’écrit simplement avec l’équation (1.3.8) en estimant le gradient de cisaillement équivalent dans le volume Ω à l’aide d’une longueur caractéristique e : $\dot{\gamma} \approx V_p/e$. Pour intégrer un deuxième terme, les auteurs rappellent que le débit du fluide doit être nul pour n’avoir aucun mouvement radial ou vertical. Ainsi le fluide en amont, considéré au repos, donc ayant un paramètre de structure $\lambda = \lambda_0 + tk_2$ entre dans le volume de contrôle à la vitesse V_p . Le fluide en aval est relargué du volume de contrôle à la vitesse V_p avec un paramètre de structure $\langle \lambda \rangle$. On obtient ainsi l’équation (1.3.13) .

$$\frac{D}{Dt} \langle \lambda \rangle = \left\langle \frac{\partial \lambda}{\partial t} \right\rangle + \frac{1}{\Omega} \int_S \lambda \mathbf{u} \cdot \mathbf{n} ds \quad (1.3.12)$$

$$\frac{D}{Dt} \langle \lambda \rangle = k_2 + \left(\frac{1}{H} (\lambda_0 + k_2 t) - \left(\frac{k_1}{e} + \frac{1}{H} \right) \langle \lambda \rangle \right) V_p \quad (1.3.13)$$

$$\frac{D}{DT} \langle \lambda \rangle = 1 + W \frac{\lambda_0 - (1 + \beta) \langle \lambda \rangle}{1 + \langle \lambda^n \rangle} = f(\lambda) \quad (1.3.14)$$

Pour simplifier, les auteurs négligent dans un premier temps l’aspect temporel ($k_2 t$) et remplace la vitesse par son expression (équation (1.3.10)); les auteurs simplifient ensuite les notations en normalisant toutes les unités $T = k_2 t$, $W = V_{Stokes\eta_0}/Hk_2$, $\beta = k_1 H/e$. On obtient ainsi l’équation (1.3.14). L’interprétation physique dépend alors du signe de la fonction $f(\lambda)$ et des deux paramètres W et λ_0 .

(i) Pour des valeurs de W petites ($< W_c$ une valeur critique), la fonction $f(\lambda)$ est toujours positive.

Dans ce cas, quelle que soit la valeur initiale de λ , il augmentera. Ainsi la particule ralentit et finit par s’arrêter.

(ii) Pour des valeurs de W grandes ($> W_c$), le système va évoluer vers un état d’équilibre. Ainsi la particule sédimentera avec une vitesse constante.

Dans cet article, les auteurs décrivent ensuite l’effet temporel de l’équation (1.3.13) et obtiennent un accord qualitatif avec les comportements observés.

III.3 Sédimentation de quelques particules et suspensions

La sédimentation de plusieurs particules ou de suspensions en milieu non-newtonien a été étudiée par un certain nombre d'équipes mais souvent de manière qualitative pour des fluides de nature différente. Le comportement observé pour les doublets et multiplets de particules est souvent différent de celui du cas newtonien.

Une première étude par Riddle *et al.* [50] a été réalisée sur la sédimentation de **doublets de particules** dans différents fluides rhéofluidifiants. Les particules sont lâchées sur une même verticale. Elles s'agrègent si la distance initiale entre les particules est inférieure à une distance critique et si elle est supérieure à cette même valeur, elles s'éloignent. Cet effet peut être compris comme un temps critique de relaxation du fluide après le passage de la première particule. Une autre étude par Joseph *et al.* [51] porte également sur la sédimentation de doublets de particules dans divers fluides rhéofluidifiants. La sédimentation de deux particules dans une configuration verticale et horizontale a été étudiée. L'agrégation des particules est observée dans tous les fluides lorsque la distance entre les particules est suffisamment faible. Les deux particules s'alignent verticalement avant de former un agrégat. La formation de cet agrégat est attribuée à la viscoélasticité du fluide qui laisse un corridor de viscosité réduite à l'arrière de la particule. Une étude a été réalisée au laboratoire FAST par S. Daugan *et al.* [52, 53, 1] dans des solutions de xanthane. La sédimentation de 2 et 3 particules a été étudiée. Il existe plusieurs paramètres rhéologiques qui interviennent dans la sédimentation des particules : la viscosité en régime permanent comme dans le cas des particules isolées mais aussi la relaxation de cette viscosité après sollicitation. Les particules qui suivent la première "verront" une viscosité réduite du fait du passage de la première particule, mais dans un fluide qui va relaxer. L'agrégation est ainsi observée dans le cas où la relaxation du fluide n'a pas eu le temps de se produire entre les deux particules. Une étude par O. Merkak *et al.* [54] a été réalisée sur le déplacement d'un tube contenant du carbopol (fluide bien caractérisé par une équation de type Herschel-Bulkley) et deux particules maintenue par un fil de nylon. Ce fil est relié à une balance qui mesure la force de traînée. La distance entre les particules est maintenue constante pendant l'expérience à l'aide d'une tige métallique. De la force mesurée, il est possible de déduire une contrainte seuil dans le fluide comme étant calculée à partir de l'extrapolation de la force à vitesse de particule nulle. La contrainte seuil est plus faible que pour une seule particule si les deux particules sont à la verticale l'une de l'autre, dans une configuration horizontale, cette contrainte seuil n'est pas modifiée. Dans le cas d'un fluide de Boger étudié par Bot *et al.* [44], la distance entre les particules tend vers une valeur finie quelle que soit la distance initiale entre elles. Ceci peut s'expliquer à l'aide de l'écoulement autour d'une particule isolée comme nous l'avons fait dans le cas newtonien (présenté dans le chapitre suivant figure 1.IV.4) : la vitesse autour de la particule est plus importante

en aval qu'en amont. Dans le cas du doublet si les particules sont éloignées la vitesse de la particule aval est donc davantage augmentée que celle de la particule amont. Si les particules sont trop proches alors l'aval de la première particule est modifié et l'écoulement autour d'une particule ne s'applique plus.

Dans le cas des **suspensions** de particules à cause des phénomènes d'agrégation le comportement est très différent du cas newtonien. D.D. Joseph *et al.* [51] dans son étude ont observé la sédimentation de suspensions de façon qualitative. Il observe alors la formation de chaînes de particules agrégées très verticales. Une étude qualitative par S. Bobroff *et al.* en 1998 [55] a été réalisée à l'aide d'une visualisation par RMN de la sédimentation de particules dans différents types de fluides (newtonien, rhéofluidifiant non-élastique, fluide de Boger, rhéofluidifiant élastique). Dans les cas rhéofluidifiants les auteurs ont observé une cinétique de sédimentation rapide au début puis se ralentissant et une structuration du milieu en colonnes de particules d'une part et colonnes de fluide d'autre part. Dans le fluide de Boger la sédimentation ressemble au cas newtonien. Au laboratoire FAST [56, 1, 57], une étude détaillée de la sédimentation de suspensions dans des solutions de xanthane a été réalisée. La formation de colonnes a été également mise en évidence dès de très faibles fractions volumiques en particules. L'analyse quantitative du phénomène a été réalisée. Trois phases de la cinétique de sédimentation ont ainsi pu être déterminées : aux temps courts, la fraction volumique à une hauteur donnée reste constante comme dans le cas newtonien, à des temps intermédiaires, une structuration spatiale apparaît : des couloirs de viscosité réduite se dessinent générés par le passage d'agrégats de particules et la suspension s'appauvrit très vite en particules, puis aux temps longs une évolution beaucoup plus lente intervient, les particules restant en suspension sont trop dispersées pour interagir. La formation de ces couloirs peut être comprise comme une instabilité due aux agrégats qui entraînent beaucoup de fluide, arrivé au fond de la cellule de sédimentation, le fluide clair doit remonter, il y a alors ségrégation dans le fluide entre le fluide clair qui monte et les agrégats qui descendent.

III.3.1 Influence des parois

Comme dans le cas newtonien, dans le cas rhéofluidifiant l'influence des parois réduit la vitesse d'une particule isolée. Les effets d'une paroi verticale sont cependant plus faibles que dans le cas newtonien [41], les équations connues dans le cas newtonien surestiment donc son effet. L'interaction avec le fond d'une cellule a lieu à partir d'une distance de 10 rayons dans un fluide rhéofluidifiant [1] au delà de cette distance, le milieu peut être considéré comme infini.

La vitesse de sédimentation est assez bien connue dans le cas de solutions polymères rhéofluidifiantes et en particulier l'évolution avec la taille de la particule. Dans le cas de doublets, les particules s'agrègent si elles sont suffisamment proches, dans le cas de suspensions, une structuration en colonnes d'agrégats sédimentation très vite d'une part et en colonnes de fluide clair d'autre part a été repérée.

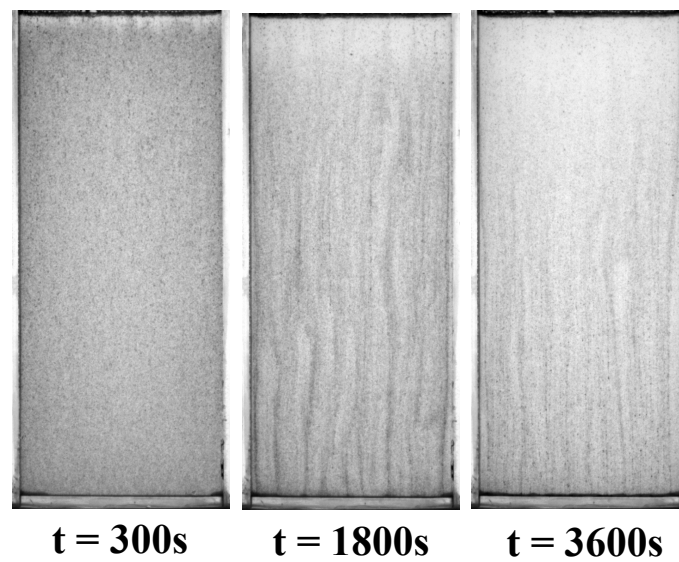


FIG. 1.III.4 – Images de la sédimentation d’une suspension à $\phi = 0,2\%$ dans le xanthane issues de [57].

Chapitre IV

Écoulement du fluide autour d'une particule en sédimentation

Sommaire

IV.1 Fluide newtonien	50
IV.2 Fluide viscoélastique et/ou rhéofluidifiant	51
IV.3 Fluide à seuil non thixotrope	56
IV.3.1 Expériences	57
IV.3.2 Calculs numériques	57

Après avoir présenté dans la section précédente les résultats de la littérature concernant la vitesse de sédimentation, nous allons dans cette section considérer le phénomène à une échelle plus locale. Nous présentons ici les différentes études (expérimentales, numériques et théoriques) qui ont été récemment réalisées sur l'écoulement autour d'une particule en sédimentation. Suivant les propriétés rhéologiques du fluide, des différences qualitatives et quantitatives ont été observées sur le champ de vitesse. Plusieurs auteurs se sont attachés à relier ces différences aux propriétés de la viscosité élongationnelle et des contraintes normales du milieu. Pour les études expérimentales, le fluide suspendant est généralementensemencé de traceurs (particules sphériques de petite taille qui ne sédimentent pas), le mouvement de ces traceurs est quantifié par un traitement d'images qui permet de visualiser l'écoulement du fluide, cette technique s'appelle la PIV (Particle Image Velocimetry, vélocimétrie par image de traceurs) que nous détaillerons dans le chapitre II de la troisième partie. Les notations de ce chapitre sont les mêmes que dans le chapitre précédent, présentées sur la figure 1.III.1.

IV.1 Fluide newtonien

Dans le cas newtonien et aux petits nombres de Reynolds, la résolution de l'équation de Stokes (1.4.1) permet de calculer en chaque point la vitesse du fluide autour d'une particule se déplaçant à la vitesse V_p dans un milieu infini. En coordonnées polaires (présentées sur la figure 1.IV.1) le système d'équations pour décrire la vitesse du fluide dans le référentiel du laboratoire et le repère de la particule, s'écrit selon l'équation (1.4.2) [58].

$$\frac{1}{\rho} \overrightarrow{\text{grad}} (p - p_0) = \nu \Delta \overrightarrow{\mathbf{v}} \quad (1.4.1)$$

$$\begin{cases} v_r = V_p \cos \theta \left(\frac{3a}{2r} - \frac{a^3}{2r^3} \right) \\ v_\theta = -V_p \sin \theta \left(\frac{3a}{4r} + \frac{a^3}{4r^3} \right) \end{cases} \quad (1.4.2)$$

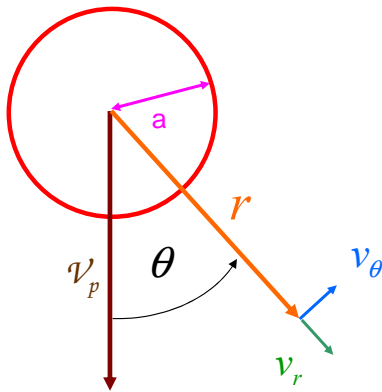


FIG. 1.IV.1 – Repère et notations pour établir l'équation (1.4.2).

Nous pouvons ainsi calculer le champ de vitesse autour d'une particule en sédimentation comme présenté sur la figure 1.IV.2. Il est important de rappeler que cet écoulement correspond au cas du milieu infini ; des effets du fond, de la surface libre et des parois pourront se faire sentir.

Nous pouvons souligner quelques caractéristiques de cet écoulement :

- Le champ de vitesse est symétrique entre l'amont et l'aval de l'écoulement (une dissymétrie peut apparaître à l'oeil sur la figure 1.IV.2 issue de la présentation sous forme de flèches dont la longueur ne doit être "affectée" qu'au point de départ).
- Le module de la vitesse décroît de manière monotone lorsque l'on s'éloigne de la particule quelle que soit la direction considérée.
- Cette décroissance avec la distance à la particule est relativement lente. Par exemple sur un axe horizontal passant par le centre de la particule pour $x/a = 5$, $v_z/V_p = 0,15$.

Il résulte de ces caractéristiques une interaction importante avec les parois ou les autres particules environnantes. Comme nous le verrons dans la suite, ces caractéristiques sont fortement modifiées

lorsque le fluide considéré est non-newtonien.

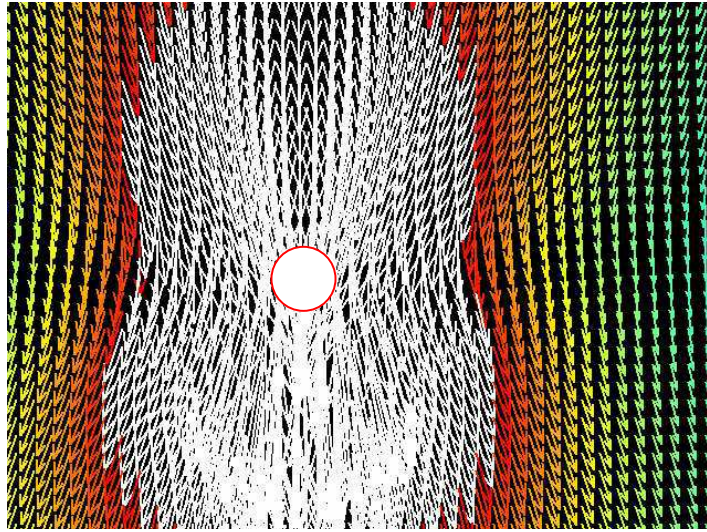


FIG. 1.IV.2 – Champ de vitesse autour d’une particule en sédimentation dans un fluide newtonien calculé à partir de l’équation (1.4.2). La particule présentée en blanc sert à guider l’œil.

Une analyse en déformation de cet écoulement est également intéressante. Il s’agit de caractériser dans chaque partie de l’espace la nature de la sollicitation la plus importante exercée par la particule sur le fluide (ce qui permettra également de relier plus simplement l’écoulement autour d’une particule à la rhéologie du fluide). Comme présenté sur la figure 1.IV.3, nous avons en amont de la particule, le fluide qui est comprimé par l’arrivée de la particule. L’écoulement est un écoulement de contraction. Sur l’horizontale passant par le centre de la particule la vitesse dans le fluide passe de la vitesse de la particule à une vitesse nulle loin de la particule, cette zone est en cisaillement. En aval, nous avons plusieurs effets possibles une élongation à la verticale de la particule et pour les fluides dépendant du temps, à la fois de l’élongation et une relaxation due à l’arrêt de cisaillement du fluide. Ainsi suivant les propriétés rhéologiques du fluide suspendant, nous nous attendons à ce que le champ de vitesse soit différent.

IV.2 Fluide viscoélastique et/ou rhéofluidifiant

Dans le cas de fluides viscoélastiques et/ou rhéofluidifiants, l’écoulement autour d’une particule en sédimentation a été étudié de manière expérimentale et comparé à des simulations numériques. Des effets spectaculaires comme la remonté du fluide en aval de la particule ont été observés (c’est ce phénomène que nous appellerons dans la suite traînée négative). Ces études ne sont pas toutes très récentes, un article, publié dans *Nature* en 1979 [59], présente cet effet dans le cas de la remontée d’une

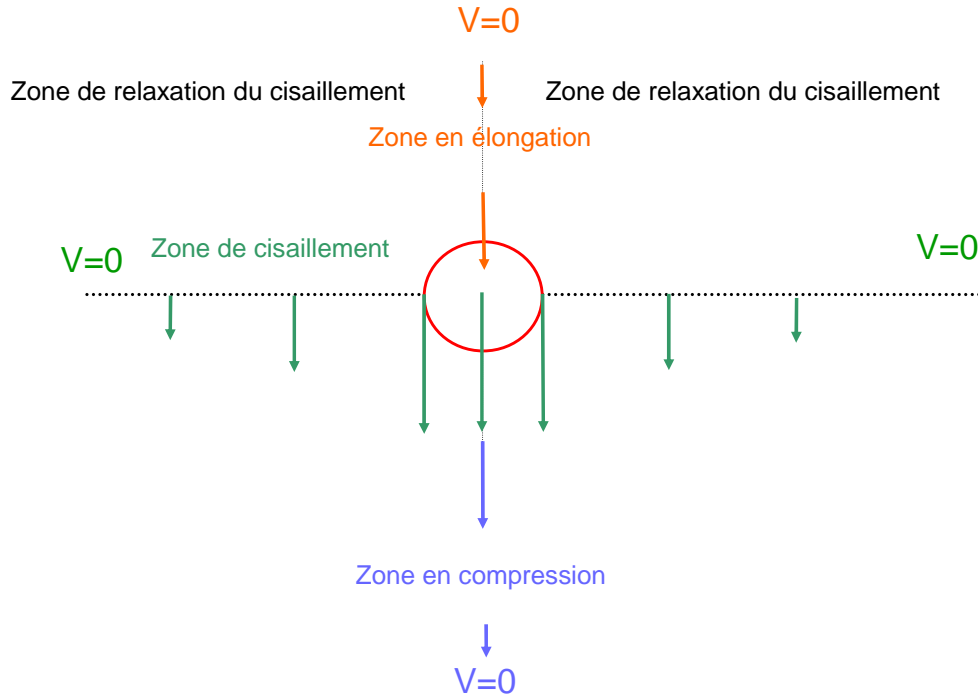


FIG. 1.IV.3 – Principales déformations autour d'une particule en sédimentation.

bulle dans une solution de polymères. Les études expérimentales réalisées ont porté sur divers types de fluide. Pour caractériser les fluides utilisés, des mesures rhéologiques ont généralement été réalisées en vue de déterminer le temps caractéristique du fluide et la viscosité au gradient de cisaillement équivalent à la sédimentation d'une particule ($\dot{\gamma} = \frac{V_p}{2a}$). Ces estimations permettent d'évaluer le nombre de Deborah (calculés à partir du temps de Stokes) : $De = \frac{V_p}{2a} \lambda_1$, λ_1 étant le temps caractéristique du fluide.

Une étude menée par M.T. Arigo *et al.* [60] présente la sédimentation d'une particule dans un fluide de Boger. Les auteurs ont mesuré la vitesse du fluide sur l'axe vertical passant par le centre de la particule à l'aide d'une technique de vélocimétrie à laser Doppler. Cette étude concerne $V_z(z)$ à la verticale de la particule pour divers nombres de Deborah. La comparaison des vitesses normées est présentée sur la figure 1.IV.4. On peut remarquer que l'écoulement s'étend de plus en plus loin en aval de la particule lorsque le nombre de Deborah augmente. Pour un nombre de Deborah faible, l'écoulement tend vers l'écoulement newtonien vu dans la section précédente. En revanche, en amont de la particule l'écoulement reste toujours assez proche du cas newtonien. Les auteurs ont comparé leurs expériences à des résultats issus de calculs numériques. Des modèles de type "lois de comportement" permettent de décrire correctement les variations de vitesse observées.

Un autre article issu de cette même équipe [61] présente une étude expérimentale de l'écoulement à la verticale d'une particule en sédimentation dans un fluide viscoélastique et rhéofluidifiant. La vitesse du fluide est mesurée à l'aide de deux techniques : laser Doppler à la verticale de la particule et PIV

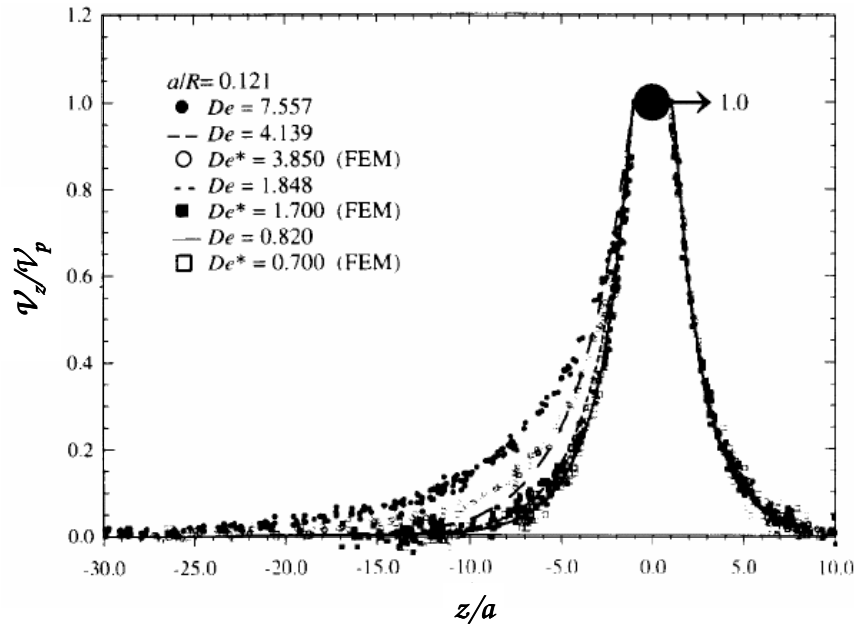


FIG. 1.IV.4 – Vitesse à la verticale de la particule pour différents nombres de Deborah, issu de [60].

tout autour de la particule. Le fluide utilisé est une solution de polymère (polyacrylamide dans un mélange eau/glycérol). Les résultats expérimentaux concernant la vitesse verticale en fonction de la vitesse de la particule sont présentés sur la figure 1.IV.5 (résultats pour $Re \ll 1$). Cette étude a été réalisée en faisant varier la nature des particules qui sédimentent modifiant ainsi le nombre de Deborah et le nombre de Reynolds. La variation de la vitesse normée par la vitesse de la particule reste inchangée pour tous les nombres de De . Dans tous les cas une traînée négative en aval de la particule est observée et en amont la variation de la vitesse reste similaire au cas newtonien. Les auteurs montrent ainsi que lorsque le nombre de Deborah augmente (à faible Re), la traînée est d'une amplitude plus importante. Le point de stagnation reste à la même position comme il est possible de le voir sur la figure 1.IV.5.

Ces mêmes auteurs ont également étudié le régime transitoire qui précède l'écoulement stationnaire pour des nombres de Reynolds intermédiaires. Ils ont remarqué une oscillation de la vitesse, n'entraînant cependant aucune traînée négative. La viscosité du fluide a été caractérisée à l'aide d'expériences de rhéologie élongationnelle et de rhéologie oscillatoire. La corrélation entre la rhéologie et le comportement lors de la sédimentation n'est pas faite explicitement. Les auteurs renvoient à la lecture de deux articles de M.B. Bush (étudiés ci-après) [62] et [63] et à l'article de O.G. Harlen [64] également décrit dans la suite de cette section. Ils corréleront cependant l'existence d'une traînée négative soit au rapport de l'intensité de la différence de contraintes normales en cisaillement (N_1) et en extension ($\Delta\sigma_{ext} = (\sigma_{zz} - \sigma_{rr}) = \bar{\eta}\dot{\epsilon}$), $N_1/\Delta\sigma_{ext}$ qui doit être suffisamment élevé (selon une description de Bush), soit au rapport entre $\Delta\sigma_{ext}$ et de la contrainte de cisaillement (description par Harlen) évaluée par les auteurs à $\frac{\Delta\sigma_{ext} R}{\sigma_{xy} a}$ qui doit être suffisamment faible. Les résultats [60, 61] présentés par

ces auteurs ne permettent cependant pas de conclure sur un bon critère d'existence de traînée négative.

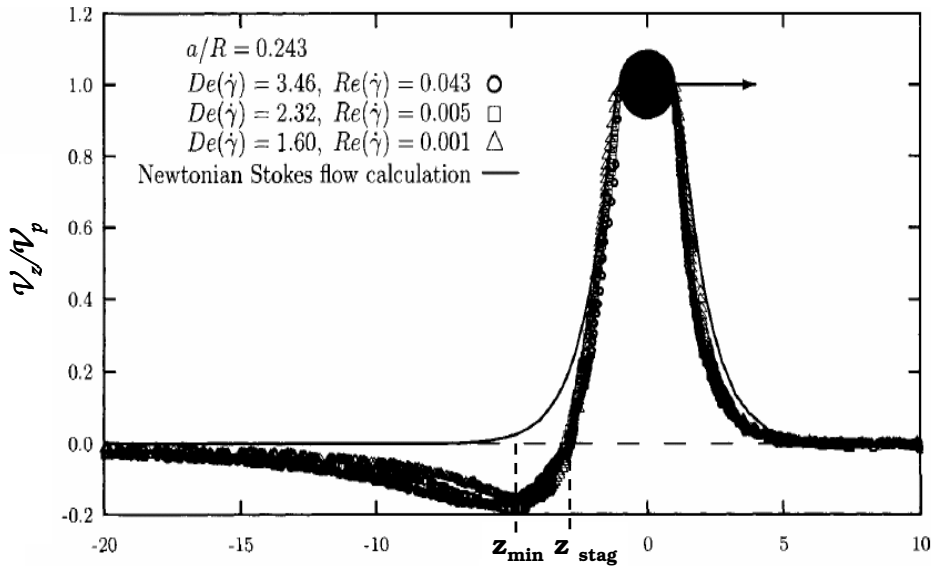


FIG. 1.IV.5 – Vitesse à la verticale de la particule pour différents nombre de Reynolds et de Deborah issu de [61].

Deux études expérimentales et numériques réalisées par M.B. Bush [62] et [63] concernent l'écoulement autour de sphères en sédimentation dans des fluides non-newtoniens (élastique dans le premier article, rhéofluidifiant dans le second).

Dans le premier article [62], la particule est maintenue en suspension à l'aide d'un fil de nylon et le fluide circule autour d'elle (circulation en circuit fermé à l'aide d'une pompe). Deux fluides de type Boger sont étudiés. La vitesse du fluide est mesurée en aval de la particule à l'aide d'une technique de laser Doppler. Le comportement observé est du même type que sur la figure 1.IV.4. Des mesures ont été effectuées avec différents débits qui peuvent être décrits en termes de différents nombres de Deborah. Les résultats de ces expériences montrent que lorsque le nombre de Deborah augmente, l'écoulement s'étend de plus en plus loin en aval de la particule. Ce comportement est assez bien décrit par une simulation numérique basée sur des modèles d'Oldroyd-B et de Phan-Thien-Tanner.

Le second article [63] analyse des expériences dans un fluide rhéofluidifiant (solution de polyacrylamide dans un mélange eau-sirop de maïs). Une particule est suspendue dans le fluide par un fil de nylon et le tube a un mouvement vertical à vitesse constante dans le référentiel du laboratoire. La vitesse du fluide en aval de la particule est mesurée à l'aide d'une technique de laser Doppler. Différents fluides sont étudiés : la concentration en polymère étant fixée, la proportion de sirop de maïs est variée. Ces fluides possèdent ainsi divers temps de relaxation. Les caractéristiques des fluides sont classées en fonction du nombre de Deborah. Les deux types de comportement (écoulement étendu du type de la figure 1.IV.4 et traînée négative du type de la figure 1.IV.5) sont observés. L'écoulement étendu est observé pour des nombres de Deborah élevés ($De > 1,5$) et la traînée négative pour un

nombre de Deborah faible ($De < 1, 2$). Des simulations numériques ont également été réalisées (logiciel *Polyflow*) : l'augmentation du nombre de Deborah accentue soit la traînée négative (contrairement aux expériences) soit l'étendue de l'écoulement (comme dans certaines expériences) selon le modèle de fluide utilisé. Un autre nombre caractéristique est alors considéré : le rapport entre le nombre de Deborah et le nombre de Trouton De/T_R . Ce rapport permet d'expliquer, mais en partie seulement, le comportement observé. La nécessité de connaître l'importance de la viscosité élongationnelle pour comprendre l'écoulement autour de la particule est ainsi mise en évidence.

Une étude menée par H.Z. Li *et al.* [65, 66] concerne la remontée de bulles dans une solution de polymère (polyacrylamide dans l'eau). Les conditions expérimentales sont similaires à celles de la sédimentation d'une particule sauf pour la géométrie de l'objet qui change en fonction de l'écoulement. Le fluide étudié présente des propriétés de viscoélasticité et de rhéofluidification. Les auteurs observent par PIV les mouvements du fluide autour d'une bulle. Ils observent une traînée négative en aval de l'objet. Ils définissent alors plusieurs zones de l'écoulement schématisé sur la figure 1.IV.6 : zone 1 en amont de la bulle de remontée du fluide, le mouvement est dans le même sens que la bulle (c'est une zone en compression) ; zone 2 en aval de la bulle latéralement une remontée du fluide formant un cône creux (zone en cisaillement) autour de la zone 3 dans laquelle le fluide va dans le sens inverse de la bulle (zone en élongation). Ils effectuent aussi une visualisation des contraintes dans le fluide par biréfringence induite. Une étude préliminaire, qualitative, sur la laponite a été réalisée dans cette équipe [67]. Les auteurs observent dans des suspensions à 1 % et 0,8 % de laponite, l'écoulement autour de bulles. Cet écoulement est similaire au cas newtonien (similaire à la figure 1.IV.2). Ils étudient plus particulièrement la forme des bulles engendrées dans ce fluide.

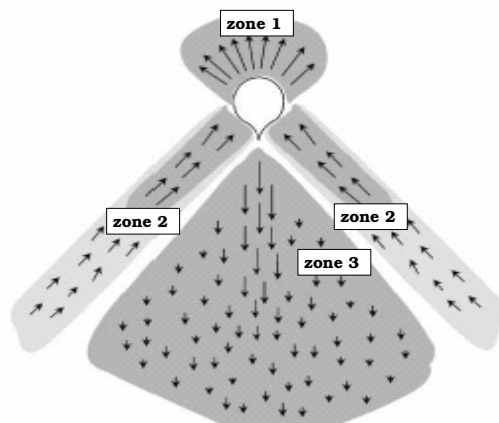


FIG. 1.IV.6 – Écoulement autour d'une bulle remontant dans un fluide viscoélastique, issu de [66].

Une étude récente menée par S. Chen *et al.* [68] présente l'écoulement autour d'une particule en

sédimentation dans une solution de micelles géantes pour différentes particules. Les particules utilisées sont toutes de même taille mais de nature différente pour explorer différents régimes de sédimentation. Le fluide est caractérisé par des mesures de rhéologie de cisaillement et d'élongation. Il est très bien décrit par un modèle de Maxwell avec un temps caractéristique $\lambda_1 = 5,7$ s. Les différentes particules permettent de solliciter le fluide dans différents régimes. Le résultat est le suivant : pour un nombre de Deborah faible ($De = 1, 8$), l'écoulement est similaire à l'écoulement dans le cas newtonien ; pour un nombre de Deborah intermédiaire (De de 2 à 4), l'écoulement présente une traînée négative et pour un nombre de Deborah élevé ($De \geq 6, 6$), l'écoulement est instable avec une vitesse de particule présentant des oscillations. Les auteurs corréleront la présence d'une traînée négative avec le critère $N_1/\Delta\sigma_{ext} \propto De/T_R$ proposé par M.T. Arigo *et al.* dans [61] (qui est le même argument que celui proposé par Bush [63]). L'instabilité de la vitesse de la particule est aussi étudiée. Elle a son origine dans la limite d'extension possible avec une solution de micelles géantes. Ces auteurs ont également observé la sédimentation par biréfringence que nous détaillerons dans le prochain chapitre.

Une étude numérique et théorique a été réalisée par O.G. Harlen [64]. Cette étude compare les résultats de trois différents modèles de viscoélasticité : deux modèles d'haltères et un modèle de Giesekus. Ces modèles conduisent à des comportements qualitativement similaires à ceux des expériences présentées ci-avant. L'auteur tente en particulier d'expliquer le phénomène de traînée négative observé précédemment. Ainsi, il simule le tenseur déformation $\overline{\overline{\gamma}}$ au sein du fluide dans les différentes zones d'espace. Pour ensuite comprendre les forces exercées sur le fluide, l'auteur considère comme volume de contrôle un cylindre en aval de la particule dont l'axe passe par le centre de la particule. Comme on peut le voir sur la figure 1.IV.7 à droite, les molécules sur l'axe du cylindre proche de la particule sont plus étirées que celles à l'autre extrémité du cylindre. À ces étirements il est possible d'associer une composante γ_{zz} du tenseur des déformations d'amplitude différente. Il en résulte une force de rappel dirigée vers la particule. Plus la viscosité élongationnelle sera importante, plus ces étirements se feront sentir loin de la particule : ce qui permet d'expliquer l'extension de traînée du fluide en aval observée pour certains fluides de Boger [60] [62]. Les molécules situées sur le bord du cylindre de contrôle ne sont plus dans l'axe du cylindre, leur déformation implique une composante γ_{rz} du tenseur des déformations ce qui conduit à une force dirigée vers l'aval et donc à une traînée négative ce qui est observé pour certains fluides rhéofluidifiants [61].

IV.3 Fluide à seuil non thixotrope

Comme pour la vitesse de sédimentation, une description simple est aussi possible pour l'écoulement autour d'une particule en sédimentation dans un fluide à seuil non thixotrope. Pour que le fluide s'écoule, il faut que la contrainte dans le fluide soit supérieure à la contrainte seuil. Ainsi près de la

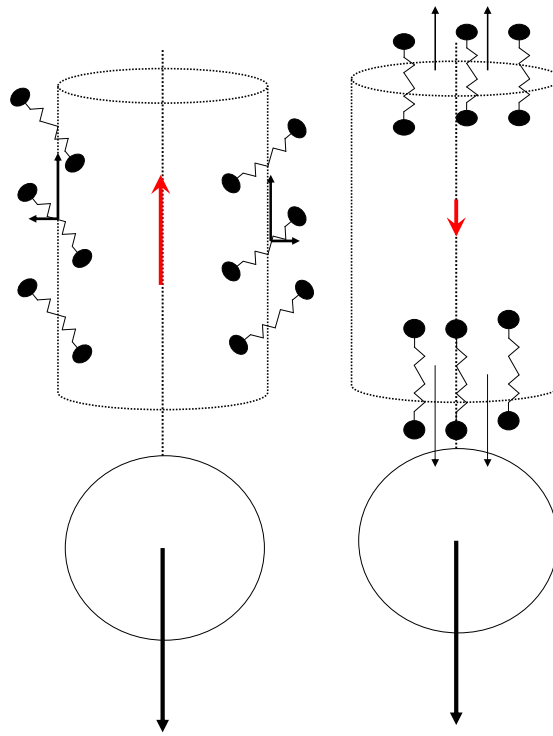


FIG. 1.IV.7 – Schéma issu de [64] présentant la force résultante sur un cylindre de contrôle à l'aval d'une particule en sédimentation, à gauche force due aux molécules sur les bords, à droite sur les faces inférieure et supérieure.

particule en sédimentation la contrainte est importante, le fluide s'écoulera ; au contraire loin de la particule, la contrainte dans le fluide est faible, le fluide sera au repos. Il est ainsi possible de définir une zone du fluide dans laquelle le fluide s'écoule autour de la particule comme le montre la figure 1.IV.8.

IV.3.1 Expériences

Une étude de D.D. Atapattu *et al.* en 1995 [46] est basée sur une visualisation par nappe laser de l'écoulement autour d'une particule dans un fluide à seuil (le carbopol). Une première cartographie de l'écoulement a donc pu être effectuée expérimentalement. Le fluide qui entoure la particule est placé dans un conteneur cylindrique immobile. La particule et le montage optique sont solidaires et translatés à une même vitesse constante. Les résultats obtenus montrent que le fluide reste immobile même à des distances relativement faibles de la particule (de l'ordre de 5 à 10 fois le rayon).

IV.3.2 Calculs numériques

Des calculs numériques ont été réalisés dans le cadre simplifié de fluides de Bingham décrit par l'équation (1.2.2). Une étude menée par A.N. Beris *et al.* [69] analyse la géométrie de l'enveloppe se

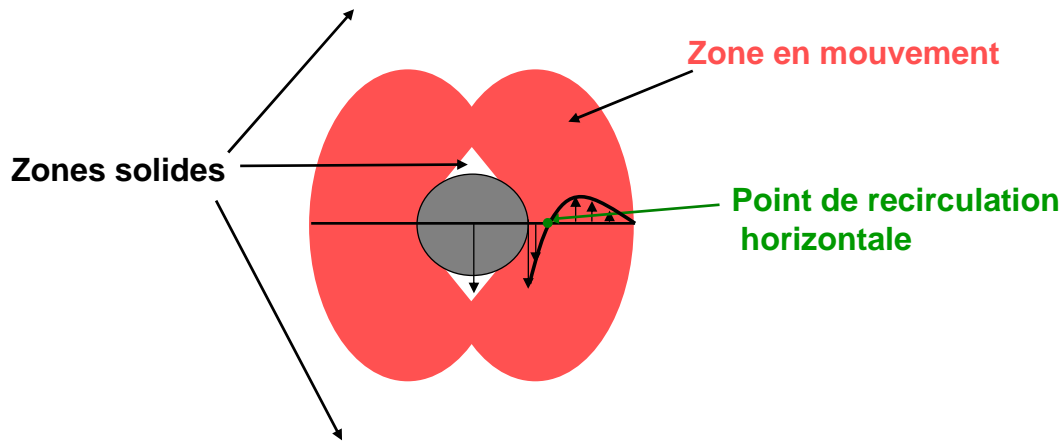


FIG. 1.IV.8 – Description de l'écoulement autour d'une sphère sédimentant dans un fluide à seuil, issu de [69].

déplaçant avec la particule de la forme présentée sur la figure 1.IV.8. Les auteurs définissent plusieurs nombres caractéristiques ; le nombre de "contrainte seuil" Y_g qui compare la force issue de la contrainte seuil et la force exercée par la particule sur le fluide (équation 1.4.3) et le nombre de Bingham B qui compare la contrainte seuil et la contrainte due à la viscosité de cisaillement dans le fluide (équation 1.4.4).

$$Y_g = \frac{2\pi a^2 \sigma_0}{\frac{4}{3}\pi a^3 \Delta \rho g} \quad (1.4.3)$$

$$B = \frac{2\sigma_0 a}{\eta_B V_p} \quad (1.4.4)$$

Les calculs montrent qu'une particule ne pourra sédimenter que si le nombre Y_g a une valeur inférieure à 0,143. En outre, pour différentes valeurs de Y_g , les auteurs calculent la forme de l'enveloppe dans laquelle se développe la recirculation. Ils déterminent également la vitesse verticale sur l'horizontale passant par le centre de la particule en fonction de Y_g comme dessiné sur la figure 1.IV.8. Plus Y_g augmente plus le contre écoulement est localisé à proximité de la particule. Des calculs analogues ont été réalisés dans un fluide de Bingham avec parois [70] et dans un fluide de Herschel-Bulkley[71] et conduisent à des résultats similaires.

Les écoulements autour des particules en sédimentation peuvent être très différents à cause des propriétés rhéologiques des fluides concernés.

Chapitre V

Biréfringence

La biréfringence induite par écoulement (FIB Flow-induced birefringence) est une méthode qui consiste à utiliser les propriétés optiques pour mesurer les propriétés d'écoulement d'un milieu constitué d'objets anisotropes. L'intérêt d'une telle mesure est qu'elle est locale, a un temps de réponse très rapide (il n'y a comme inertie que celle de l'écoulement que l'on veut mesurer) et ne perturbe pas le fluide. Cette technique permet de mesurer à la fois les propriétés en régime stationnaire et transitoire. Dans ce chapitre, je vais rappeler les généralités sur la biréfringence avant de l'appliquer au cas de la laponite, aux mesures de rhéologie par biréfringence et au cas de la biréfringence induite par sédimentation d'objets dans un fluide.

Sommaire

V.1 Généralités sur la biréfringence	60
V.1.1 Définitions	60
V.1.2 Origine de la biréfringence	60
V.1.3 Signe de la biréfringence	62
V.2 Biréfringence induite	62
V.2.1 Biréfringence de la laponite et d'argiles discoïdes	62
V.2.2 Mesures de rhéologie par biréfringence	65
V.2.3 Biréfringence de fluides complexes induite par la sédimentation ou la remontée d'objets	65
V.3 Conclusion sur la bibliographie	66

V.1 Généralités sur la biréfringence

V.1.1 Définitions

Dans les milieux actifs optiquement, l'indice d'un milieu peut se décomposer selon les axes propres de celui-ci et on peut définir alors une différence d'indices $\Delta n = n_e - n_o$ entre l'axe extraordinaire et l'axe ordinaire. Δn peut être réel ou imaginaire $\Delta n = \Delta n' + j\Delta n''$, positif ou négatif.

Un milieu **dichroïque** est un milieu dans lequel certaines directions de polarisation sont absorbées ($\Delta n'' \neq 0$). Un exemple de milieu dichroïque est un polariseur.

Un milieu **biréfringent** est un milieu dans lequel la lumière ne se propage pas à la même vitesse selon les directions de propagation et de polarisation ($\Delta n' \neq 0$).

Un milieu est dans le cas général à la fois biréfringent et dichroïque.

Une lumière incidente polarisée linéairement dans une direction quelconque se décompose selon les axes propres du milieu. Elle se propage alors à différentes vitesses selon les axes du milieu. En sortie les deux signaux se recombinent avec une amplitude modifiée par le dichroïsme d'amplitude $e^{-\frac{2\pi d}{\lambda}(n''_t + n''_r)} = e^{-\frac{2\pi d}{\lambda}\Delta n''}$ et avec un déphasage δ appelé "retard optique" dû à la biréfringence entre les composantes :

$$\delta = \frac{2\pi d}{\lambda} \Delta n'$$

avec λ longueur d'onde de la lumière, d l'épaisseur de l'échantillon biréfringent et $\Delta n'$ la différence d'indice entre les deux milieux (appelée aussi biréfringence). Dans la suite $\Delta n''$ sera négligé¹ et on écrira Δn pour la biréfringence. Le signal en sortie dépend aussi de l'angle entre un axe propre et la direction de polarisation incidente on le note χ , il est appelé "angle d'extinction". Dans le cas du cisaillement simple, il est mesuré entre la direction de l'écoulement et un axe propre du milieu biréfringent ; en sédimentation nous le définirons comme l'angle entre la verticale et l'axe propre.

V.1.2 Origine de la biréfringence

Pour observer une intensité de la biréfringence, il faut que le milieu traversé par la lumière soit **anisotrope** et que ce milieu soit **organisé** (ce qui compte c'est l'effet en sortie du matériau).

L'**anisotropie** peut être intrinsèque si le milieu est constitué de molécules ou particules anisotropes ou induite si le milieu est constitué de particules isotropes qui s'organisent pour former des objets anisotropes à une échelle plus élevée comme sur les figures 1.V.1 et 1.V.2.

¹mais qu'il est difficile d'évaluer

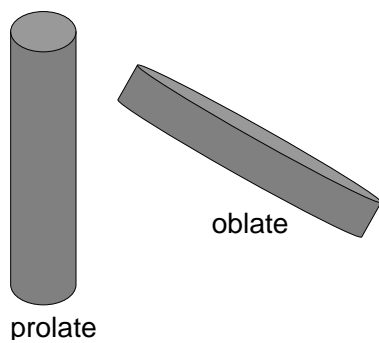


FIG. 1.V.1 – Particules anisotropes.

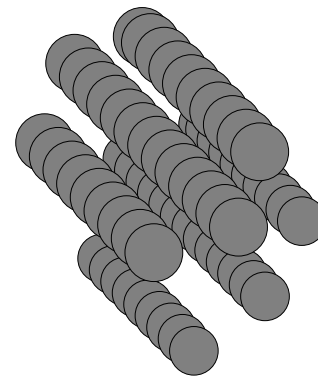


FIG. 1.V.2 – Biréfringence possible après association d'objets isotropes.

L'**organisation** du milieu peut être intrinsèque (cristal ou cristal liquide) ou induite par une contrainte extérieure (cisaillement, élongation, compression, champ électrique ou magnétique...). Cette organisation doit être macroscopique (sur une longueur supérieure à la longueur d'onde de la lumière qui traverse le milieu) comme sur les figures 1.V.4 et 1.V.3.

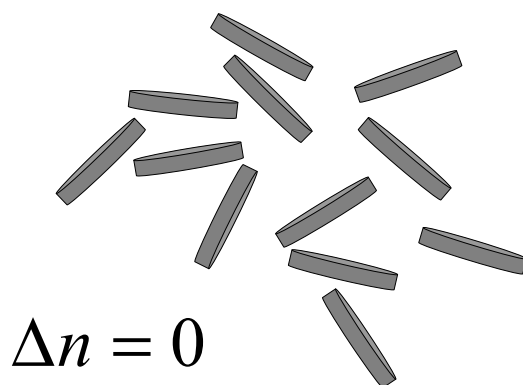


FIG. 1.V.3 – L'orientation aléatoires des plaquettes ne permet pas la biréfringence.

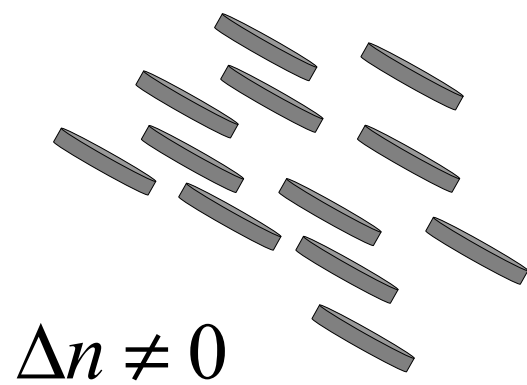


FIG. 1.V.4 – L'orientation des plaquettes permet la biréfringence.

Dans le cas de la biréfringence d'écoulement, on distingue la **biréfringence intrinsèque** due uniquement à l'anisotropie des objets et la **biréfringence de forme** due aux objets dont la taille avoisine la longueur d'onde du fait de la diffusion multiple de la lumière.

Dans le cas où la biréfringence est intrinsèque ; il existe un lien entre la biréfringence mesurée et la contrainte dans le matériau. On appelle cela la "loi tensio-optique". Cette loi s'écrit dans le cas général

comme l'équation (1.5.1) et dans le cas d'une biréfringence linéaire² selon la loi (1.5.2).

$$\vec{n} = C \vec{\sigma} + A \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.5.1)$$

$$\frac{\Delta n}{2} \begin{pmatrix} \cos 2\chi & \sin 2\chi \\ \sin 2\chi & -\cos 2\chi \end{pmatrix} = C \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix} \quad (1.5.2)$$

χ est l'angle d'extinction déjà défini, C est une constante appelée "coefficient tensio-optique", A est une constante qui égale les parties isotropes des tenseurs des indices et des contraintes. Ainsi dans le cas du cisaillement simple cela donne l'équation (1.5.3) et dans le cas de l'élongation uniaxe, l'équation (1.5.4). C dépend de la différence de polarisabilité d'un matériau.

$$\Delta n \sin(2\chi) = 2C\sigma_{xy} \quad (1.5.3)$$

$$\Delta n \cos(2\chi) = C(\sigma_{xx} - \sigma_{yy}) \quad (1.5.4)$$

V.1.3 Signe de la biréfringence

Comme nous l'avons vu la biréfringence est définie comme la différence d'indice entre l'indice extraordinaire et l'indice ordinaire. Elle peut donc être positive ou négative³. Le signe de la biréfringence n'est pas toujours mesurable (il dépend du type de mesure réalisé et souvent l'intensité lumineuse est mesurée directement et étant le carré du champ électrique, on ne mesure alors plus que l'intensité de la biréfringence).

Lors de mesures de biréfringence, on mesure la différence d'indice entre la direction de polarisation incidente et une direction perpendiculaire. Le signe de la "biréfringence" obtenue dépend de la direction de polarisation incidente sur le matériau. Par abus de langage, le signe de la biréfringence mesurée dépend de la direction d'observation [72].

V.2 Biréfringence induite

V.2.1 Biréfringence de la laponite et d'argiles discoïdes

Une particule de laponite est anisotrope avec un rapport d'aspect (30 : 1). Une suspension de concentration supérieure à 3% en masse de laponite aura une organisation à grande échelle : le matériau est alors cristal liquide [5]. Nous n'étudierons pas ce cas. Une suspension plus diluée de laponite possède aussi des propriétés de biréfringence sous contrainte. Prises individuellement, les plaquettes de laponite

²et non pas circulaire

³Pour donner une biréfringence positive, il faut que l'anisotropie soit de type prolata; pour être négative il faut qu'elle soit de type oblate (cf. figure 1.V.1).

ont une biréfringence intrinsèque (due à leur anisotropie) de $\Delta n = -1,4 \cdot 10^{-3}$ mesurée en orientant un échantillon de concentration connue à l'aide d'un champ électrique [14].

La biréfringence de la laponite en présence d'additifs sous cisaillement simple a été étudiée au Mans [14] dans un rhéomètre transparent (géométrie Couette) en fonction de la contrainte appliquée et de l'état de la laponite (dans la phase gel ou sol). L'objectif de l'étude citée est de comprendre l'état de la laponite : verre ou gel agrégatif ? Ils étudient ainsi l'effet d'additifs sur la laponite (certains additifs empêchent l'agrégation, d'autres la favorisent), nous ne présenterons que les résultats sans additifs. Ils observent que dans les solutions de laponite jeunes, la biréfringence est de faible amplitude et une orientation des particules aléatoires (donc un angle d'extinction de 45°). En revanche, les suspensions de laponite plus âgées montrent une biréfringence plus importante et un angle d'extinction présentant de fortes fluctuations et qui diminue avec le gradient de cisaillement. De plus la loi tensio-optique n'est plus vérifiée dans ces suspensions. Pour comprendre ces expériences, il faut prendre en compte le mouvement brownien. Les plaquettes de laponite peuvent tourner sur elles-mêmes avec un temps caractéristique de retournement τ_R .

$$\tau_R = 1/D_R = \frac{4\eta_s d^3}{3k_B T}$$

Avec d le diamètre des plaquettes et η_s la viscosité du solvant. Le nombre de Peclet est alors : $Pe = \dot{\gamma}\tau_R$. Aux faibles gradients de cisaillement, on a $Pe \ll 1$ c'est-à-dire que les plaquettes n'ont "pas le temps" d'être orientées par l'écoulement le mouvement prédominant est le mouvement brownien. Aux forts gradients de cisaillement, le temps de rotation des plaquettes est plus élevé que le temps de l'écoulement. Alors, le mouvement des plaquettes est dirigé par celui du fluide, les plaquettes s'alignent de plus en plus dans le sens de l'écoulement. C'est pourquoi l'angle d'extinction diminue avec le gradient de cisaillement. Il est ainsi possible de définir un gradient de cisaillement critique γ_c entre les deux régimes. La diminution de Δn avec le gradient de cisaillement n'est pas observée aux temps de vieillissement courts : ceci est interprété par le fait que les plaquettes sont bien individualisées à temps court ce qui induit un τ_R plus faible et donc un gradient de cisaillement critique très élevé. Aux temps de vieillissement longs, le gradient de cisaillement critique est plus faible, situé cette fois dans la gamme d'observation, ce qui est interprété par le fait que les particules sont agrégées ce qui leur donne une taille de particule plus grande et ainsi un temps caractéristique plus élevé. Cette étude permet aux auteurs de décrire la structure de la laponite comme un gel agrégatif avec des interactions entre particules du type bord/face avec des "liaisons flexibles".

Une étude d'un mélange laponite-polymère a été réalisée par G. Schmidt *et al.* [73] [74]. Des mesures de biréfringence et de diffusion de neutrons aux petits angles du mélange ont été réalisées. La diffusion aux petits angles pour différentes orientations du signal permet de mesurer l'orientation des particules

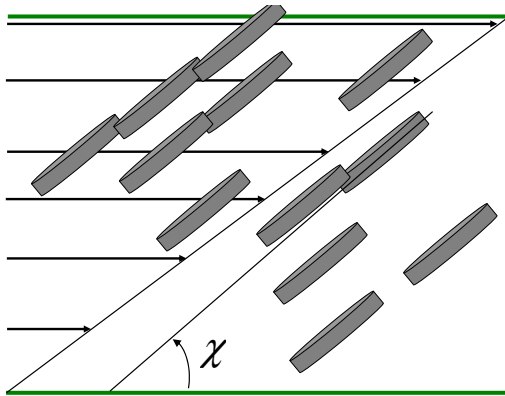


FIG. 1.V.5 – Le cisaillement est trop faible pour empêcher le mouvement brownien il oriente seulement selon le gradient de cisaillement. χ est l'angle d'extinction de la biréfringence. χ vaut ici 45° .

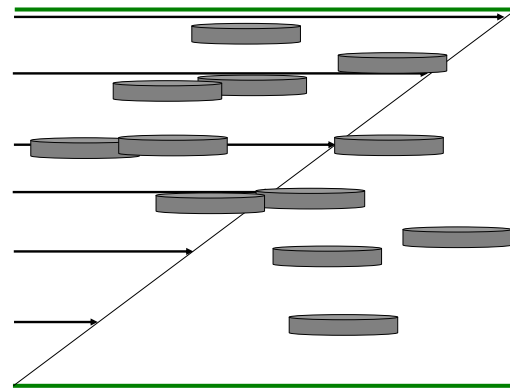


FIG. 1.V.6 – Le cisaillement est suffisamment fort : il permet aux particules de s'orienter selon la direction de la vitesse ($\chi = 0$).

de laponite et du polymère. L'association du PEO et de la laponite montre un effet particulier de la biréfringence sous cisaillement : à faible gradient, la biréfringence est négative à cause des plaquettes de laponite qui s'orientent jusqu'à un gradient de cisaillement critique qui donne une biréfringence minimale de $-100 \cdot 10^{-6}$, au delà la biréfringence augmente pour atteindre des valeurs positives de l'ordre de $+90 \cdot 10^{-6}$. La biréfringence d'une suspension laponite seule à la même concentration (3 % en masse) ne donne une biréfringence que de $-12 (\pm 8) \cdot 10^{-6}$ et de même le POE $+2 (\pm 5) \cdot 10^{-6}$. Le signe de la biréfringence vient de l'orientation des particules de laponite avec leur normale orientée selon l'écoulement puis qui se tournent pour avoir leur normale perpendiculaire à l'axe de l'écoulement lorsque le polymère est sollicité.

Une étude de suspensions de kaolinite (argile discoïde avec un rapport d'aspect de 40 :1) a été réalisée par A. Brown *et al.* [75]. Cette étude porte sur l'orientation des particules en fonction de la concentration en particules et du gradient de cisaillement appliqué par des mesures de diffraction des neutrons à petits angles. Les particules s'alignent avec leur normale selon la direction du gradient de l'écoulement. On peut définir un paramètre d'ordre d'orientation du système. Ce paramètre augmente avec le gradient de cisaillement. À gradient de cisaillement donné, le paramètre d'ordre augmente avec la fraction volumique en particule jusqu'à 13% ; au delà, il diminue pour atteindre à une fraction volumique de 30% un ordre inférieur à celui des suspensions diluées. Les auteurs expliquent cet effet par une température effective dans le système qui augmente avec les interactions et collisions entre particules.

L'étude de la laponite en biréfringence permet ainsi de mesurer le **taux d'orientation** à travers la mesure de Δn ainsi que la **direction d'orientation** moyenne des particules à travers la mesure de

l'angle d'extinction χ . Cette mesure permet également de remonter à la **contrainte** dans le fluide via la loi tensio-optique 1.5.2 lorsque cette loi est vérifiée.

V.2.2 Mesures de rhéologie par biréfringence

Comme nous l'avons signalé, la biréfringence permet des mesures de rhéologie locale du fluide via la loi tensio-optique. Dans un écoulement de cisaillement sur des solutions de micelles géantes [76] la loi tensio-optique (1.5.3) est vérifiée sauf dans le cas de trop faibles concentrations en sel. Dans un écoulement élongationnel sur des solutions de polymères de différentes concentration [77], la loi tensio-optique 1.5.4 est vérifiée jusqu'à de grandes déformations où elle s'éloigne progressivement de ce comportement. Ce qui permet de faire des mesures quantitatives de rhéologie.

V.2.3 Biréfringence de fluides complexes induite par la sédimentation ou la remontée d'objets

L'équipe de H.Z. Li [65, 66, 78] étudie la remontée de bulles dans des solutions de polymères comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent. Ils ont aussi observé la biréfringence induite dans le fluide par le passage de bulles. Dans leur dispositif expérimental, les auteurs ont ajouté à leur fluide des molécules biréfringentes (1% d'hydroxypropylcellulose) et éclairé leur milieu par une lumière polarisée linéairement (dans la direction verticale ou à 45°). Les images de biréfringence sont ensuite comparées aux résultats expérimentaux obtenus par PIV de façon qualitative.

Une étude menée par S. Chen *et al.* [68] (déjà présentée en partie dans le chapitre précédent), concerne la sédimentation de particules de différentes caractéristiques dans une solution de micelles géantes. Les auteurs cherchent à corréler la traînée négative (mesurée avec une technique de PIV) à la biréfringence observée dans le milieu (ce sont les micelles qui s'orientent dans l'écoulement pour donner un signal en biréfringence) et la présence du régime instable (décrit dans le chapitre précédent). Ils ont comparé les résultats de biréfringence avec les résultats de sédimentation. Pour les nombres de Deborah faibles où l'on observe un écoulement quasi-newtonien, l'intensité de biréfringence est faible. Pour les nombre de Deborah plus élevés, la biréfringence est plus forte. Les auteurs ont aussi mesuré la biréfringence sur l'axe passant par le centre de la particule en fonction de la distance à la particule. La technique utilisée pour cette mesure permet de mesurer le signe de la biréfringence. La biréfringence mesurée change de signe avec le passage de la particule. Elle est positive dans la zone de compression, négative dans la zone en élongation car tournées de 90° ⁴. L'intensité de biréfringence est extrême à l'endroit où est observé le point de stagnation dans les cas avec traînée négative ; ce maximum est situé sur la particule dans les cas où l'écoulement est proche du cas newtonien. Ce maximum vient du fait

⁴le signe change à cause de la mesure comme indiqué dans la partie V.1.3

qu'au point de stagnation la vitesse du fluide est nulle donc les micelles y restent longtemps ; d'autre part, le taux d'extension étant maximal, la déformation élongationnelle est la plus importante à cet endroit. Dans le cas du régime instable, la biréfringence oscille entre des valeurs positives et négatives montrant l'évolution du fluide dans ce régime.

V.3 Conclusion sur la bibliographie

La laponite est encore beaucoup étudiée sous différents aspects : chimique pour décrire la nature et la taille des plaquettes formées et les précautions qu'il faut prendre pour conserver les échantillons, physique (description des interactions entre plaquettes de laponite), et rhéologique pour décrire l'écoulement des suspensions ainsi réalisées. La rhéologie de la laponite est difficile à caractériser car elle possède de nombreuses propriétés qu'il est difficile d'isoler.

La sédimentation dans des fluides complexes a fait l'objet de différentes études. La vitesse de particules en sédimentation dans un fluide non newtonien n'est actuellement pas complètement comprise. Les fluides complexes présentent souvent plusieurs caractéristiques non newtoniennes à la fois ; il n'est pas facile de les intégrer complètement dans des modèles. L'écoulement autour de particules en sédimentation a fait l'objet d'études dans un certain nombre de fluides. Des champs de vitesse très différents sont observés dans certains cas : soit davantage étendus que dans le cas newtonien à l'aval de la particule, soit présentant une traînée négative en aval de la particule (le fluide remonte après le passage de la particule). Les paramètres permettant de prédire les différents types de comportements ne sont pas encore complètement élucidés : la viscosité élongationnelle semble jouer un rôle déterminant, ce paramètre restant toutefois délicat à mesurer précisément.

La biréfringence d'écoulement est très utilisée pour des solutions polymères. Cette technique permet de mesurer le taux d'orientation d'objets et si la loi tensio-optique est vérifiée, de mesurer l'état de contrainte du fluide. C'est une mesure complémentaire du champ de vitesse.

Après avoir fait le point dans cette première partie sur les connaissances actuelles utiles pour comprendre la sédimentation dans la laponite (fluide à seuil thixotrope modèle), nous présentons dans la prochaine partie le protocole de préparation des échantillons de laponite que nous avons mis au point ainsi que les caractérisations rhéologiques que nous avons réalisées.

Deuxième partie

Systeme experimental

Chapitre I

Description de la laponite et caractérisation par rhéologie

L'objectif de ce chapitre est de décrire le fluide que nous avons utilisé dans les expériences de sédimentation : des suspensions de laponite. Dans une première partie, nous détaillerons les éléments qui nous ont conduit à utiliser ce fluide ; dans une deuxième partie nous indiquerons le protocole de préparation et les raisons qui nous ont amené à l'adopter. Dans une troisième partie, nous caractériserons les suspensions de laponite à travers des expériences de rhéologie. Ces expériences permettront ensuite d'analyser les résultats des expériences de sédimentation.

Sommaire

I.1	Choix du fluide	70
I.2	Laponite	70
I.2.1	Protocole de préparation	70
I.2.2	Chronologie	71
I.2.3	Justification du protocole de préparation	72
I.2.4	Étude du pH	73
	I.2.4.1 Pendant le "mûrissement"	74
	I.2.4.2 Après utilisation	74
I.3	Rhéologie	75
I.3.1	Matériel et méthodes	75
	I.3.1.1 Rhéomètres : principe et matériel	75
	I.3.1.2 Géométries	76
	I.3.1.3 Mesures de rhéologie	76
	I.3.1.4 Types d'expériences	77
I.3.2	Résultats	77

I.3.2.1	Rampe de contrainte	78
I.3.2.2	Évolution sous contrainte	81
I.3.2.3	Modèle de description de la rhéologie de la laponite	82
I.3.2.4	Fluage	87
I.3.3	Mesures de viscosité élongationnelle	92
I.3.4	Conclusion	94

I.1 Choix du fluide

Dans cette étude, nous voulons caractériser la sédimentation dans un fluide modèle proche des fluides utilisés sur le terrain (comme les boues de forage). Ces fluides sont décrits comme étant à seuil, rhéofluidifiant, thixotrope... Nous ne pouvons pas utiliser ces fluides directement car ce sont le plus souvent des mélanges complexes non transparents.

La laponite est une argile synthétique dont nous avons détaillé les propriétés dans l'analyse bibliographique. Les boues de forage sont constituées de différents éléments contenant des polymères et des argiles. Les polymères sont utilisés pour leurs propriétés rhéofluidifiantes et les argiles pour leur capacité à former un fluide à seuil. La sédimentation dans une solution de polymères rhéofluidifiante a déjà fait l'objet de plusieurs études en particulier dans le cadre de la thèse de S. Daugan (dont nous avons donné des résultats dans le chapitre III de la première partie). La laponite qui possède des propriétés de vieillissement (thixotropie) importantes a des propriétés comparables à la bentonite utilisée dans les boues de forage.

I.2 Laponite

Comme nous l'avons décrit dans le chapitre précédent, la laponite est une suspension colloïdale. Pour s'assurer de sa stabilité, il est nécessaire de contrôler en particulier la force ionique et le pH. Des premiers résultats nous ont amené à mettre au point un protocole particulier pour la préparation des échantillons et pour leur utilisation. Nous avons déterminé une concentration et des conditions physico-chimiques que nous avons gardées constantes dans la suite. Des mesures de pH nous ont permis de déterminer en partie l'état de la laponite pendant le mûrissement qui a lieu pendant les premiers jours.

I.2.1 Protocole de préparation

Nous avons vu dans la partie bibliographique que la laponite présente une très grande sensibilité au mode de préparation. Il est alors nécessaire de définir un protocole de préparation précis et de le maintenir constant pour toutes les solutions préparées. Les échantillons ont été préparés à l'aide d'un

protocole détaillé ci-après que nous avons déterminé et qui nous assure une reproductibilité correcte des résultats.

- Une solution A est préparée : 400 mL d'eau de qualité milliQ (c'est-à-dire doublement osmosée pour donner une résistivité de 18,2 M Ω cm) sont ajustés au pH 10 avec de la soude 0,02 M (bouteille de 500 mL en pyrex). La force ionique de l'échantillon est donc de 10^{-4} M.
- Les différents éléments sont placés sous azote (barreau aimanté, poudre de laponite et solution A) et laissés au repos 15 min.
- La quantité de poudre de laponite nécessaire (soit 10 g pour la concentration utilisée : 2,5 % en masse) est ajoutée à la solution sous azote.
- Toujours sous azote le barreau aimanté est introduit dans la bouteille.
- La bouteille est ensuite fermée et scellée avec du parafilm. L'échantillon a alors un aspect laiteux et est constitué de "grumeaux".
- Il est ensuite agité à l'aide d'un agitateur magnétique pendant au moins une heure jusqu'à la disparition de tout résidu visible. L'aspect de l'échantillon est alors parfaitement transparent.
- L'échantillon est ensuite conservé pendant 10 jours dans une bulle d'azote et agité à l'agitateur magnétique au moins une heure tous les deux jours.
- Juste avant son utilisation, le fluide est précisailé toujours sous azote avec un agitateur magnétique au moins une heure.
- Juste après chaque utilisation la bouteille est remise sous azote pour la préserver de l'air ambiant. Tout échantillon n'est utilisé qu'une seule fois (la mise à l'air gêne la reproductibilité).

L'agitation effectuée avec l'agitateur magnétique peut sembler assez peu reproductible. Nous l'avons effectuée de telle sorte que l'on puisse observer le creusement d'un vortex central dans la bouteille comme le montre la figure 2.I.1. Le cisaillement obtenu dans la bouteille est de l'ordre de 30 s^{-1} . Cette valeur certes faible, nous permet d'obtenir des échantillons reproductibles.

I.2.2 Chronologie

Les suspensions de laponite ont été préparées avec un protocole particulier vu dans la section précédente. Les différentes étapes de la préparation sont schématisées sur la figure 2.I.2. Nous appellerons temps de vieillissement (t_w) le temps pendant lequel la laponite se restructure et pendant lequel nous allons l'utiliser.

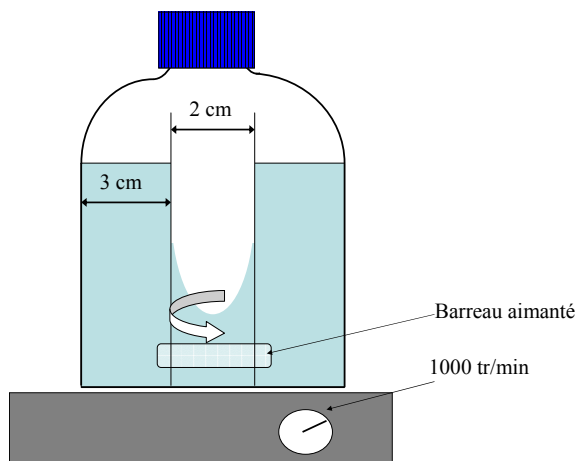


FIG. 2.I.1 – Agitation de la laponite.

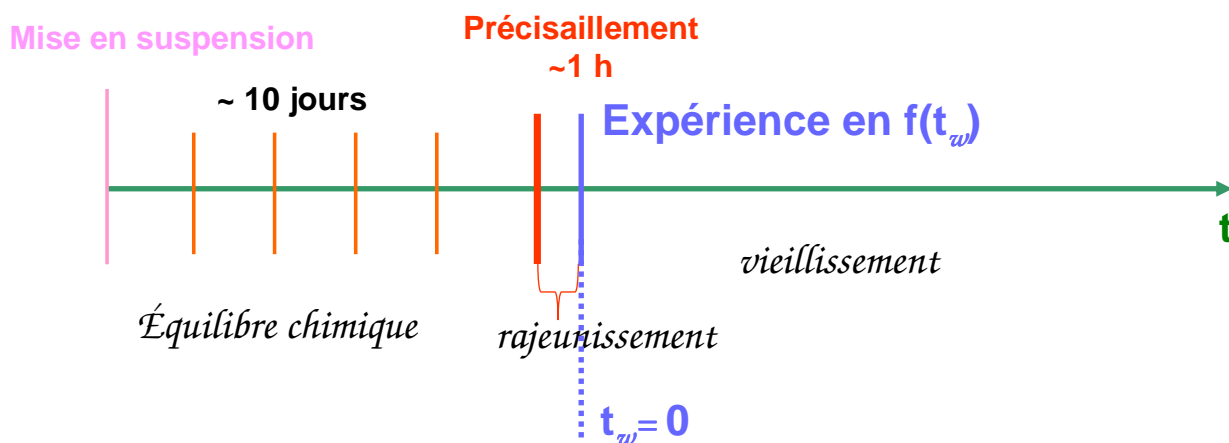


FIG. 2.I.2 – Utilisation de la laponite -mise en suspension -phase de mûrissement agitation tous les deux jours équilibre chimique 10 jours -agitation juste avant utilisation -observation pendant le temps de vieillissement.

I.2.3 Justification du protocole de préparation

Le protocole spécifique est issu des premiers résultats et de l'étude bibliographique.

- La **mise sous azote** s'est révélée changer la reproductibilité des résultats. Dans les premières expériences réalisées complètement hors azote, la laponite présentait une viscosité et un seuil apparent très élevés et très peu reproductibles. Des concentrations faibles (autour de 1 %) étaient seules utilisables.
- L'agitation à l'**agitateur magnétique** s'est révélée très intéressante car elle permet de conserver le fluide sous azote lors du mûrissement et d'agiter le fluide sur des temps longs.

- La concentration utilisée (**2,5 % en masse** soit une fraction volumique de 0,9 %) est une concentration suffisante pour avoir des vitesses de sédimentation mesurables (assez lentes), tout en laissant la possibilité d'agiter à l'agitateur magnétique (une suspension de concentration 3 % ne peut plus être agitée par ce système au bout de quelques jours).
- L'agitation **tous les deux jours** est réalisée pour assurer une bonne hydratation de toutes les plaquettes de laponite (la bouteille peut "prendre", avant que toutes les plaquettes de laponite ne soient hydratées l'échantillon restant alors inhomogène) et pour permettre une utilisation ultérieure (si le gel devient trop "fort", il n'est plus possible de prélever un échantillon à une concentration bien contrôlée). Cette phase de mûrissement peut être justifiée par le fait qu'un échantillon cisailé un certain nombre de fois finit par atteindre un équilibre rhéologique. En effet dans la thèse de P. Mongondry [14], des expériences ont été réalisées sur des suspensions de laponite en faisant de la rhéologie oscillatoire sur un échantillon après un fort cisaillement. La première expérience est sur un échantillon au repos initialement, l'expérience est réalisée jusqu'à ce que $G' = 15$ Pa. Ensuite on recisaille de nouveau l'échantillon, on réalise une expérience de rhéologie oscillatoire laquelle a une cinétique plus rapide. On recommence l'opération plusieurs fois. Il a alors été montré que la rhéologie de cet échantillon suit une courbe maîtresse après plusieurs cycles. Une série de cycles de cisaillement/repos est donc nécessaire pour obtenir un état d'organisation microscopique reproductible.

Ces précautions ne sont cependant pas optimales : le cisaillement induit dans la bouteille n'est pas très fort et la gamme de concentration accessible pas très élevée. Les résultats présentés ne sont pas parfaitement reproductibles, il subsiste toujours une assez forte dispersion des résultats. Les premiers résultats (avant l'établissement de ce protocole) étaient dramatiques : pour deux fluides de même concentration dans les mêmes conditions, une même particule tombait dans l'un jusqu'au fond en quelques secondes et restait suspendue dans l'autre.

I.2.4 Étude du pH

La laponite présente une évolution chimique non reproductible. Une dissolution du CO_2 est souvent invoquée. Pour tester la robustesse de la préparation de nos échantillons, nous avons effectué des mesures de pH de nos suspensions à plusieurs moments : pendant les 10 jours de "mûrissement" de la structure et avant utilisation, puis dans la colonne de sédimentation après utilisation. La mesure du pH n'est cependant pas facile à réaliser : la force ionique est très faible et le fluide est une suspension colloïdale. Il est donc nécessaire de travailler avec une électrode particulière pour cette mesure.

I.2.4.1 Pendant le "mûrissement"

Pendant les 10 jours qui précèdent l'utilisation de la laponite, une étude du pH des suspensions a été réalisée et présentée sur la figure 2.I.3 (le temps 0.00001 jour correspond au pH de la solution avant l'introduction de la laponite). Le pH augmente pendant les premières minutes de mise en suspension puis se stabilise un peu au-dessus de 10 pour les suspensions sous azote. Hors azote, le pH n'est pas beaucoup modifié : il diminue mais reste toujours supérieur à 9 (même après 7 mois). Ceci nous conduit à penser que les variations de pH sont faibles et ne doivent pas être le paramètre principal responsable du "vieillessement chimique" observé et non reproductible de la laponite.

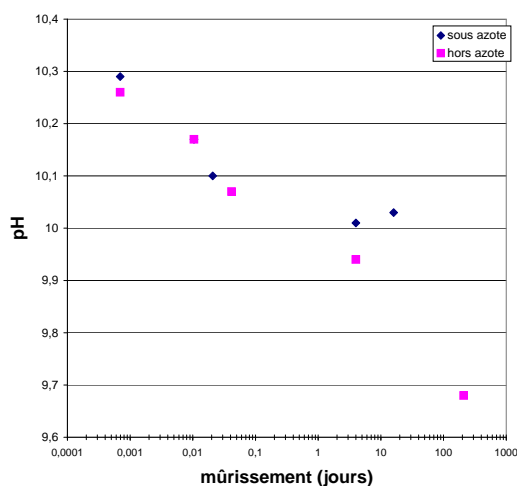


FIG. 2.I.3 – Évolution du pH avec le temps de mûrissement et avec la préparation (échelle logarithmique en temps et linéaire en pH).

I.2.4.2 Après utilisation

Une mesure du pH a été effectuée dans les colonnes de sédimentation après leur utilisation (au moins 12 heures après). Les résultats sont rassemblés dans la figure 2.I.4. Cette figure montre que seule la partie immédiatement sous la surface est concernée par une modification de pH qui reste cependant très faible. Corrélativement, une croûte presque solide se forme en surface.

L'évolution du pH avec le temps est souvent comprise comme un effet du CO_2 dissous faisant diminuer le pH. Le coefficient de diffusion des espèces ioniques de faible poids moléculaire étant de l'ordre de $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, en l'absence de tout mouvement convectif, l'influence du CO_2 dissous à partir de l'interface laponite/air ne modifiera la suspension que sur une hauteur de l'ordre du cm. Par contre, lors de l'agitation, la convection intervient et est beaucoup plus efficace d'où la nécessité de travailler sous azote.

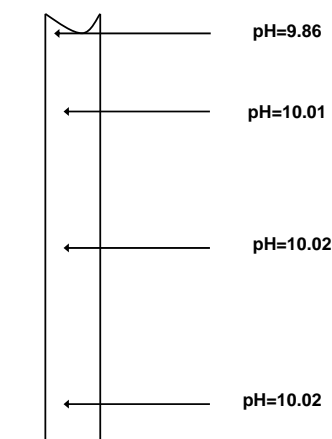


FIG. 2.I.4 – Mesure du pH à différentes hauteurs dans la cellule de sédimentation.

Le pH des solutions reste relativement stable aussi bien dans les suspensions préparées hors et sous azote. Il ne semble pas le bon critère pour déterminer l'état chimique des suspensions qui nous intéressent par la suite.

La physico-chimie de la laponite semble assez bien contrôlée. Le protocole que nous avons mis au point prend en compte les différents éléments à l'origine des problèmes d'irreproductibilité rencontrés avec la laponite. Nous allons maintenant décrire les expériences de rhéologie qui nous ont permis de caractériser ses propriétés macroscopiques.

I.3 Rhéologie

Comme nous l'avons vu dans la partie bibliographique, la rhéologie permet d'une part de caractériser le fluide et d'autre part de comprendre la sédimentation de particules en évaluant des propriétés dans des conditions proches de celles qui interviennent en sédimentation. En particulier, la sédimentation d'une particule sera simulée par l'application d'une contrainte équivalente à la contrainte exercée par la particule (équation (1.3.7) établie dans le chapitre bibliographique). Notons que les caractéristiques des particules utilisées sont présentées dans le chapitre suivant.

I.3.1 Matériel et méthodes

I.3.1.1 Rhéomètres : principe et matériel

Le rhéomètre que nous avons utilisé est un rhéomètre à contrainte de cisaillement imposée (*Stress-Tech* de l'entreprise Reologica) et qui permet une mesure de γ et $\dot{\gamma}$.

I.3.1.2 Géométries

Il est possible d'utiliser diverses géométries permettant de réaliser différents écoulements. Nous avons utilisé principalement la géométrie "**double gap**" (sauf indication) présentée figure 2.I.5. Il s'agit d'un cylindre creux qui cisaille le fluide entre deux parois fixes. Cette géométrie permet de conserver un aspect confiné du matériau (le fluide en surface influence peu la mesure), le précisaillement est possible et la mesure est précise aux faibles viscosités. La faible masse du mobile permet des mesures de relaxation. La quantité de fluide pour remplir l'entrefer est cependant importante (~ 35 mL). Les parois de cette géométrie sont lisses et n'ont pas subi de traitement spécifique. La gamme de mesure de cette géométrie est pour $\dot{\gamma}$ de $1,2 \cdot 10^{-5}$ à 3000 s^{-1} et pour σ de $1,9 \cdot 10^{-3}$ à 190 Pa .

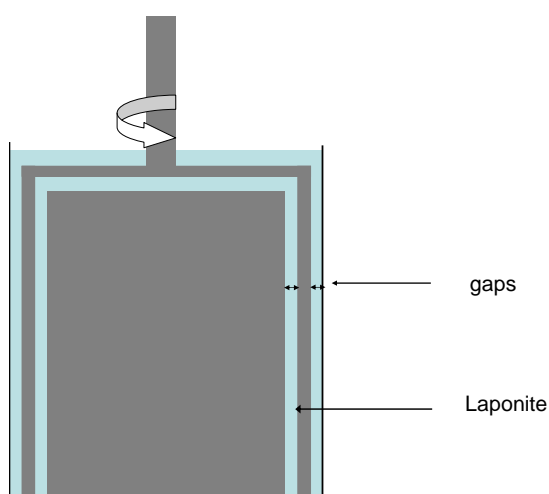


FIG. 2.I.5 – Schéma de la géométrie "double-gap" utilisée.

I.3.1.3 Mesures de rhéologie

Les expériences de rhéologie sont réalisées à l'issue de la préparation de la laponite. Après un précisaillement (réalisé exclusivement à l'agitateur magnétique), le fluide est introduit dans le rhéomètre ($t_w = 0$); l'axe des temps des expériences de rhéologie est représenté sur la figure 2.I.6. Le fluide "vieillit" alors dans le rhéomètre. Après un temps d'attente donné, le rhéomètre sollicite le fluide et les mesures sont réalisées. Pendant les expériences de rhéologie, il y a une compétition entre le rajeunissement dû à la contrainte appliquée sur le fluide et le vieillissement. Dans la suite de ce chapitre pour la plupart des expériences réalisées, nous oublierons la durée de la mesure : le temps de vieillissement du fluide (temps instantané depuis la fin du précisaillement) et le temps d'attente (instant du début de l'expérience) seront confondus.

Nous mettons quelques secondes (de l'ordre de 30 s) pour mettre en place l'échantillon. Pendant la mise en place, le mobile écrase le fluide ; ce dernier est donc sollicité pendant cette opération. Le temps

de vieillissement du fluide est connu à plus ou moins 30 s. Les expériences de rhéologie sont faciles à réaliser mais peuvent être difficile à interpréter : chaque mesure prend un certain temps pour être réalisée, le fluide peut vieillir pendant la sollicitation.

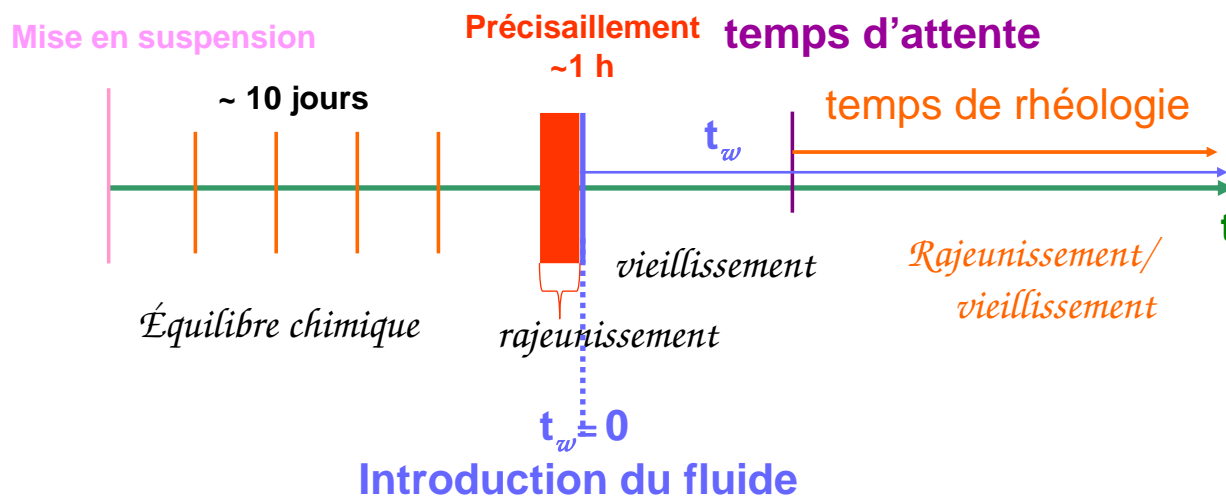


FIG. 2.I.6 – Échelle des temps des expériences de rhéologie par rapport aux temps de la laponite. Le **temps de vieillissement** t_w est le temps depuis l'introduction de la laponite dans le rhéomètre, le **temps d'attente** est le temps de vieillissement du début des expériences de rhéologie. Pendant l'expérience de rhéologie, il y a une compétition **rajeunissement/vieillesissement**.

I.3.1.4 Types d'expériences

Avec l'appareil *StressTech* utilisé en contrainte imposée, différents types d'expériences sont réalisables. La contrainte appliquée (soit une valeur constante soit une valeur variable) peut avoir une variation temporelle contrôlée. Différents protocoles ont été choisis permettant de caractériser la laponite sous différents aspects : son vieillissement, sa contrainte seuil et la réponse instantanée à une sollicitation similaire au passage d'une particule en sédimentation.

Souvent pour caractériser un matériau viscoélastique des expériences en oscillatoire sont réalisées. Elles n'ont pas été choisies comme type d'expérience dans cette étude car elles demandent de se trouver dans un régime linéaire et permanent pour être correctement interprétables et ce type de sollicitation est très éloigné de la sollicitation d'une particule en sédimentation. Nous avons choisi des expériences plus simples qui sont moins caractéristiques des propriétés du fluide mais qui sont plus proches des expériences de sédimentation.

I.3.2 Résultats

Les résultats des expériences de rhéologie sont présentés par type d'expérience réalisée.

I.3.2.1 Rampe de contrainte

Dans ce cas l'expérience consiste à appliquer après un temps d'attente une rampe croissante de contrainte d'une durée déterminée. Cette expérience ne permet pas de connaître "les" propriétés rhéologiques de la laponite (la rampe déstructure légèrement le fluide et modifie l'état physique de la laponite ; de plus la mesure n'est jamais réalisée en régime permanent), mais permet par une expérience assez rapide de connaître des propriétés d'un échantillon (en régime dynamique) pour les comparer facilement à un autre. Sur la figure 2.I.7, est représenté le protocole utilisé pour les expériences de rampe de contrainte et sur la figure 2.I.8, les résultats pour différents temps de vieillissement.

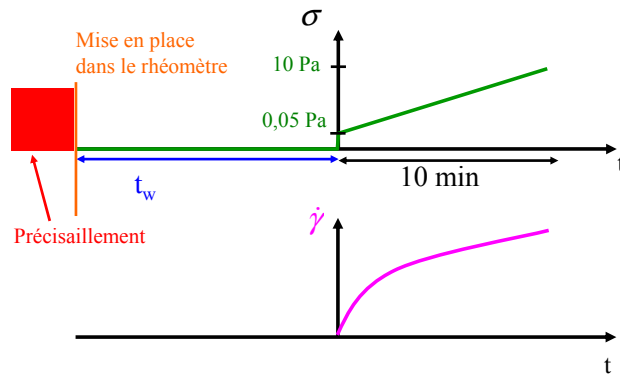


FIG. 2.I.7 – Notations et principe des expériences de rampe de contrainte. En haut, ce que le rhéomètre applique avec les divers paramètres des expériences (le précisaillement est réalisé avec un agitateur magnétique) ; en bas ce qui est mesuré.

Cette expérience simple à réaliser nous a permis d'établir le protocole expérimental de préparation des échantillons de laponite en testant la reproductibilité des échantillons. Par ailleurs, il faut être précautionneux lors de l'analyse de ces mesures : la mesure est en dynamique et la géométrie est lisse. Il n'est pas possible de déterminer un seuil avec ces mesures, l'ajustement des points expérimentaux avec des lois de Herschel-Bulkley ou Bingham est très mauvais. Il semble que, pour tous les temps de vieillissement, la laponite s'écoule contrairement à ces modèles en effet dès la plus faible contrainte appliquée un mouvement se produit ($\dot{\gamma} \neq 0$). Même si les courbes sont reproductibles et cohérentes entre elles, nous ne pouvons cependant pas exclure un artefact aux faibles contraintes (possibilité de glissement sur les parois lisses, d'un cisaillement sur une plus faible épaisseur que le gap...). Il est cependant possible de décrire le rhéogramme du fluide à l'aide d'un plateau newtonien à faible gradient de cisaillement et d'une loi de puissance (équation (1.2.1) du chapitre II de la première partie) à plus fort gradient de cisaillement ($\sigma > 1$ Pa) dont l'indice n et le coefficient m varient avec le temps de vieillissement :

$$\sigma(t_w, \dot{\gamma}) = m(t_w) \dot{\gamma}^{n(t_w)}$$

Cette loi de puissance correspond à un exposant $n = 0,48 \pm 0,03$ à temps court et qui diminue avec le temps de vieillissement ($n = 0,36 \pm 0,02$ à 120 minutes) comme présenté sur la figure 2.I.9. Parallè-

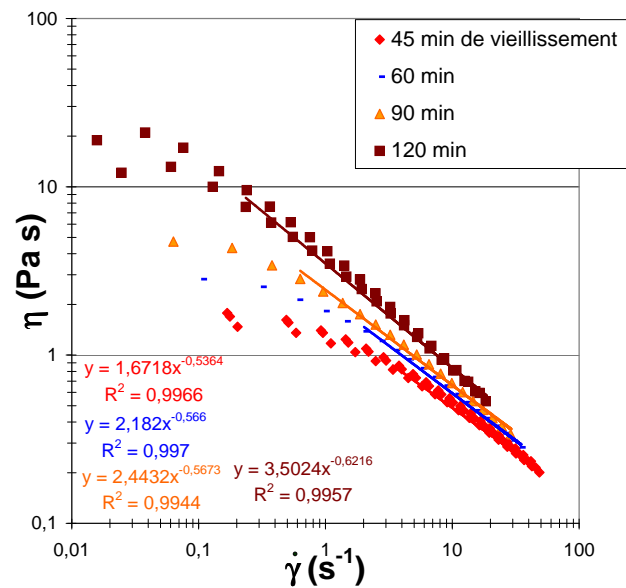


FIG. 2.I.8 – Rhéogramme obtenu à partir d’une rampe de contrainte de 10 min après différents temps de vieillissement (échelles logarithmiques). Les équations correspondent à l’ajustement par une loi de puissance pour les différents temps de vieillissement pour les contraintes supérieures à 1,7 Pa. L’exposant de ces équations correspond à $n - 1$.

lement, le préfacteur $m(t_w)$ augmente comme présenté sur la figure 2.I.10 montrant une augmentation de la viscosité apparente avec t_w . Notons finalement que pour $t_w = 45$ min et 120 min, les résultats obtenus avec des échantillons différents ont été reportés et donnent des résultats comparables. Malgré la dispersion des résultats, le caractère rhéofluidifiant s’accroît avec le temps de vieillissement.

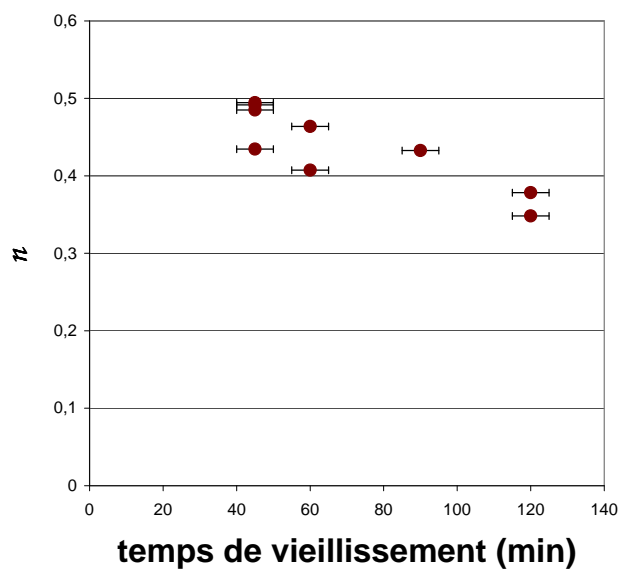


FIG. 2.I.9 – Évolution de l'indice de rhéofluidification avec le temps de vieillissement.

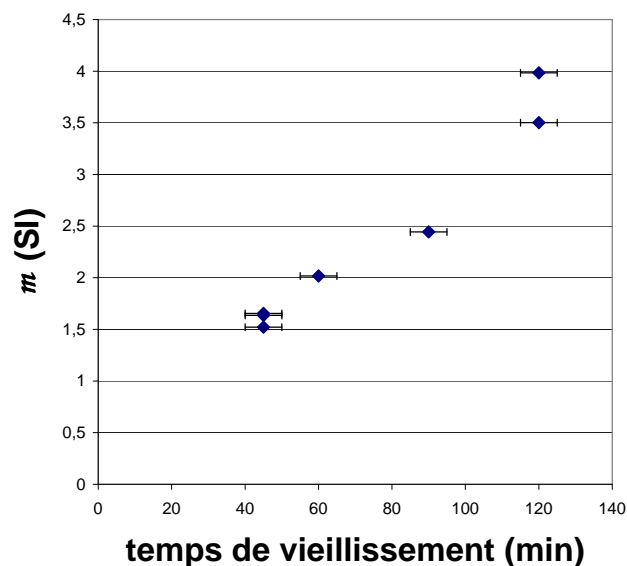


FIG. 2.I.10 – Évolution du coefficient de rhéofluidification avec le temps de vieillissement.

I.3.2.2 Évolution sous contrainte

Il s'agit d'appliquer au fluide une contrainte constante pendant suffisamment longtemps pour observer comment le fluide réagit. La figure 2.I.11 présente le protocole expérimental : le fluide est précisailé à l'agitateur magnétique puis introduit dans la colonne de sédimentation à partir de cet instant le temps de vieillissement est compté ; après un temps de vieillissement déterminé, une contrainte est appliquée sur le fluide et la viscosité est mesurée. La durée des mesures a été faite pendant des temps longs, jusqu'à 4 heures. Pour réaliser une nouvelle expérience, un nouvel échantillon précisailé à l'agitateur magnétique¹ est introduit dans le rhéomètre et subit le même protocole. Nous avons réalisé des expériences en appliquant différentes contraintes et après différents temps de vieillissement. Les figures 2.I.12 à 2.I.14 présentent les résultats obtenus. Les résultats sont qualitativement similaires pour les différents temps de vieillissement étudiés. Nous allons décomposer ce qui se passe pour un temps de vieillissement de 60 min. Pour des contraintes suffisamment faibles (inférieure à 1 Pa), l'évolution temporelle est toujours la même en exponentielle avec un temps caractéristique de l'ordre de 20 minutes (de 17 à 20 min selon les échantillons). Pour des contraintes un plus élevées (entre 1 et 3 Pa), l'évolution est dans le même sens mais avec un temps caractéristique plus élevé. Pour des contraintes plus importantes (entre 4 et 10 Pa), la viscosité diminue dans un premier temps puis augmente. Pour des contraintes encore plus élevées (observé pour 15 Pa) la viscosité diminue et tend vers une valeur constante (ce régime n'a pas toujours été atteint dans la gamme de contraintes étudiées).

Il est donc possible de définir des limites en contrainte entre les différents comportements avec le temps de vieillissement. Définissons une première contrainte qui définit les limites entre une restructuration avec le temps caractéristique de 20 min et un temps plus long. Cette contrainte est comprise entre 0,2 et 1 Pa pour 30 min de vieillissement, entre 1 et 1,4 Pa pour 1 heure de vieillissement, entre 1 et 3 Pa pour 2h30 de vieillissement et entre 4 et 6 Pa pour 4 heures de vieillissement. Cette contrainte augmente avec le temps de vieillissement. Le régime limite peut venir d'un glissement sur le rhéomètre, mais l'évolution temporelle mesurée pour la contrainte reste physique. Il est également possible de définir une autre contrainte limite entre le régime de diminution et d'augmentation de la viscosité dans la phase initiale. Cette contrainte est comprise entre 3 et 4 Pa pour 30 min de vieillissement, entre 3 et 4 Pa pour 1 heure de vieillissement, entre 3 et 4,5 pour 2h30 de vieillissement et entre 6 et 8 Pa pour 4 heures de vieillissement. Cette seconde contrainte semble augmenter avec le temps de vieillissement mais cette variation n'est pas importante pour des temps de vieillissement faibles. Notons que ces contraintes sont plus faibles que les contraintes seuil mesurées dans la laponite (6 Pa après 41 min de repos [14] et entre 16 et 95 Pa [16]).

¹avec le rhéomètre *StressTech*, il n'est pas possible d'enchaîner des expériences de ce type

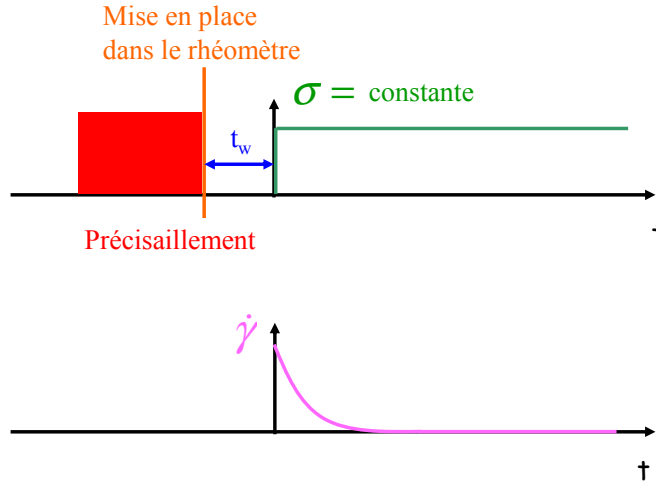


FIG. 2.I.11 – Principe des expériences d'évolution sous contrainte. En haut, ce que le rhéomètre applique avec les divers paramètres des expériences ; en bas ce qui est mesuré.

I.3.2.3 Modèle de description de la rhéologie de la laponite

Dans le chapitre bibliographique sur la rhéologie nous avons défini des modèles permettant de décrire la rhéologie de fluides thixotropes à seuil. Nous décrivons la laponite à travers un paramètre de structure λ qui renseigne sur l'état du fluide. Une équation différentielle permet de caractériser l'évolution temporelle du système. Celle-ci comporte deux termes, un terme de déstructuration qui dépend du gradient de cisaillement et un terme de structuration. Nous avons repéré que si la contrainte est suffisamment faible, le système évolue en exponentielle décroissante. Pour obtenir cette description, il faut ajouter au modèle utilisé par T. Ferroir *et al.* [17] présenté dans les équation (2.1.1) et (2.1.2) un terme de structuration en λ dans l'équation différentielle.

$$\frac{d\lambda}{dt} = -k_1 \dot{\gamma} \lambda + k_2 \quad (2.1.1)$$

$$\eta = \eta_0 (1 + \lambda^n) \quad (2.1.2)$$

Ce qui nous donne l'équation (2.1.3).

$$\frac{d\lambda}{dt} = -k_1 \dot{\gamma} \lambda + k_2 (1 + \lambda) \quad (2.1.3)$$

Nous avons choisi la même relation entre la viscosité et le paramètre de structure (2.1.2). Nous avons réalisé nos expériences à contrainte imposée, il faut donc modifier l'équation (2.1.3) en (2.1.4).

$$\frac{d\lambda}{dt} = \frac{-k_1 \lambda \sigma}{\eta_0 (1 + \lambda^n)} + k_2 (1 + \lambda) \quad (2.1.4)$$

Pour comprendre l'évolution temporelle de la viscosité en fonction du temps de l'expérience, nous avons réalisé des résolutions numériques (avec le logiciel *Maple*) de l'équation (2.1.5) (n a été choisi égal à 1,44 pour fitter les résultats à temps long, la constante C correspond à $\frac{k_1 \sigma}{\eta_0}$, $k_2=1$ ce qui revient à

Évolution sous contrainte

Évolution de la viscosité pendant l'application d'une contrainte constante. Échelle logarithmique en viscosité, linéaire en temps.

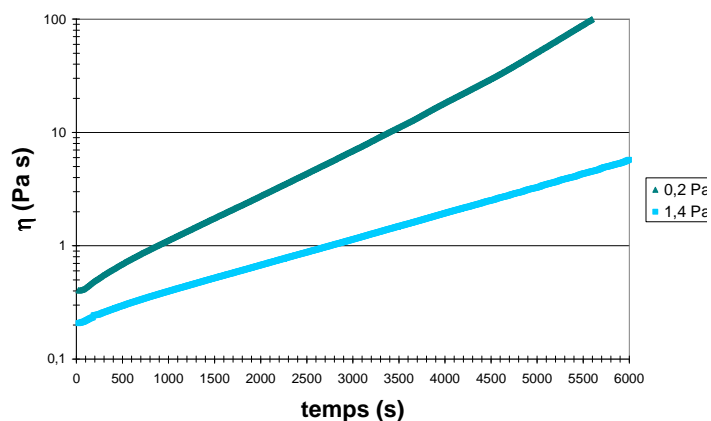


FIG. 2.I.12 – Sans vieillissement.

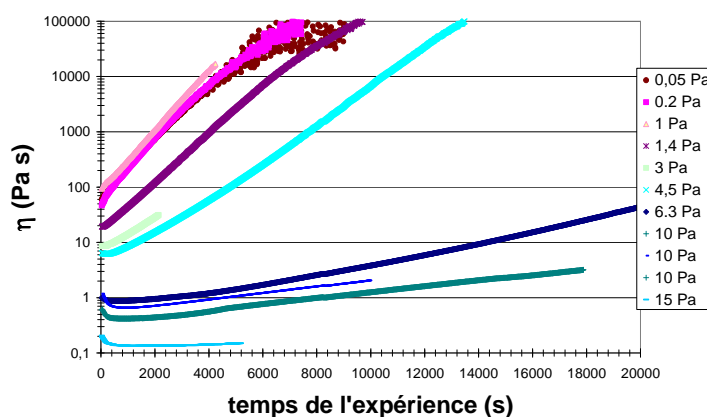


FIG. 2.I.13 – Après 60 min de vieillissement.

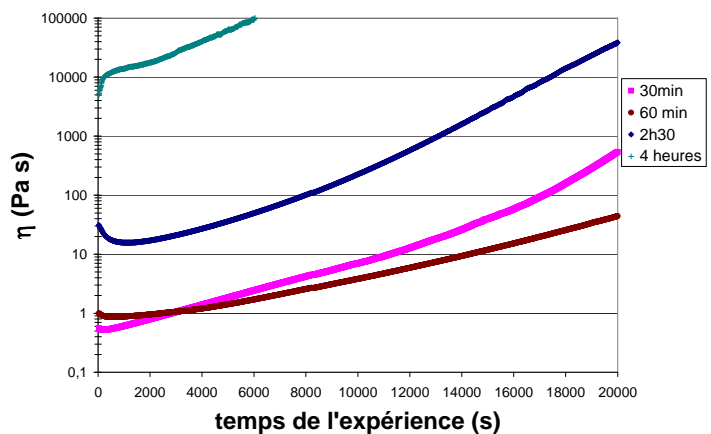


FIG. 2.I.14 – Pendant l'application d'une contrainte de 6,3 Pa après différents temps de vieillissement.

Évolution sous contrainte

Évolution de la viscosité normée par la viscosité à temps nul pendant l'application d'une contrainte constante. Échelles logarithmiques.

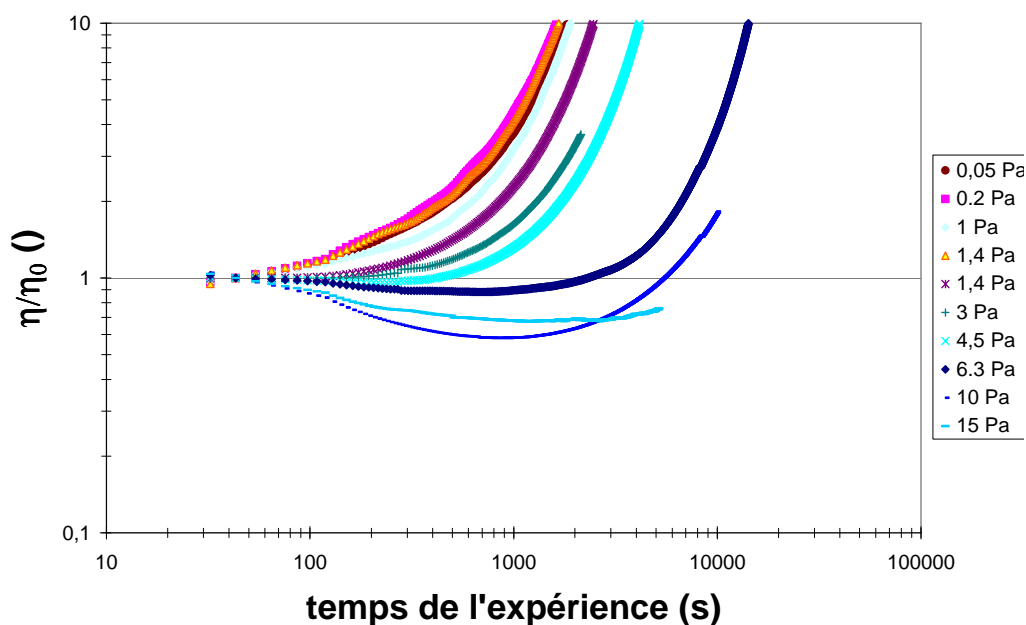


FIG. 2.I.15 – Après 60 min de vieillissement.

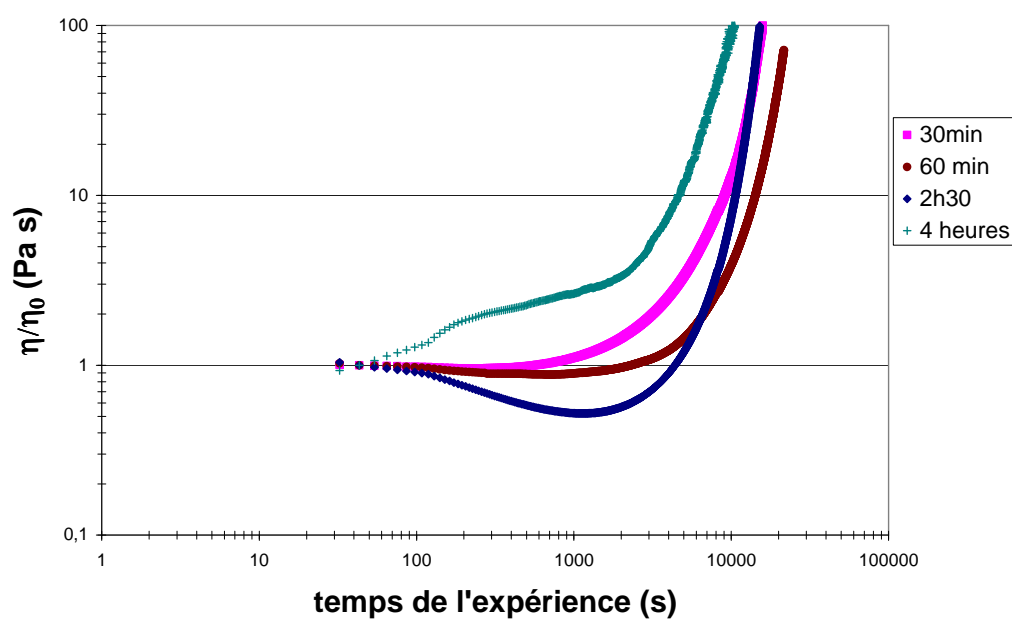


FIG. 2.I.16 – Pendant l'application d'une contrainte de 6,3 Pa après différents temps de vieillissement.

"normer" le temps) à partir de diverses valeurs de $\lambda(0)$ présentée figure 2.I.17. Cette simulation permet de décrire la viscosité pour une contrainte appliquée constante après différents temps de vieillissement. D'autres résolutions numériques ont été réalisées en faisant varier la constante C pour un même état de structuration initial présenté figure 2.I.18. Cette simulation permet de décrire l'évolution de la viscosité en fonction du temps pour différentes contraintes après un temps de vieillissement déterminé.

$$\frac{d\lambda}{dt} = \frac{-C\lambda}{1 + \lambda^n} + (1 + \lambda) \quad (2.1.5)$$

Les figures 2.I.17 et 2.I.18 montrent que le comportement observé sur les figures 2.I.15 et 2.I.16 est globalement bien décrit par ce type d'équation. Pour des contraintes faibles ($C = 0,1$ et $0,01$), la viscosité augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement. Pour des contraintes intermédiaires (de $C = 1$ à $3,9$), la constante de temps est plus importante et le comportement est dans le même sens. Pour des contraintes importantes (de $C = 5$ à 20), le comportement tend vers un rajeunissement qui donne une viscosité constante. Cependant, le rajeunissement initial avant un vieillissement définitif ne peut pas être décrit par ce type de modèle ce qui avait déjà été repéré par P. Coussot *et al.* pour la bentonite [30]. Notons que ce modèle ne permet pas de décrire la viscoélasticité du fluide mesurée dans le paragraphe suivant.

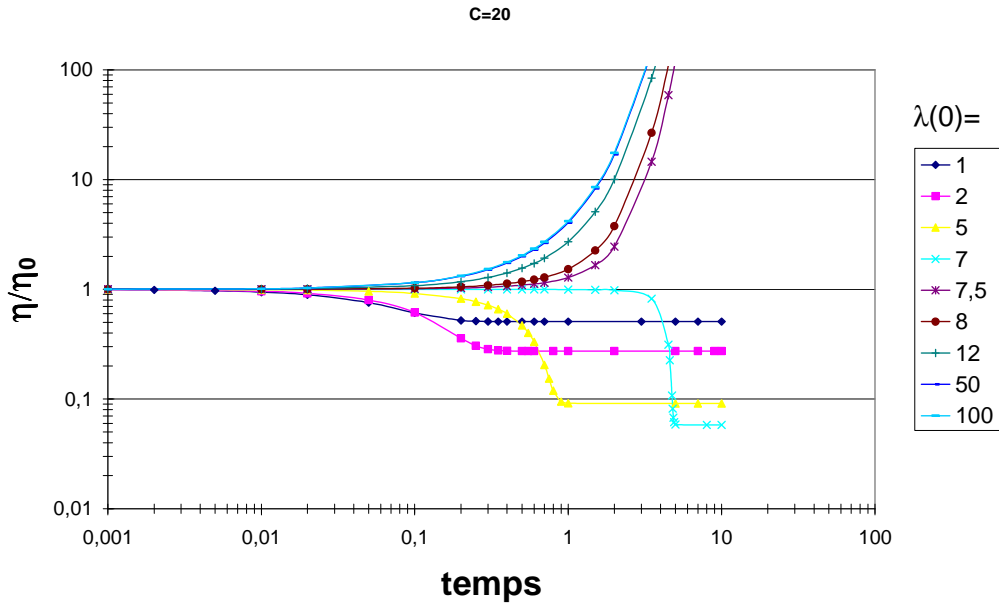


FIG. 2.I.17 – Résultat de la résolution numérique de l'équation (2.1.5) avec (2.1.2) pour $C = 20$ et différentes valeurs de $\lambda(0)$: Évolution de la viscosité normée par la viscosité à temps nul pendant l'application d'une contrainte constante. Échelles logarithmiques.

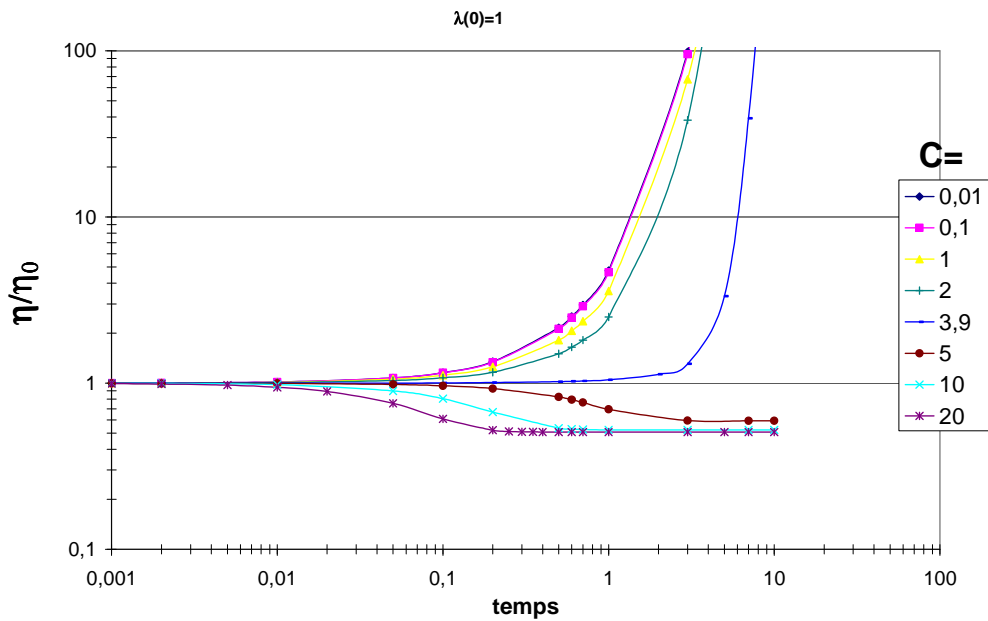


FIG. 2.I.18 – Résultat de la résolution numérique de l'équation (2.1.5) avec (2.1.2) pour $\lambda(0) = 1$ et différentes valeurs de C . Évolution de la viscosité normée par la viscosité à temps nul pendant l'application d'une contrainte constante pour différentes contraintes et un seul temps de vieillissement. Échelles logarithmiques.

1.3.2.4 Fluage

Cette expérience consiste à appliquer un créneau de contrainte après un temps de vieillissement déterminé (t_w) et à mesurer la déformation du fluide (γ) pendant le créneau et l'arrêt du mobile comme présenté sur la figure 2.I.19. Nous avons fait varier divers paramètres lors de cette expérience : le temps de vieillissement (t_w), la durée du créneau (Δt) et la contrainte appliquée pendant le créneau ($\sigma_{\text{créneau}}$). Nous avons maintenu la durée d'observation de la relaxation (t_{relax}) à 30 min pour toutes les expériences. Le temps de vieillissement est choisi dans la même gamme que dans les expériences de sédimentation (typiquement de 30 min à 3 heures). Le temps de créneau (Δt) qui semble le plus adapté *a priori* pour comparer aux résultats de sédimentation est le temps de Stokes généralisé c'est-à-dire le temps que met une particule pour se déplacer de son diamètre. Il dépend à la fois du temps de vieillissement et du type de particule comme détaillé dans le chapitre suivant. Le temps de Stokes prend ainsi des valeurs sur une gamme très étendue (de 0,5 s à 10 min). L'inertie de l'appareil ne permet pas de sonder les temps trop courts ($< 1,5$ s). Les résultats ne correspondent pas aux expériences de sédimentation, nous ne les présenterons pas. Dans les expériences que nous présenterons ici, le temps de créneau a été choisi assez court (10 s) pour comparer les expériences dans un régime rapide. La contrainte appliquée pendant le créneau correspond à la contrainte exercée par les trois particules utilisées en sédimentation estimée à l'aide de l'équation (1.3.7) (soit 1,39 Pa pour l'aluminium, 4,5 Pa pour l'acier et 6,3 Pa pour le laiton).

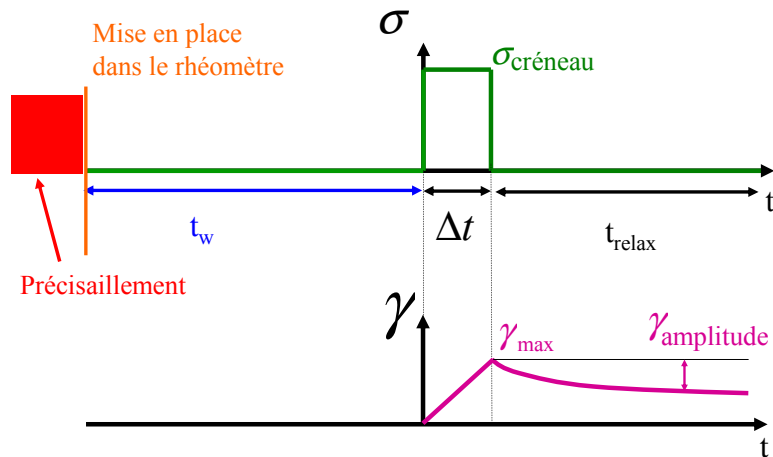


FIG. 2.I.19 – Notations et principe des expériences de fluage. En haut, ce que le rhéomètre applique avec les divers paramètres des expériences ; en bas ce qui est mesuré avec les notations utilisées pour le traitement des données.

Pendant le créneau : La contrainte appliquée pendant le créneau est constante. Le fluide évolue comme dans le cas de l'application de la contrainte constante décrite précédemment. L'évolution du

fluide pendant l'application de ce créneau est donc différente selon le temps de vieillissement comme nous pouvons le voir sur la figure 2.I.20. Nous pouvons observer sur ce schéma qu'à temps de vieillissement court (30 et 45 min) la réponse est immédiate, le gradient de cisaillement reste constant pendant toute la mesure. A temps de vieillissement plus long, la réponse à cet échelon met plusieurs secondes avant de se stabiliser à une valeur. Cette réponse rapide est différente de la réponse thixotrope mesurée précédemment, les temps mis en jeux ici étant beaucoup plus courts.

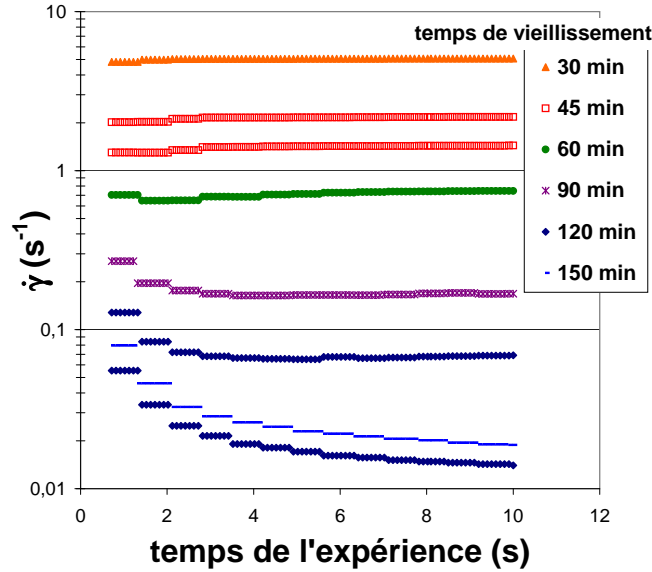


FIG. 2.I.20 – Évolution du gradient de cisaillement lors du fluage pendant l'application d'un créneau de contrainte ($\sigma_{creneau} = 4,25$ Pa) pendant 10 s après différents temps de vieillissement. Les courbes de même couleur présentent des répétitions des mêmes expériences.

Pendant la relaxation : Nous avons caractérisé l'évolution temporelle et l'amplitude de la relaxation après l'arrêt de l'application de la contrainte. Nous avons tout d'abord estimé l'inertie du montage puis nous avons caractérisé la relaxation du fluide pour différentes conditions expérimentales.

Pour connaître l'inertie de notre système, nous avons testé notre montage avec un fluide newtonien : elle est de $\Delta\gamma \sim 10^{-5}$ avec du glycérol.

Dans le cas de la laponite, nous avons observé des résultats très différents : le rotor revient en arrière pendant la relaxation avec un autre ordre de grandeur $\Delta\gamma \sim 0,5$ (sauf aux temps très courts pour une contrainte correspondant aux particules de laiton où l'inertie n'est plus compensée : le rotor

continue tout d'abord sa course puis revient en arrière). Les courbes de relaxation obtenues sont très bien caractérisées par une exponentielle étirée décrite par l'équation (2.1.6). Nous avons ainsi pour chaque expérience réalisé un ajustement avec une exponentielle étirée (fit avec le solveur d'*Excel*). Le temps physique de cette description n'est pas le paramètre τ_{exp} , mais le t_{moyen} défini dans l'équation 2.1.7².

$$\gamma(t) = \gamma_{max} - \gamma_{amplitude} \left(1 - \exp \left(- \left(\frac{t}{\tau_{exp}} \right)^\beta \right) \right) \quad (2.1.6)$$

$$t_{moyen} = \frac{\tau_{exp}}{\beta} \Gamma \left(\frac{1}{\beta} \right) \quad (2.1.7)$$

$$\gamma_{norm} = \frac{\gamma_{amplitude}}{\gamma_{max}} \quad (2.1.8)$$

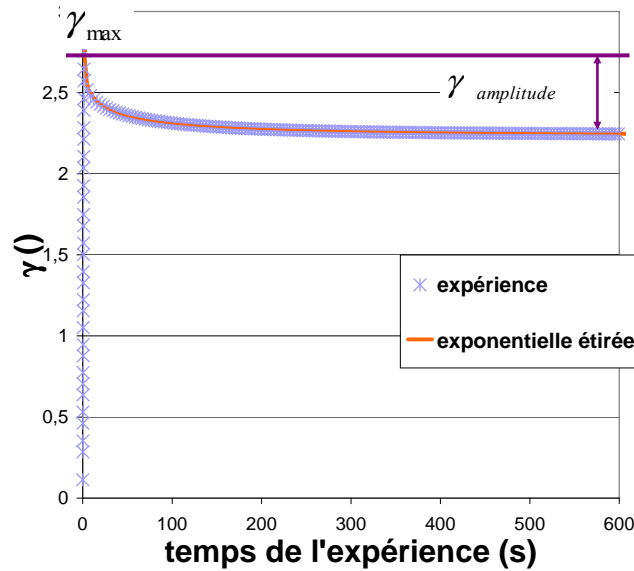


FIG. 2.I.21 – Courbe expérimentale typique de relaxation pour un Δt de 1,5 s et résultats issus de l'ajustement par l'expression (2.1.6). ($\sigma_{creneau} = 4,25$ Pa et $t_w = 60$ min)

Nous avons appliqué un **créneau de contrainte correspondant à la contrainte exercée par la particule pendant 10 s** (pour chaque type de particule). Nous avons analysé les courbes correspondantes pour déterminer les différents paramètres aux différents temps de vieillissement. La courbe présentant l'amplitude de la déformation normée par l'amplitude maximale est présentée figure 2.I.22, le temps moyen de relaxation est présenté figure 2.I.23³. Nous pouvons remarquer que l'élasticité aug-

² Γ correspond à la fonction définie par $\Gamma(x+1) = x\Gamma(x)$ et $\Gamma(1) = 1$

³Notons qu'à une contrainte équivalente à celle exercée par les particules de laiton, les temps de vieillissement courts (<45 min) ne sont pas accessibles, l'inertie du système n'est pas négligeable par rapport à l'élasticité du système.

mente avec le temps de vieillissement pour atteindre presque 1 qui est la valeur maximale possible (le rotor retourne à sa position initiale). La réponse est alors presque purement élastique. Pour décrire toute l'évolution de cette déformation, nous avons "étiré" la déformation normée c'est-à-dire que nous avons représenté $(1 - \gamma_{norm})/\gamma_{norm}$ qui varie de 0 à ∞ alors que γ_{norm} varie seulement de 0 à 1. Nous remarquons sur ces courbes que la déformation normée "étirée" diminue avec le temps de vieillissement en exponentielle décroissante. Ce qui signifie que plus le temps de vieillissement est important plus l'amplitude de la réponse élastique est importante. Le temps caractéristique de cette évolution vaut 21 min pour le lait, 15 min pour l'acier et 10 min pour l'aluminium.

Le temps moyen de viscoélasticité, représenté figure 2.I.23, a une variation avec le temps de vieillissement assez dispersée ; mais il est globalement constant. On s'attendait cependant plutôt à une augmentation de ce temps (selon les résultats de diffusion de la lumière). Ce temps moyen est de l'ordre de 40 s pour l'aluminium et de l'ordre de 100 s pour l'acier et le lait.

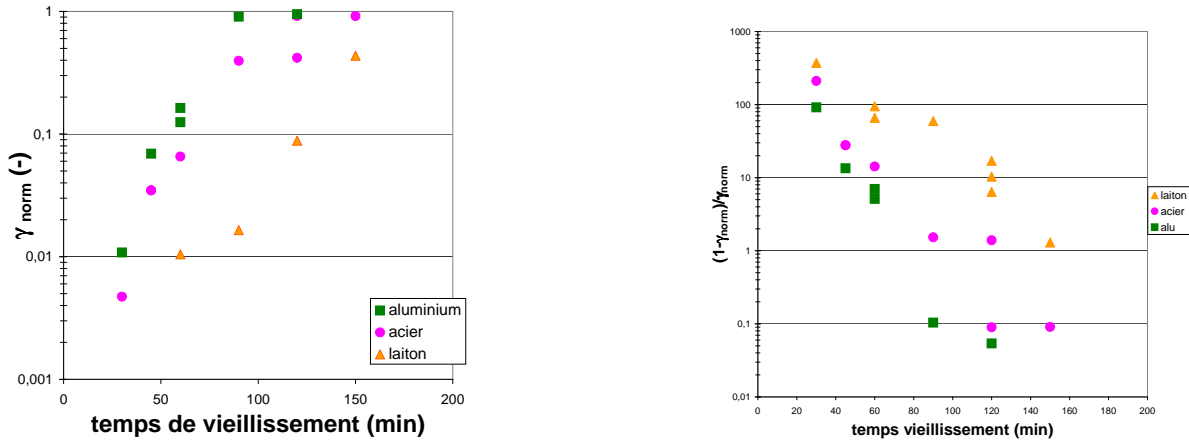


FIG. 2.I.22 – Amplitude de la relaxation (issu de l'ajustement des données de rhéologie) normée par l'amplitude maximale à gauche et "étirée" pour varier entre 0 et ∞ soit $\frac{1 - \gamma_{norm}}{\gamma_{norm}}$ à droite en fonction du temps de vieillissement. La durée du créneau de contrainte est de 10 s, l'amplitude correspond à la contrainte exercée par la particule.

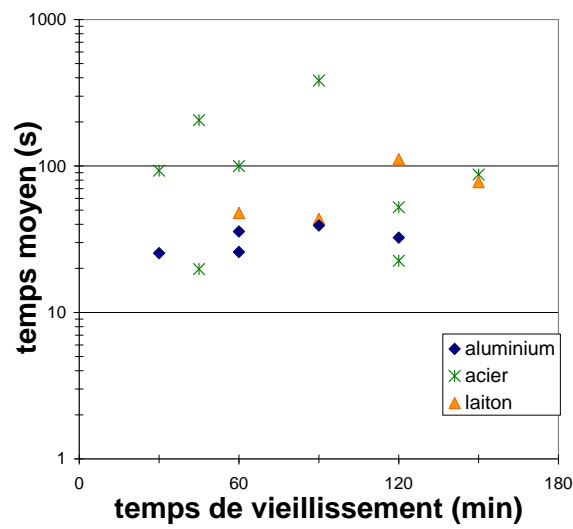


FIG. 2.I.23 – Temps moyen de relaxation estimé à partir de l'ajustement des données de rhéologie à l'aide de la relation (2.1.7) en fonction du temps de vieillissement. La durée du créneau de contrainte est de 10 s, l'amplitude correspond à la contrainte exercée par la particule.

I.3.3 Mesures de viscosité élongationnelle

Nous avons dans la partie bibliographique signalé que les mesures de viscosité élongationnelle sont difficiles à réaliser puisque les mesures sont rarement en régime permanent complètement établi. Une première mesure qualitative de la viscosité élongationnelle peut se faire manuellement (avec des gants) en étirant un filament entre deux doigts. Le filament est peu résistant par rapport à des solutions polymères dans le cas de la laponite ce qui semble indiquer une viscosité élongationnelle assez faible. Des mesures "quantitative" de viscosité élongationnelle ont également été réalisées dans un laboratoire de *Thermo Electron* sur un rhéomètre commercial nommé *CABER* (Capillary Breakup Extensional Rheometer) qui fonctionne selon le principe présenté dans le chapitre bibliographique dans la rubrique II.3. Il s'agit d'étirer un filament entre deux disques et de mesurer l'évolution de la taille du rayon central en fonction du temps. Nous avons réalisé cette mesure avec un fluide newtonien, une solution polymère rhéofluidifiante (POE) et la laponite. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2.I.24 pour ces différents fluides et la laponite à 10 et 30 min de vieillissement (les temps plus longs ne sont pas accessibles car le filament liquide casse avant le début de la mesure). Le rayon pour le cas de la laponite évolue avec le temps de manière inhabituelle (cas newtonien : évolution linéaire, cas rhéofluidifiant : évolution en exponentielle). Nous pouvons calculer la viscosité élongationnelle transitoire ($\bar{\eta} = \frac{\gamma_{LV}}{2 \frac{dR_{mid}}{dt}}$) en fonction du taux d'élongation $\dot{\epsilon} = \frac{-2}{R_{mid}} \frac{dR_{mid}}{dt}$ présenté figure 2.I.24 (nous avons pour cela estimé la tension de surface des différents fluides à celle de l'eau en présence d'additifs soit 60 mN/m). Nous pouvons repérer une évolution importante avec le taux d'élongation mais cette évolution sur plusieurs ordres de grandeur correspond à une évolution en $100/\dot{\epsilon}$ (courbe rouge) ce qui signifie que dans cette gamme la contrainte est constante. Seul un plateau de viscosité semble caractéristique, il est observé à fort gradient et indiqué par les flèches noires. Nous pensons que seul le plateau correspond à une mesure de viscosité élongationnelle comme dans le cas newtonien présenté. Ceci nous donne une viscosité élongationnelle estimée à 6 Pa s pour 10 min de vieillissement et 2 Pa s pour 30 min de vieillissement. Il est possible d'estimer la viscosité élongationnelle comme dans le cas newtonien à partir du plateau de viscosité de cisaillement $\bar{\eta} = 3\eta_0$. On obtient alors à 10 min de vieillissement 5 Pa s et à 30 min de vieillissement 30 Pa s. À temps court, on a donc $\bar{\eta} = 3\eta_0$, à temps long cette relation n'est pas vérifiée. Il y a plusieurs raisons possibles : soit elle diminue avec le temps de vieillissement, soit la mesure de viscosité élongationnelle n'est pas fiable à cause d'un écoulement permanent mal établi ou d'un séchage pendant le vieillissement. Nous ne connaissons pas de mesure de viscosité élongationnelle de suspensions colloïdales dans la littérature.

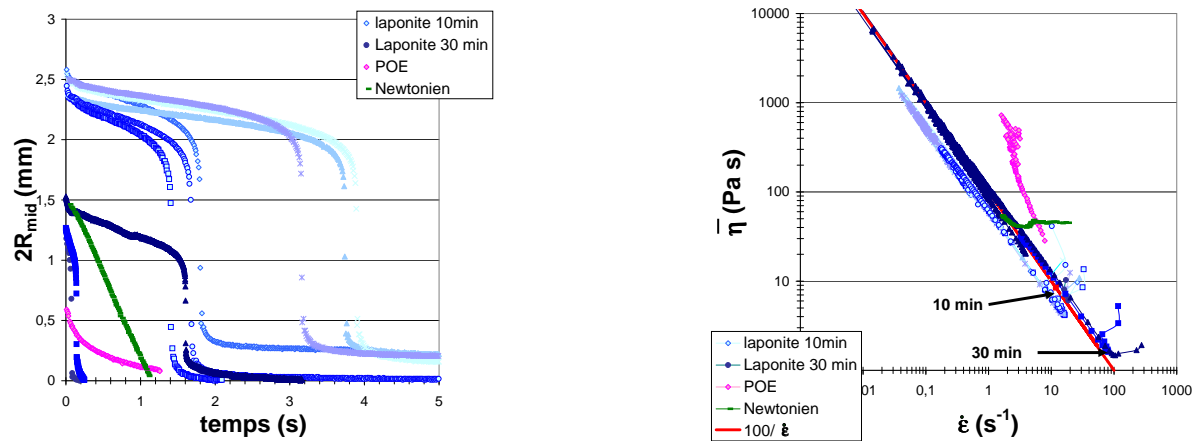


FIG. 2.I.24 – Évolution du diamètre du filament avec le temps après l'étirement pour différents fluides à gauche. Évolution de la viscosité élongationnelle transitoire avec le taux d'élongation pour les différents fluides à droite. Les points bleu clair correspondent à la laponite après 10 min de repos, les points bleu foncé après 30 min de repos

I.3.4 Conclusion

Nous avons analysé la laponite sous plusieurs aspects afin de la caractériser. Nous avons déterminé les paramètres physico-chimiques à contrôler pour obtenir des échantillons reproductibles et qui nous ont permis d'établir des conditions d'utilisation bien spécifiées. À partir des expériences réalisées, nous pouvons conclure sur différents aspects de la rhéologie de la laponite. La laponite est un fluide présentant une forte thixotropie. Nous avons caractérisé un comportement limite où le système évolue sous contrainte avec un temps caractéristique de l'ordre de 20 min. Pour une contrainte appliquée plus importante, la viscosité augmente mais avec un temps caractéristique plus long. Aux contraintes encore plus élevées, la viscosité diminue et tend vers une constante. Il est alors possible de définir des limites en contrainte entre ces différents régimes d'écoulement. Ces contraintes augmentent avec le temps de vieillissement. Nous avons observé un comportement rhéofluidifiant, pour des contraintes appliquées suffisamment élevées, décrit par une loi de puissance avec des paramètres qui évoluent avec le temps de vieillissement. Finalement, nous avons caractérisé la réponse à un créneau de contrainte et la réponse **viscoélastique** correspondante. Ces résultats sont concordants avec ceux trouvés dans la littérature sur la laponite présence d'un seuil dans la laponite [16], évolution de la viscosité en exponentielle [11] et évolution avec le gradient de cisaillement en loi de puissance [11, 13]. L'évolution de la viscosité sous contrainte correspond à des résultats trouvés dans la bentonite [30]. Pour décrire le comportement du fluide nous avons modifié un modèle de thixotropie de la littérature afin de rendre compte des expériences réalisées. La viscosité élongationnelle est difficile à caractériser. Elle est pour les temps courts étudiés de l'ordre de grandeur de la viscosité de cisaillement. La propriété principale de la laponite est le caractère **thixotrope** : la plupart des paramètres caractéristiques de la laponite dépendent du temps de vieillissement du fluide.

Troisième partie

Étude de la sédimentation d'une particule isolée

Chapitre I

Vitesse de sédimentation d'une particule isolée dans la laponite

Ce chapitre est consacré à l'étude de la vitesse de sédimentation d'une particule isolée dans une suspension de laponite. Nous décrirons tout d'abord les expériences de sédimentation, puis nous présenterons les résultats de vitesse de sédimentation ainsi qu'une loi phénoménologique qui nous permet de décrire le comportement observé. Nous présenterons dans ce chapitre des résultats de mesures de vitesse de particules effectuées soit lors d'expériences de PIV (décrites dans le chapitre "Écoulement autour d'une particule en sédimentation") soit lors d'expériences de biréfringence (décrites dans le chapitre "Étude de la sédimentation d'une particule isolée par biréfringence").

Sommaire

I.1	Matériel et montage	98
I.1.1	Particules macroscopiques utilisées	98
I.1.2	Cellule de sédimentation	98
I.1.3	Montage et expérience	99
I.1.4	Notations	101
I.2	Résultats	102
I.2.1	Vitesse de sédimentation	102
I.2.2	Modèle de description de la sédimentation	102
I.2.3	Comparaison à la rhéologie	106
I.2.3.1	Temps caractéristique de vieillissement	106
I.2.3.2	Variation de la vitesse avec le type de particule	107
I.2.3.3	Comparaison avec les résultats de créneau de contrainte	107
I.2.4	Longueur d'arrêt	109
I.2.5	Comparaison aux autres résultats de la littérature	110
I.3	Conclusion	114

I.1 Matériel et montage

I.1.1 Particules macroscopiques utilisées

Différents types de particules ont été utilisés. Le tableau 3.I.1 présente les différentes particules et leurs caractéristiques. Pour chaque particule la contrainte exercée par la particule sur le fluide ($\sigma_{particule}$) a été calculée à l'aide de la formule (1.3.7) établie dans le chapitre d'analyse bibliographique.

Les particules métalliques utilisées sont des billes de roulement à bille, donc de très bonne sphéricité et avec un diamètre très bien calibré. Les particules sont de trois sortes comme présentées dans le tableau 3.I.1. Les quelques expériences faites avec des particules d'une autre nature (zirblast) ne sont présentées ici qu'à titre d'illustration.

L'état de surface des particules a été étudié avec un microscope électronique à balayage. Les surfaces des particules sont lisses avec des cavités de taille ne dépassant pas $10 \mu\text{m}$ comme présenté sur la figure 3.I.1 pour la particule d'acier.

Les différents résultats seront donnés en "nature" de particule (aluminium, acier ou laiton). La "nature" de la particule n'influence pas la sédimentation, c'est seulement par commodité pour présenter les résultats, chaque type de particule ayant une masse volumique et/ou un diamètre différent.

TAB. 3.I.1 – Caractéristiques des différentes particules utilisées.

matière	diamètre	masse volumique	$\sigma_{particule}$
aluminium	1,5 mm	2,7 g/cm ³	1,4 Pa
acier	1 mm	8,8 g/cm ³	4,5 Pa
laiton	1,5 mm	8,7 g/cm ³	6,3 Pa
zirblast	700 μm	3,76 g/cm ³	1,1

I.1.2 Cellule de sédimentation

Les cellules de sédimentation utilisées sont parallélépipédiques en plexiglas ou en verre. Les dimensions typiques d'une cellule correspondent à la figure (3.I.2). Les cellules ont été choisies de telle sorte que le rapport de la demi-épaisseur des cellules (1,2 cm) et du rayon des particules soit supérieur à 10 pour négliger de manière raisonnable l'effet des parois sur la sédimentation des particules (rapport de 16 pour les particules d'aluminium et de laiton et 24 pour les particules d'acier). L'observation se fait dans un plan parallèle au grand côté de la cellule. Un bouchon spécifique en plexiglas a été réalisé dans lequel repose une plaque en téflon percée de trous centrés pour introduire les particules exactement

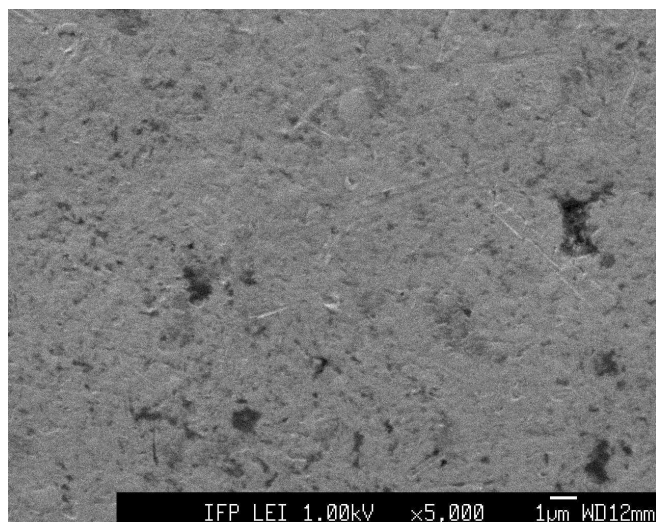


FIG. 3.I.1 – État de surface d'une particule d'acier au microscope électronique à balayage (vue x 5000).

dans le plan médian de la cellule, sur des positions latérales bien déterminées comme le montre la figure 3.I.3. L'écart entre deux positions latérales est de 1,5 cm qui est une distance suffisante : rapport d'au moins 10 entre cet écart et le rayon des particules.

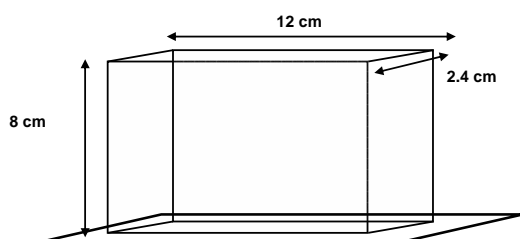


FIG. 3.I.2 – Schéma des cellules parallélépipédiques.

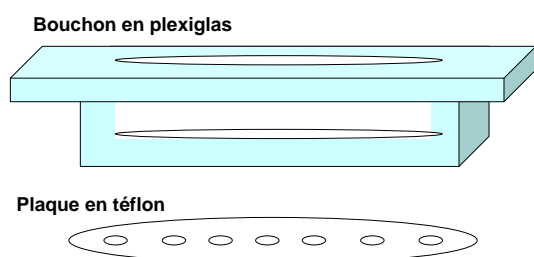


FIG. 3.I.3 – Schéma du bouchon en plexiglas. La plaque en téflon est percée de trous sphériques de 1,6 mm.

I.1.3 Montage et expérience

Le schéma de principe des expériences est présenté sur la figure 3.I.4. Le montage des expériences de champ de vitesse (PIV) est décrit en détail dans le chapitre qui est consacré à cette étude, de même que les expériences de biréfringence : le principe du montage est présenté sur la figure 3.I.4. L'axe des temps décrivant les étapes expérimentales, de la préparation de la laponite jusqu'à son utilisation en sédimentation, est présenté sur la figure 3.I.5.

La verticalité d'une ligne de pixels sur la caméra est réalisée avec un fil à plomb (la caméra est sur un support dont l'horizontale est réglable). La verticalité de la cellule de sédimentation est réglée avec la caméra et le support de la cellule réglable en trois points.

Une horloge qui affiche sur le film le temps de vieillissement de la laponite (notée **TIMER** sur la figure) est mise en route dès l'introduction du fluide dans la colonne de sédimentation (temps correspondant à $t_w=0$ sur la figure 2.I.2). Au bout d'un temps d'attente déterminé noté t_L , une particule est introduite dans le fluide à l'aide d'une pince : les particules initialement présentes dans le bouchon et mouillées par le fluide sont poussées horizontalement dans un trou de la plaque en téflon (cf. figure 3.I.3). La particule est éclairée de différentes manières selon les expériences réalisées. Un film de chaque expérience est réalisé avec la caméra pendant le temps de chute de la particule (noté t_{exp}). L'acquisition est pilotée par le logiciel *Image Pro Plus*. L'analyse des films est ensuite réalisée à l'aide du logiciel *Image Pro Plus* également qui permet de suivre la position d'une particule au cours du temps de vieillissement (t_w mesuré à l'aide du timer).

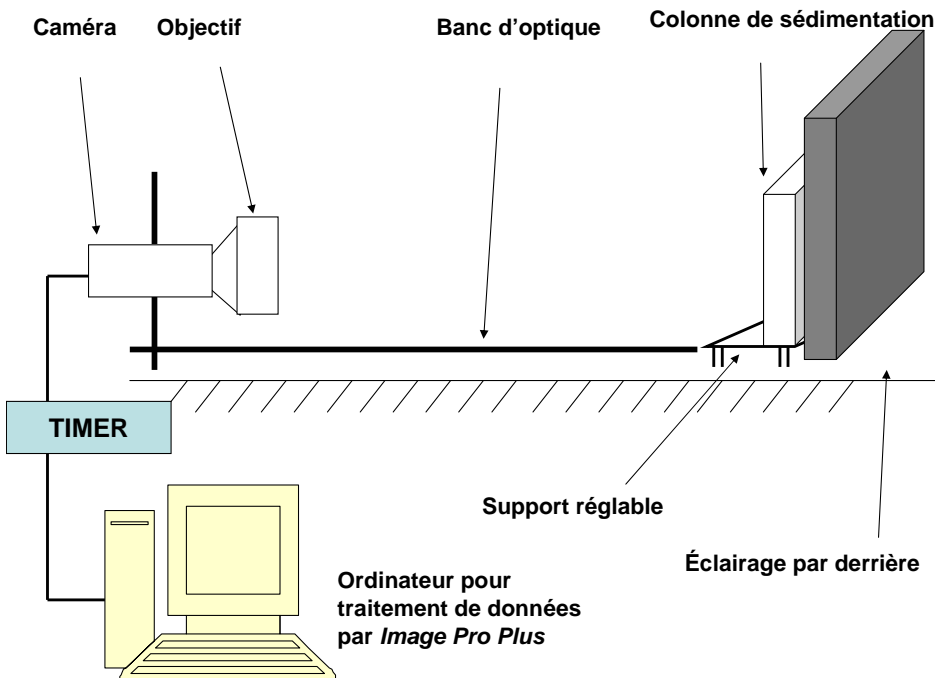


FIG. 3.I.4 – Schéma du montage de sédimentation.

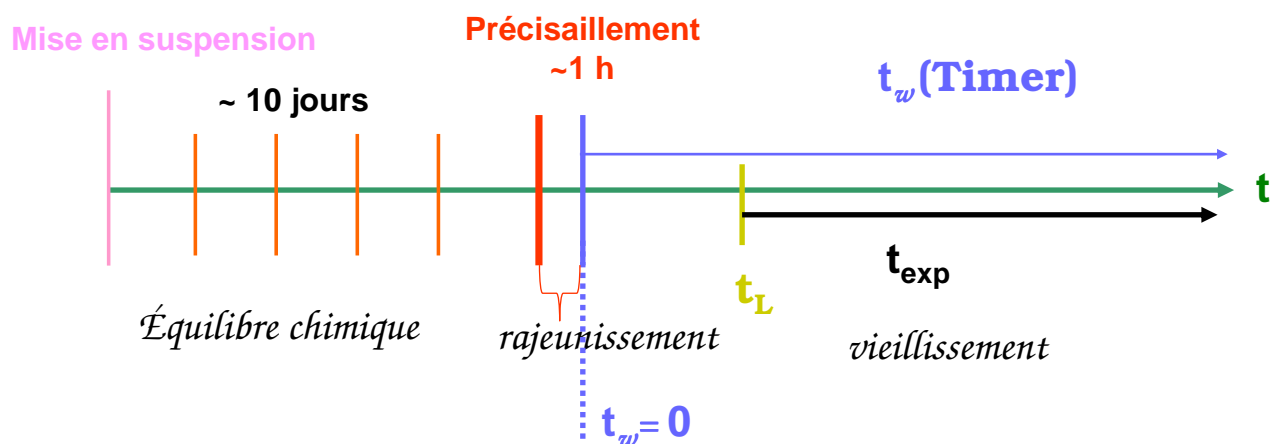


FIG. 3.I.5 – Échelle des temps de sédimentation par rapport aux temps de la laponite. Le temps de vieillissement t_w correspond au temps affiché sur le timer, le temps de lâcher t_L correspond au temps d'attente avant le lâcher des particules, le temps de sédimentation t_{exp} est le temps de l'expérience pendant lequel les particules sédimentent.

I.1.4 Notations

Pour analyser les expériences de sédimentation, nous allons utiliser des notations spécifiques que nous devons introduire. Comme le montre la figure 3.I.6, nous définissons l'axe z comme l'axe vertical de chute de la particule (positif vers le bas), l'axe x est l'axe perpendiculaire à l'axe z sur l'image prise par la caméra, l'axe y est celui de l'épaisseur perpendiculaire au plan de prise de vue. L'origine du repère est au bas du bouchon à l'endroit où commence la chute d'une particule.

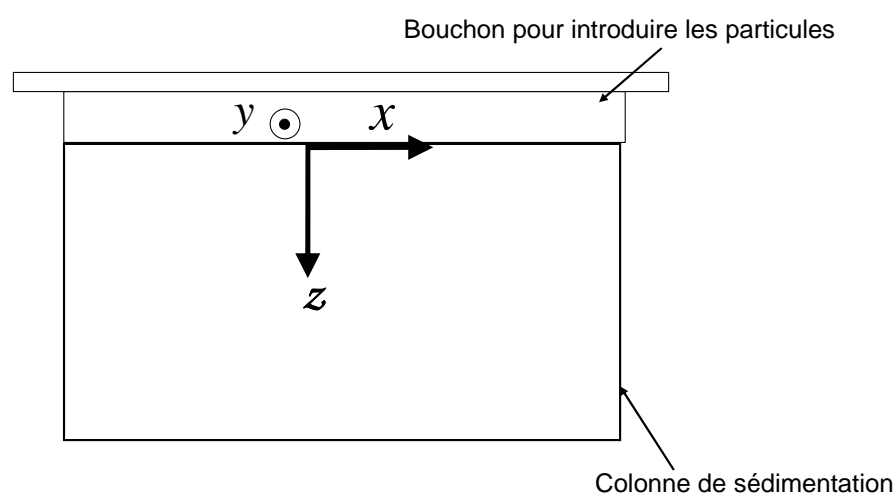


FIG. 3.I.6 – Repère des expériences de sédimentation, l'origine du repère est au niveau du trou de largage de particule.

I.2 Résultats

Nous avons inclus dans cette partie tous les résultats des expériences de sédimentation en plus des expériences dédiées à la mesure de la vitesse de la particule (PIV et biréfringence induite).

I.2.1 Vitesse de sédimentation

Les expériences de sédimentation réalisées nous ont permis d'observer plusieurs régimes :

- **aux temps t_w courts**, la particule parcourt très vite toute la colonne à vitesse constante comme présenté sur la figure 3.I.7
- **aux temps t_w intermédiaires**, la particule ralentit au cours de sa chute comme présenté sur la figure 3.I.8
- **aux temps t_w longs**, la particule ralentit tellement qu'elle finit par s'arrêter. Sur la figure 3.I.9 est présenté une particule qui ralentit fortement puis s'arrête (le temps pour observer l'arrêt est très long, nous ne l'avons pas observé complètement la longueur d'arrêt est décrite dans la suite).

La position de la particule suivie à l'aide du logiciel *Image Pro Plus*, permet de calculer la vitesse instantanée de la particule en fonction du temps de vieillissement du fluide. Cette vitesse calculée est une vitesse instantanée estimée sur quelques points de mesure seulement ce qui permet de réduire l'effet du vieillissement. À temps de vieillissement long cependant, la vitesse de la particule est faible ; elle est alors moyennée pendant un temps pouvant être long afin d'observer le déplacement de la particule. Nous avons représenté la vitesse instantanée de la particule en fonction du temps de vieillissement respectivement pour les particules d'aluminium, d'acier et de laiton sur les figures 3.I.10, 3.I.11 et 3.I.12. Les résultats sont très dispersés à cause de la mauvaise reproductibilité de la laponite. La représentation est réalisée en temps de vieillissement (soit le temps sur le timer) et pas en temps de lâcher car les particules mettent un temps différent pour atteindre la zone de mesure. Une particule lâchée après un temps de vieillissement assez long (pour l'aluminium $t_w > 90$ min) met un temps long à parcourir toute la colonne de sédimentation. Il est alors possible de lâcher à côté une autre particule dans le fluide. Au même instant ces deux particules vont à la même vitesse. Nous pouvons en déduire que le fluide n'est pas cisailé à longue portée par la particule en sédimentation. Lors de sa chute une particule "voit toujours du fluide frais". Le fluide en amont de la particule évolue de la même manière que le fluide sans particule.

I.2.2 Modèle de description de la sédimentation

Les points expérimentaux reliés entre eux sur les figures 3.I.10, 3.I.11 et 3.I.12 ont été mesurés sur le même échantillon au cours de son vieillissement. Malgré une dispersion importante des résultats,

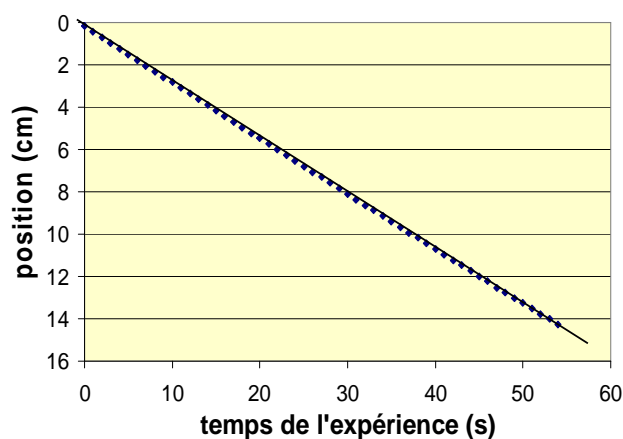


FIG. 3.I.7 – Position de la particule en fonction du temps de sédimentation. Particule de Zirblast ($700 \mu\text{m}$), temps de vieillissement de 10 minutes. Les points expérimentaux sont bien décrits par une variation linéaire (droite en noir).

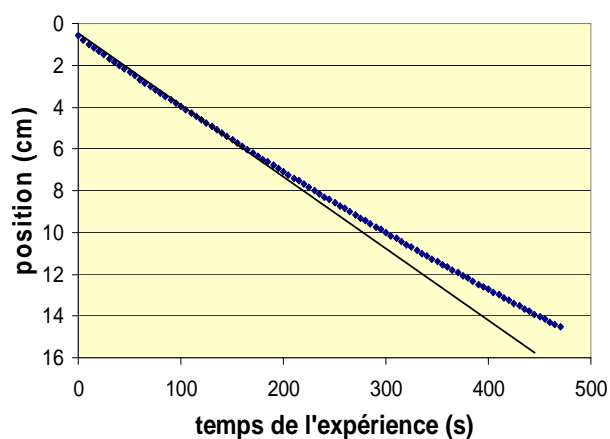


FIG. 3.I.8 – Position de la particule en fonction du temps de sédimentation. Particule de Zirblast ($700 \mu\text{m}$), temps de vieillissement de 45 minutes. Les points expérimentaux dévient d'une variation linéaire (droite en noir).

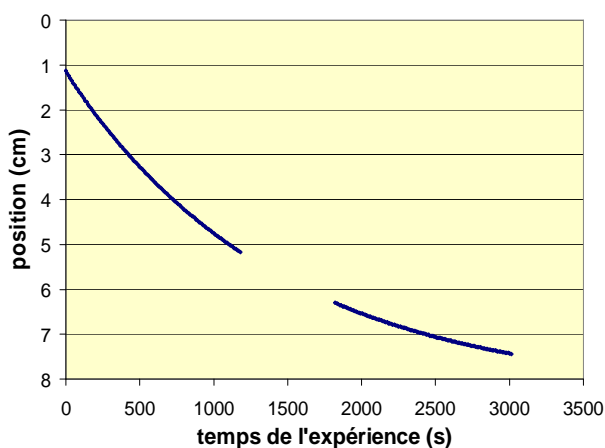


FIG. 3.I.9 – Position de la particule en fonction du temps de sédimentation. Particule de Zirblast ($700 \mu\text{m}$), temps de vieillissement de 90 minutes. Les deux séries de points correspondent à la même expérience de sédimentation.

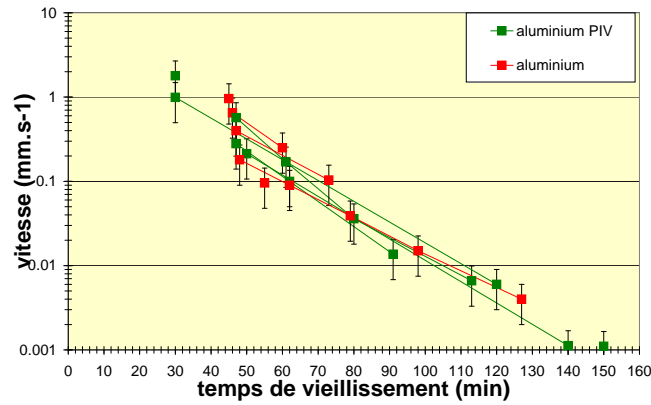


FIG. 3.I.10 – Vitesse instantanée de sédimentation de particules d'aluminium en fonction du temps de vieillissement (échelle linéaire en temps, logarithmique en vitesse).

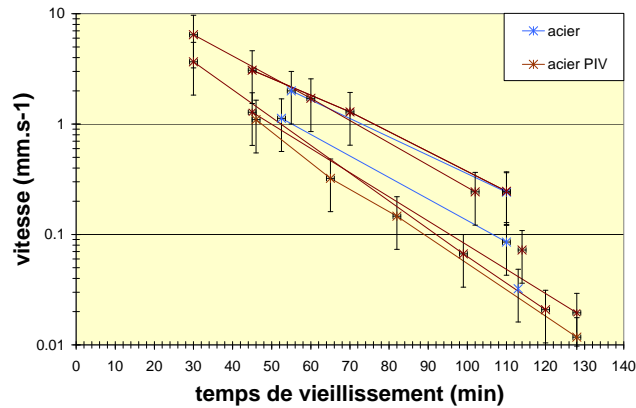


FIG. 3.I.11 – Vitesse instantanée de sédimentation des particules d'acier en fonction du temps de vieillissement (échelle linéaire en temps, logarithmique en vitesse).

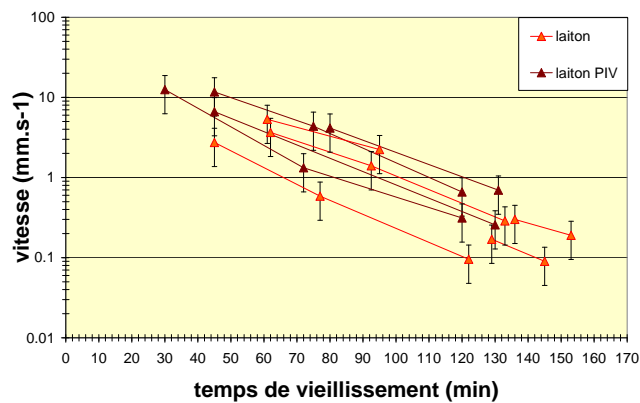


FIG. 3.I.12 – Vitesse instantanée de sédimentation des particules de laiton en fonction du temps de vieillissement (échelle linéaire en temps, logarithmique en vitesse).

l'évolution de la vitesse de chaque type de particule est bien décrite par une exponentielle décroissante avec un temps caractéristique de l'ordre de 20 min :

$$V = V_0 \exp\left(\frac{-t_w}{\tau}\right) \quad (3.1.1)$$

avec V_0 la vitesse de sédimentation extrapolée au temps de vieillissement nul, τ le temps caractéristique de vieillissement. La variation en exponentielle décroissante est très nette pour les expériences réalisées sur le même fluide, la dispersion existe surtout entre les différents échantillons de laponite. L'ajustement par une exponentielle nous donne un temps caractéristique de $16,5 \pm 1,7$ min pour l'aluminium ; de $19,6 \pm 1,8$ min pour l'acier et de $23,5 \pm 2,4$ min pour le laiton).

La vitesse V_0 dépend des différents types de particules utilisées. Les particules exerçant une contrainte plus faible sur le fluide vont plus lentement que les particules exerçant une contrainte plus forte ce que l'on attendait logiquement. Notons que la loi (3.1.1) une fois intégrée permet également de très bien décrire les variations de la position en fonction du temps de l'expérience telles que présentées figures 3.I.7, 3.I.8 et 3.I.9. Cette description est compatible avec les résultats de N.P. Chafe *et al* [49] qui mesurent la force à appliquer pour mettre en mouvement des particules dans la bentonite. Une évolution en exponentielle décroissante avec le temps de vieillissement de la vitesse des particules a été repérée.

La dispersion entre les échantillons entraîne une forte dispersion de la valeur de V_0 (comme nous l'avons signalé précédemment). Pour valider la loi de vitesse (équation (3.1.1)), nous avons extrapolé au temps de 50 min^1 pour chaque échantillon la vitesse de la particule (obtenue avec au moins deux points). Nous avons ensuite calculé pour chaque expérience une vitesse réduite $\overline{V}(t) = \frac{V(t_w)}{V(50)}$. Les résultats sont présentés sur la figure 3.I.13. Toutes les expériences conduisent à une courbe maîtresse bien décrite par un temps caractéristique autour de 20 minutes obtenue à partir de l'équation $V \sim \exp(-(t_w - 50)/\tau)$. Notons que ce temps caractéristique est comme nous l'avons vu précédemment un peu plus court pour les expériences avec les particules d'aluminium et un peu plus long pour les expériences avec les particules de laiton.

matière	diamètre	$\sigma_{particule}$	V_0	\overline{V}_0	\overline{V}_0 newtonien
aluminium	1,5 mm	1,4 Pa	6 mm/s	1	1
acier	1 mm	4,5 Pa	40 mm/s	6,7	2,04
laiton	1,5 mm	6,3 Pa	50 mm/s	11,7	4,52

TAB. 3.I.2 – Vitesses des différentes particules utilisées.

Nous avons également relevé pour chaque type de particule la vitesse initiale V_0 et reporté sa

¹une extrapolation à $t_w=0$, loin des données expérimentales induit des erreurs supplémentaires

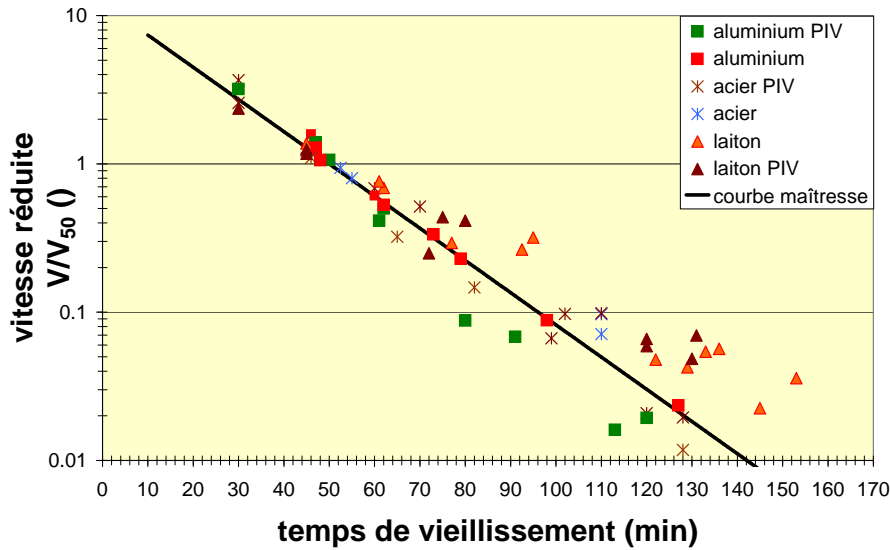


FIG. 3.I.13 – Vitesse réduite $V_{red} = V(t_w)/V_{50}$ en fonction du temps de vieillissement pour les différents types de particules (échelle linéaire en temps, logarithmique en vitesse). La courbe maîtresse est obtenue avec la loi exponentielle pour un temps caractéristique de 20 min.

valeur dans le tableau 3.I.2. Nous pouvons tout d'abord comparer la variation obtenue à celle attendue pour un fluide newtonien. Nous définissons pour chaque particule une vitesse réduite $\bar{V}_0 = \frac{V_0}{V_{0atu}}$. Ce rapport est connu dans le cas d'un fluide newtonien en prenant les rapports des vitesses de Stokes pour les différentes particules soit $\bar{V}_0_{newtonien} = \frac{a^2 \Delta \rho}{a_{atu}^2 \Delta \rho_{atu}}$. Nous avons reporté les valeurs calculées de la vitesse réduite et sa valeur dans le cas newtonien sur le tableau 3.I.2. Bien que la barre d'erreur de détermination de \bar{V}_0 soit importante, nous pouvons mettre en évidence un écart important à la prédiction du cas newtonien. La vitesse réduite dans la laponite étant plus élevée à forte contrainte exercée par la particule, nous pouvons en déduire que l'aspect rhéofluidifiant semble responsable de l'augmentation de vitesse dans la laponite. Nous allons quantifier ces effets à l'aide des expériences de rhéologie.

I.2.3 Comparaison à la rhéologie

I.2.3.1 Temps caractéristique de vieillissement

L'ordre de grandeur du temps caractéristique obtenu en sédimentation (20 min) est similaire à celui trouvé lors des expériences de rhéologie réalisées en appliquant une contrainte faible dès le début du vieillissement (plus petite que 0,2 Pa). Cette similitude indique que la sédimentation des particules n'empêche pas le vieillissement selon le régime de vieillissement limite correspondant à l'application d'une contrainte faible sur le fluide.

I.2.3.2 Variation de la vitesse avec le type de particule

À l'aide d'expériences de rhéologie, il est aussi possible de faire une analyse un peu plus quantitative des résultats de sédimentation. Si la variation de la vitesse avec les caractéristiques des particules était la même qu'en newtonien les points représentant la vitesse (à temps de vieillissement donné) en fonction du paramètre $a^2\Delta\rho$ s'aligneraient sur une droite passant par l'origine. Nous avons tracé sur le graphique 3.I.14 l'évolution de la vitesse extrapolée pour les temps de vieillissement de 50 et 120 min en fonction de $a^2\Delta\rho$, une droite passant par l'origine est représentée en rouge. Ces points se placent sur une droite qui ne passe pas par l'origine. Nous pouvons en déduire une taille limite de particules qui sédimentent comme étant l'intersection entre la droite trouvée et l'axe des abscisses (en échelle linéaire non présentée). Nous observons alors que la particule d'aluminium à 120 minutes est censée rester immobile. Expérimentalement, la vitesse mesurée est non nulle mais très faible. En conclusion, nous repérons que nous sommes assez loin du modèle newtonien.

Dans le chapitre précédent sur la rhéologie, nous avons montré qu'une loi de puissance permet de décrire le comportement du fluide pour des valeurs de contrainte élevées (> 1 Pa) correspondant aux domaines des valeurs de contraintes exercées par les particules sur le fluide (cf. I.3.2.1). Aussi, nous pouvons également comparer nos résultats expérimentaux à la vitesse de Stokes généralisée pour un fluide décrit par une loi de puissance (cf. chapitre III de la première partie) :

$$V_p \sim a^{\frac{n+1}{n}} (\Delta\rho)^{1/n}$$

avec l'indice n dépendant du temps de vieillissement comme établi dans le chapitre précédent. En utilisant pour $n(t_w)$ les valeurs mesurées, nous obtenons les courbes présentées sur la figure 3.I.15. Nous remarquons alors un bon accord entre la loi proposée et le comportement observé. Le caractère rhéofluidifiant de la laponite joue donc un rôle déterminant sur les vitesses de sédimentation des particules utilisées.

I.2.3.3 Comparaison avec les résultats de créneau de contrainte

Nous pouvons également comparer les résultats de sédimentation aux expériences de rhéologie réalisées en appliquant une contrainte constante équivalente à la contrainte exercée par la particule à l'aide de l'équation (1.3.7) pendant 10 s (cf. I.3.2.4). Nous pouvons comparer ces données au gradient de cisaillement induit par le passage de la particule ($\dot{\gamma} = v_p/2a$) pour ces différentes particules. Nous présentons les résultats de la contrainte exercée par la particule en fonction du cisaillement induit mesuré sur les expériences de sédimentation et les résultats correspondant sur les expériences de sédimentation sur la figure 3.I.16 après 60 min de repos. Nous remarquons un bon accord entre les expériences de sédimentation et de rhéologie. Cet accord n'était pas évident *a priori* car d'une part la durée de l'ap-

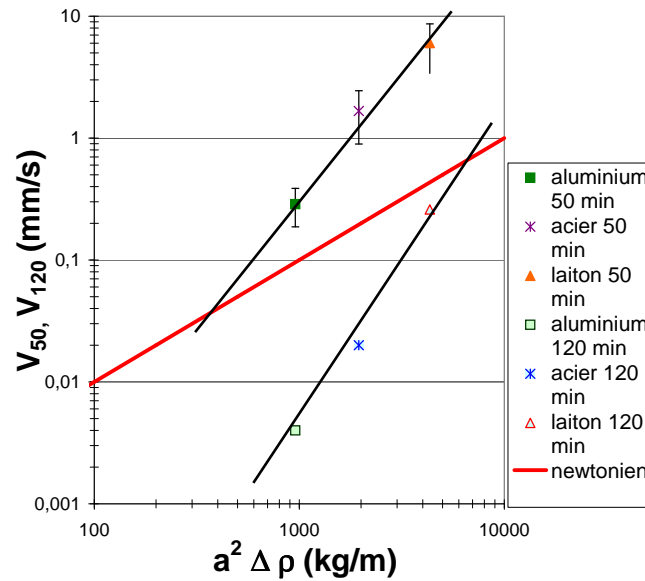


FIG. 3.I.14 – Vitesse de sédimentation à 50 et 120 minutes en fonction du produit $a^2 \Delta \rho$ caractérisant la vitesse de sédimentation en milieu newtonien (échelles logarithmiques). La droite en rouge présente la variation d'une droite passant par l'origine (cas newtonien). Les droites noires ne correspondent pas à un fit mais guident les yeux.

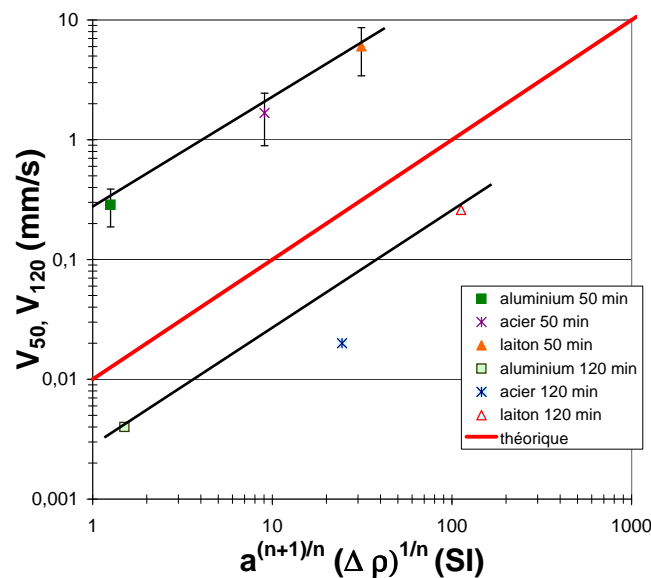


FIG. 3.I.15 – Vitesse de sédimentation à 50 et 120 minutes en fonction du produit $a^{(n+1)/n} (\Delta \rho)^{1/n}$ caractérisant la vitesse de sédimentation en milieu rhéofluidifiant (échelles logarithmiques). La droite en rouge présente la variation d'une droite passant par l'origine. Les droites noires ne correspondent pas à un fit mais guident les yeux.

plication de la contrainte est courte², d'autre part la définition de la contrainte exercée par la particule (équation (1.3.7)) dépend de la description (préfacteur de $\frac{1}{9}$ ou $\frac{4}{3}$). Cette description semble cependant donner un bon ordre de grandeur. De plus, les expériences de rhéologie étaient réalisées sans précaution (le glissement est possible à cause de géométries lisses), cette concordance valide donc la comparaison entre les expériences de rhéologie et de sédimentation (s'il y a glissement, il est équivalent pour les deux types d'expériences). Des mesures rhéologiques à la contrainte exercée par une particule estimée par la relation (1.3.7) au temps de vieillissement considéré permet ainsi d'estimer la vitesse de sédimentation d'une particule dans le fluide.

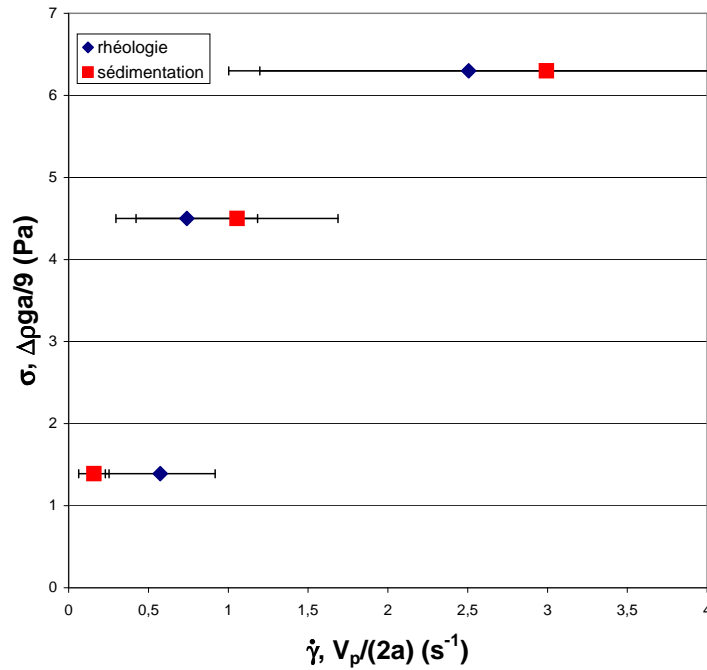


FIG. 3.I.16 – Comparaison des données de sédimentation et de rhéologie. En sédimentation, la contrainte est estimée à $\frac{\Delta\rho ga}{9}$, le cisaillement à $\frac{V_p}{2a}$. Les barres d'erreur indiquent la dispersion des résultats.

I.2.4 Longueur d'arrêt

Il est possible d'intégrer l'équation donnant la vitesse instantanée (3.1.1) pour avoir la position verticale de la particule en fonction du temps de vieillissement. Nous prenons comme condition limite que la position verticale est nulle au moment du lâcher de la particule $z(t_w = t_L) = 0$ (pour les défini-

²la durée qui semblait la bonne a priori est le temps de Stokes (temps que met une particule pour se déplacer de son diamètre), nous avons essayé des créneaux avec ce temps et les résultats ne sont pas comparables.

tions des différents temps se reporter à la figure 3.I.5). Le temps de vieillissement peut se décomposer comme le temps de lâcher plus le temps de l'expérience $t_w = t_L + t_{exp}$. Nous obtenons ainsi la position ($z(t_{exp})$) de la particule en fonction du temps de l'expérience (équation (3.1.2)). De cette expression nous pouvons calculer une longueur d'arrêt (équation (3.1.3)), c'est-à-dire la longueur que va parcourir la particule avant de s'arrêter. Cette longueur sera atteinte au bout d'un temps infini.

$$z(t_{exp}) = \tau V_0 \exp\left(\frac{-t_L}{\tau}\right) \left(1 - \exp\left(\frac{-t_{exp}}{\tau}\right)\right) \quad (3.1.2)$$

$$l_a = \tau V_0 \exp\left(\frac{-t_L}{\tau}\right) \quad (3.1.3)$$

Nous avons observé des particules qui se sont arrêtées comme dans la figure 3.I.17. Expérimentalement, nous avons choisi comme critère d'arrêt le fait de voir encore en suspension une particule le lendemain d'une expérience soit plus de 10 heures après le lâcher (nous avons ainsi $\exp\left(\frac{-t_{exp}}{\tau}\right) \sim 10^{-14}$ dans l'équation (3.1.2)). Nous avons alors mesuré la position de la particule avec un cathétomètre à +/- 5 μm pour différents temps de lâcher et type de particules.

Nous pouvons, pour divers temps de lâcher, tracer cette longueur et la comparer au calcul (figure 3.I.18). Nous avons beaucoup de données pour les particules en aluminium, quelques points pour les particules en acier et un seul point pour les particules en laiton. Le modèle semble vérifié pour l'ensemble des données ; la détermination de V_0 dépend des courbes 3.I.10, 3.I.11 et 3.I.12 sur lesquelles on observe une forte dispersion.

Nous pouvons également estimer la longueur que parcourt une particule avant de s'arrêter si elle se trouve dans le fluide dès le début du vieillissement (cas de l'arrêt de circulation pour les boues de forage) comme étant la longueur d'arrêt pour un temps de lâcher nul. Nous trouvons ainsi une longueur parcourue de **1 à 9 m** pour une particule d'aluminium, **10 à 50 m** pour une particule d'acier et **20 à 100 m** pour une particule de laiton. De même, il est possible d'estimer le temps de vieillissement correspondant à une position située à 5 μm de sa position d'arrêt (précision de la mesure) ce qui donne un temps de vieillissement de presque 4 heures pour la particule d'aluminium, de plus de 5 heures pour la particule d'acier et autour de 6,5 heures pour la particule de laiton. Ces valeurs nous donnent une sorte de "seuil" pour le fluide soit 1,4 Pa après 4 heures de vieillissement, 4,5 Pa après 5 heures de vieillissement et 6,3 Pa après 6,5 heures de vieillissement. Ces valeurs de "seuil" sont plus faibles que celles de la littérature (entre 6 Pa pour 41 min de vieillissement [14] et 95 Pa [16]).

I.2.5 Comparaison aux autres résultats de la littérature

Les travaux de T. Ferroir *et al.* [17] ont porté sur la sédimentation de particules isolées dans une suspension de laponite (la préparation de la laponite est similaire à la méthode de préparation de cette étude sans mise sous azote et pour une concentration en laponite de 1,1 % en masse). La vitesse de la particule est mesurée à différentes hauteurs dans la colonne pour différents temps de vieillissement



FIG. 3.I.17 – Photo d'une cellule en fin de sédimentation (12 heures après l'introduction des particules dans la colonne de sédimentation). Les 5 particules à droite sont des particules d'aluminium. Elles ont été lâchées toutes les 15 min (la première près du bord droit). Les 2 particules à gauche sont des particules de laitton lâchées également à 15 min d'intervalle. La longueur d'arrêt l_a représentée correspond à une particule de laitton.

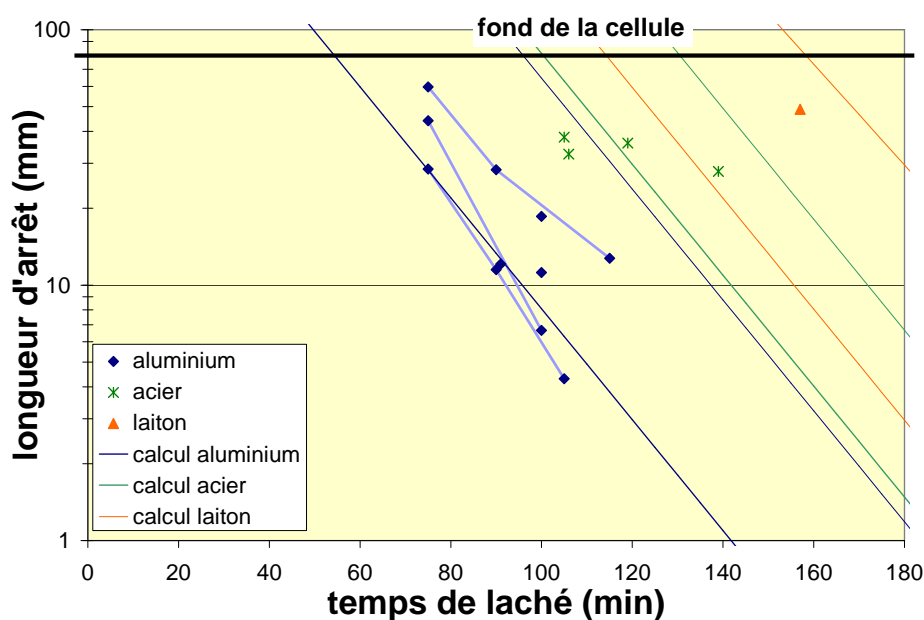


FIG. 3.I.18 – Évolution de la longueur d'arrêt avec le temps de lâché des particules. Les droites en trait plein sont calculées en appliquant l'équation (3.1.3) pour les valeurs limites de la vitesse V_0 pour chaque type de particule. Les points expérimentaux reliés entre eux ont été mesurés sur un même échantillon de laponite. Échelle linéaire en temps et logarithmique en longueur d'arrêt.

comme présenté sur la figure 3.I.19. La relation (3.1.2) que nous avons établie permet de calculer la variation de la vitesse à différentes hauteurs dans la colonne pour différents temps de vieillissement :

$$V(z) = \frac{1}{\tau} (V_0 \tau \exp(-t_L/\tau) - z)$$

Sur la figure 3.I.20 est présenté le résultats du calcul de la vitesse à différentes hauteurs pour différents temps de vieillissement avec les paramètres que nous avons trouvés pour les particules d'aluminium ($V_0 = 6$ mm/s et $\tau = 20$ min). Nous repérons un accord qualitatif entre le modèle posé issu des résultats de cette étude et les résultats de Ferroir *et al.*; un accord quantitatif nécessite la détermination de la constante des paramètres correspondant aux expériences de Ferroir *et al.* (V_0 et τ).

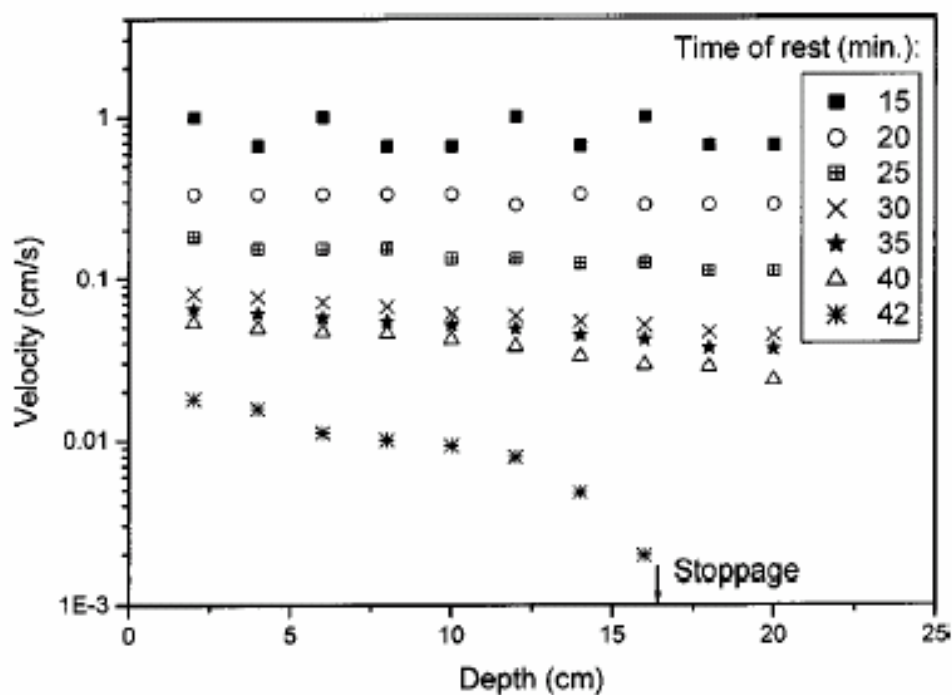


FIG. 3.I.19 – Évolution de la vitesse d'une particule en sédimentation dans la laponite en fonction de la hauteur dans la colonne pour différents temps de vieillissement issu de [17].

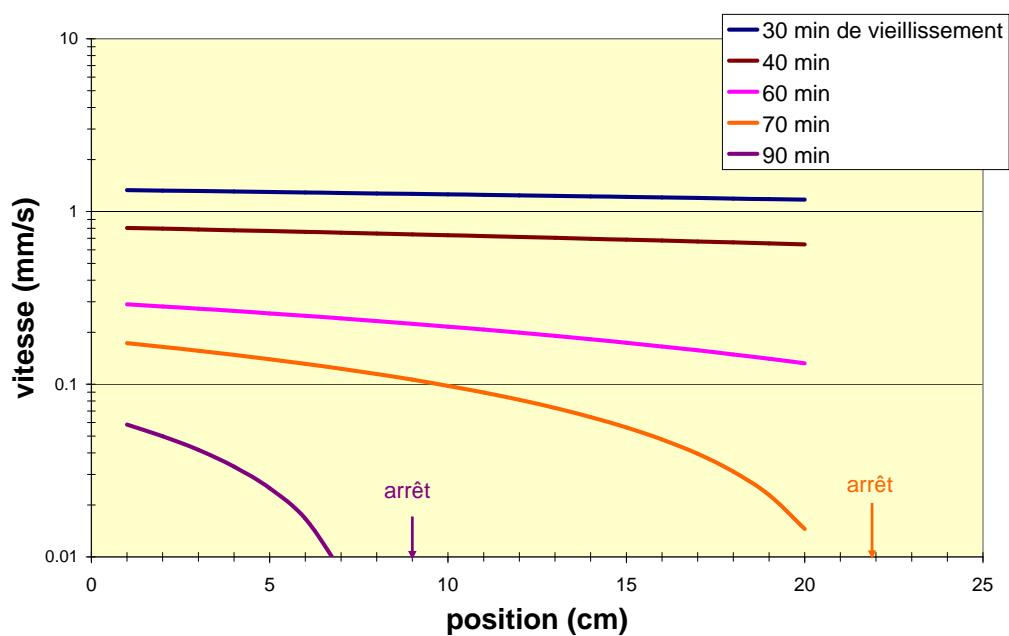


FIG. 3.I.20 – Vitesse de sédimentation calculée à partir des paramètres d'une particule d'aluminium ($V_0 = 6$ mm/s et $\tau = 20$ minutes avec la loi de vitesse que nous avons établie).

I.3 Conclusion

Nous avons réalisé des expériences de sédimentation de particules avec un protocole qui nous permet de mesurer la vitesse d'une particule en sédimentation dans la laponite. Nous avons ainsi pu établir une loi générale donnant la vitesse de sédimentation. Cette loi fait intervenir d'une part un temps caractéristique et d'autre part une évolution avec le type de particule :

$$V_p = K \left(\frac{2^{n(t_w)} g \Delta \rho}{9m} \right)^{1/n(t_w)} a^{\frac{n(t_w)+1}{n(t_w)}} \exp(-t_w/\tau)$$

avec les paramètres trouvés en rhéologie (n et τ). Le temps caractéristique τ qui varie entre 17 et 23 min selon la contrainte exercée par la particule correspond au temps trouvé en rhéologie lorsque l'on applique une contrainte constante suffisamment faible. Ceci signifie que, pour nos trois particules étudiées, la sédimentation d'une particule isolée ne sollicite pas assez le fluide pour quitter le régime de vieillissement limite. La variation de la vitesse avec le type de particule pour un même temps de vieillissement est semblable au cas des fluides rhéofluidifiants (en loi de puissance). Sa variation avec le temps de vieillissement ainsi trouvée permet de calculer une longueur d'arrêt que nous avons mesurée expérimentalement et dont la variation avec le temps de lâcher de la particule correspond aux résultats attendus par le modèle. Cette loi de sédimentation phénoménologique correspond bien aux résultats d'expériences comparables de la littérature [17].

Nous avons mis en évidence l'importance de l'effet du temps de vieillissement qui correspond à la **thixotropie** du fluide et de l'effet **rhéofluidifiant** du fluide sur la vitesse de sédimentation d'une particule. L'effet du seuil se fait sentir d'une manière différente de celle attendue : toutes les particules sédimentent mais sur une longueur qui diminue exponentiellement avec le temps de lâcher. On peut définir un **seuil apparent** de sédimentation comme étant la contrainte exercée sur une particule que l'on ne "voit" plus sédimenter qui augmente avec le temps de vieillissement, comme les seuils que nous avons définis en rhéologie.

Chapitre II

Écoulement autour d'une particule macroscopique isolée en sédimentation

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'écoulement autour d'une particule isolée en sédimentation dans la laponite. Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé une technique adaptée : la PIV (Particle Image Velocimetry ou vélocimétrie par image de particules). Dans une première partie de ce chapitre, nous allons présenter le matériel et les méthodes d'analyse nécessaires à cette étude ; dans une deuxième partie, nous validerons notre montage en décrivant les sources d'erreurs possibles et en présentant une étude dans le cas newtonien. La dernière partie sera consacrée aux résultats obtenus dans le cas de la laponite : plus précisément, nous présenterons les champs de vitesse autour des différentes particules étudiées dans un premier temps, puis nous étudierons les différentes zones d'écoulement autour de la particule : en amont, à l'horizontale et en aval de la particule. Finalement, nous discuterons ces observations en relation avec les résultats de la littérature et les propriétés rhéologiques de la laponite. Une partie de ce travail fait l'objet d'un article paru dans *Physics of Fluids* [79].

Sommaire

II.1 Expérience	116
II.1.1 Montage et protocole	116
II.1.2 Principe du calcul du champ de vitesse par PIV	117
II.1.3 Calculs de PIV dans le cas de la sédimentation de particules dans la laponite	119
II.1.4 Conventions utilisées pour la présentation des résultats	120
II.2 Validation du montage	120
II.2.1 Précautions et erreurs	120
II.2.1.1 Influence des traceurs sur la laponite	121
II.2.1.2 Erreurs dues aux images	121
II.2.1.3 Erreurs dues au déplacement de la particule	124
II.2.1.4 Limite de mesure	125

II.2.2	Cas newtonien	126
II.2.3	Conclusion	129
II.3	Résultats dans la laponite	129
II.3.1	Champs de vitesse	130
II.3.2	Analyse en amont de la particule	133
II.3.3	Analyse de la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule	133
II.3.4	Analyse en aval de la particule : zone d'élongation	137
II.4	Conclusion	141

II.1 Expérience

Pour visualiser l'écoulement autour de la particule, nous avons réalisé des expériences de PIV (Particle Image Velocimetry : Vélocimétrie par image de particules). Ceci consiste à enregistrer puis à analyser des images de sédimentation en repérant le mouvement de traceurs situés dans le fluide afin de déterminer le champ de vitesse du fluide.

II.1.1 Montage et protocole

Nous allons tout d'abord présenter les différents éléments du montage (voir figures 3.II.1 et 3.II.2) avant de présenter le protocole des expériences de PIV.

Traceurs : Nous avons utilisé des particules de $10 \mu\text{m}$ pour ensemencher le fluide (particules non-browniennes). Ces particules sont des billes creuses en verre qui ont une densité très proche de celle de l'eau ($\Delta\rho \sim 0$: elles ne sédimentent pas). Nous appellerons ces particules dans la suite de l'étude "**traceurs**". La quantité de traceurs ne doit pas être trop importante pour ne pas atténuer l'intensité lumineuse incidente sur la "tranche" de fluide considérée. En effet, de telles particules diffusent fortement la lumière. La quantité de traceurs introduite a été de 0,01 % en masse dans toutes les expériences.

Laser : Les traceurs sont éclairés par un laser He-Ne continu (d'une puissance de 20 mW) étendu en une nappe laser verticale à l'aide d'une lentille cylindrique (barreau de verre de 5 mm de diamètre). Cette lentille est montée sur une platine de rotation d'axe horizontal le tout monté sur une platine de translation verticale ; ces platines permettent à l'aide de vis micrométriques de positionner la lentille. La verticalité du plan laser est réglée à l'aide de ces vis micrométriques et d'un fil à plomb par projection sur un écran. Pour diminuer l'épaisseur du plan une lentille convergente est ajoutée au montage. L'épaisseur du plan laser est alors de 1 mm environ.

Caméra : La sédimentation est filmée à l'aide d'une caméra CCD standard (25 images par seconde) et enregistrée à l'aide du logiciel d'acquisition *Image Pro Plus*. Le timer (qui enregistre le temps de vieillissement du fluide comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent) est toujours incrusté dans l'image. Un objectif de 60 mm est utilisé pour les expériences de PIV afin d'avoir une image suffisamment agrandie. Deux positions de la caméra ont été choisies, l'une la plus proche possible pour observer le voisinage de la particule, l'autre plus loin pour voir les mouvements d'ensemble autour de la particule. L'axe optique de la caméra est réglé à 90° du plan laser. La verticalité d'une ligne de pixel de la caméra est réalisée à l'aide de trois vis sur le support de la caméra en filmant un fil à plomb.

Colonnes de sédimentation : Les colonnes de sédimentation sont en plexiglas. Le bouchon de sédimentation utilisé est le même que dans le chapitre précédent (présenté figure 3.I.3), il permet d'aligner le plan laser et la verticale de sédimentation des particules. De plus un rail en dural a été réalisé afin de conserver cet alignement lors de la translation de la cellule avant chaque introduction de particule. Les colonnes sont posées sur un support qui permet de régler la position verticale de la colonne (la caméra et le laser restant dans le même plan horizontal). Ce support est de plus posé sur un appui trois points permettant de régler la verticalité de la colonne.

Protocole des expériences de sédimentation : Après la phase de mûrissement (cf. §I.2.2), le fluide est agité pendant plus d'une heure à l'agitateur magnétique. Les traceurs sont ensuite ajoutés progressivement à la laponite sous azote dans une bouteille spécifique en évitant l'introduction de bulle. Le fluide est de nouveau agité une heure à l'agitateur magnétique (le barreau aimanté est aussi spécifique pour ne pas "polluer" les autres suspensions de laponite pendant leur mûrissement). Cette nouvelle agitation a plusieurs buts : homogénéiser la suspension de traceurs et précisailier la laponite avant son utilisation.

Les manipulations ensuite réalisées sont similaires aux premières expériences de sédimentation (comme présenté sur la figure 3.I.5 du chapitre précédent). Le fluide est introduit dans la colonne de sédimentation et le timer est lancé. Les particules sont introduites à différents temps de lâcher t_L , les films sont réalisés lorsque la particule passe devant la caméra (il est également possible de déplacer verticalement la cellule de sédimentation pour visualiser la particule à différents moments de sa chute si celle-ci va assez lentement).

II.1.2 Principe du calcul du champ de vitesse par PIV

Le calcul de champ de vitesse réalisé au cours de cette thèse a été réalisé via une technique de PIV à l'aide du logiciel commercial *DaVis*. Cette technique consiste à calculer la corrélation entre les pixels d'une fenêtre sur une image et les pixels de la même fenêtre sur l'image suivante comme présenté sur la figure 3.II.3 pour déterminer le déplacement moyen de cette zone de fluide à l'aide du pic de

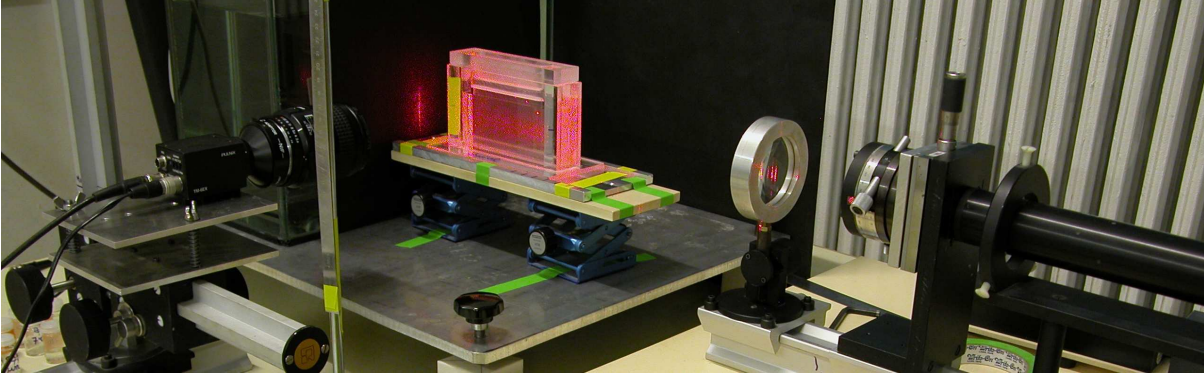


FIG. 3.II.1 – Photo du montage de PIV.

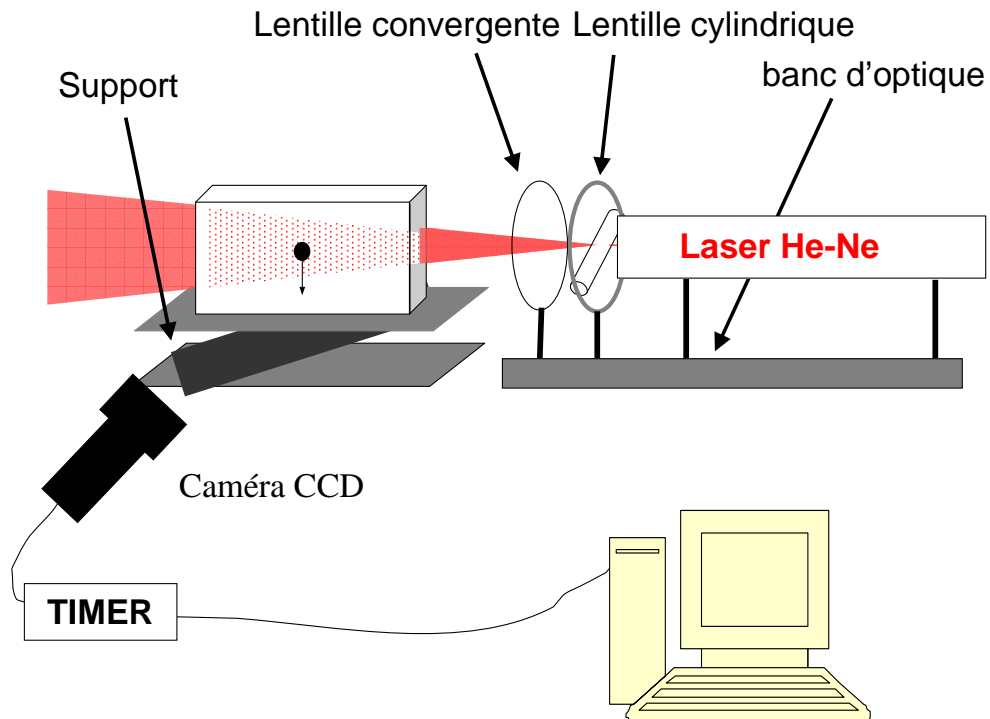


FIG. 3.II.2 – Schéma du montage de PIV.

corrélation. Il faut donc d'abord définir des fenêtres de calculs qui vont définir les mailles du champ de vitesse. Le pic de corrélation est retenu comme déplacement. Le calcul est réalisé pour toutes les fenêtres de l'image. Le temps entre deux images étant connu précisément (par le Timer), on obtient le champ de vitesse sur toute l'image considérée.

La qualité de la corrélation dépend de nombreux paramètres. Il est nécessaire de "voir" à l'oeil nu des mouvements en faisant défiler le film (le calcul permet seulement de quantifier ce que l'on voit).

La taille des fenêtres est aussi à choisir de manière adéquate : elle dépend de la taille des traceurs sur le film (il est nécessaire d'avoir de nombreux traceurs par fenêtre) et de la taille caractéristique du mouvement à observer. La corrélation ne peut alors pas s'effectuer entre deux images successives si le déplacement est trop faible (on peut alors choisir une image sur x lors du chargement du film).

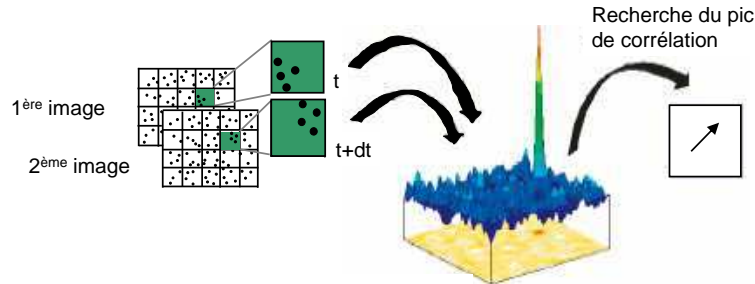


FIG. 3.II.3 – Principe du calcul de PIV.

II.1.3 Calculs de PIV dans le cas de la sédimentation de particules dans la laponite

Pour quantifier correctement les résultats, la position (x, z) de la particule sur chaque image du film a été déterminée précisément. Les calculs de PIV ont alors été réalisés de telle sorte que la verticale de la particule soit sur un noeud des mailles du calcul du champ de vitesse. Puisque la particule se déplace verticalement, cet ajustement sur un noeud de mailles n'est pas réalisable simplement selon z . La position verticale (z) de la particule a été calculée comme étant la position moyenne entre les deux images du film (cette position moyenne est très rarement sur un noeud de calcul de PIV). Ainsi les résultats présentés à la verticale de la particule sont bien centrés sur la particule par contre les résultats à l'horizontale de la particule sont déterminés à $\frac{1}{2}$ pas de calcul près .

Le calcul du champ de vitesse a été réalisé avec des fenêtres de 16 pixels de côté. Le rayon des particules pour les vues proches est de 40 pixels pour l'acier, 60 pour le laiton et l'aluminium, pour les vues éloignées de 18 pixels pour l'acier et de 27 pixels pour le laiton et l'aluminium.

La distance entre la zone de visualisation et la face d'entrée du laser sera également un facteur important (la laponite absorbe la lumière du plan laser : loin de la source, le signal n'est plus très intense). Les colonnes de sédimentation sont ainsi retournées en cours d'expérience pour avoir les particules lâchées successivement toujours assez proches de la source. De plus la position du laser influe sur les résultats, à droite de la particule, on aperçoit une tâche de diffusion et à gauche l'ombre portée de la particule comme nous pouvons le remarquer sur la figure 3.II.4.



FIG. 3.II.4 – Photo d'une particule de laiton au milieu des traceurs (dans le cas d'une vue proche).

II.1.4 Conventions utilisées pour la présentation des résultats

Les résultats de PIV seront présentés avec des notations particulières. Nous avons dans le chapitre précédent étudié la vitesse d'une particule et nous avons montré qu'elle varie de plusieurs ordres de grandeur avec le temps de vieillissement. Nous allons donc présenter des résultats de vitesse du fluide normés par la vitesse de la particule. Pour certains temps de vieillissement longs cette vitesse évolue également pendant le film, elle est alors évaluée par sa valeur moyenne pendant le pas de temps nécessaire pour faire le calcul de PIV. Nous allons également normer toutes les dimensions par le rayon de la particule comme c'est souvent le cas dans la littérature ; cela nous permettra également de comparer les résultats pour différents rayons de particules.

II.2 Validation du montage

Pour valider nos expériences nous avons tout d'abord évalué les erreurs dues au montage et au calcul de PIV. Nous allons dans cette section présenter les différentes sources d'erreur de notre montage puis nous présentons les résultats obtenus dans le cas newtonien.

II.2.1 Précautions et erreurs

Il existe de nombreuses sources d'erreur ; nous présentons dans cette section les erreurs possibles et nous cherchons à les estimer quand cela est possible. Les erreurs étudiées portent sur le fluide, sur l'esti-

mation de la vitesse du fluide, sur la vitesse de la particule et celles dues au déplacement de la particule.

II.2.1.1 Influence des traceurs sur la laponite

Comme nous l'avons vu dans la section I.2, la laponite est une suspension colloïdale dont la stabilité est très fragile. L'ajout de traceurs n'est pas sans risque sur cette stabilité. Aussi nous avons réalisé des expériences en laissant les suspensions le plus possible sous azote et une bouteille est utilisée dans les 24 heures suivant son ouverture.

Pour valider ces choix, nous avons réalisé des expériences de rhéologie sur la laponite seule et la laponite avec traceurs le jour de l'ouverture de la bouteille et le lendemain (l'expérience la plus rapide - à 45 min de vieillissement - est réalisée en dernier pour s'assurer qu'il n'y a pas de vieillissement pendant le temps des expériences).

Le protocole utilisé est un protocole de rampe de contrainte réalisé avec la même géométrie et la même évolution temporelle pour toutes les expériences (protocole présenté figure 2.I.7 dans le chapitre sur la rhéologie). Nous avons représenté les résultats sur la courbe 3.II.5. Nous remarquons que la rhéologie (réalisée le premier jour) des échantillons contenant des traceurs est similaire aux échantillons qui n'en contiennent pas (en temps caractéristique et en valeurs de gradient de cisaillement). Par contre le lendemain leurs caractéristiques rhéologiques commencent à différer et évoluent de façon importante les jours suivants (données non représentées).

II.2.1.2 Erreurs dues aux images

Erreurs de calculs de la vitesse du fluide : Les défauts de qualité de l'image engendrent des erreurs de calculs. Nous allons évaluer ici leur importance relative.

Tout d'abord, nous avons voulu mesurer les erreurs dues à la taille des traceurs (elle limite la gamme de déplacement). Nous avons alors réalisé un film en prenant sur une même image des fenêtres (de 144 pixels de côté) décalées d'un déplacement connu comme présenté sur la figure 3.II.6. Nous avons ensuite fait les calculs de PIV sur ce film. Nous avons ensuite calculé l'erreur comme étant $|V_{PIV} - V_{connue}|/V_{connue}$. Nous obtenons une assez bonne corrélation même pour des faibles déplacements comme présenté sur le tableau 3.II.1.

Par ailleurs, nous avons également observé qu'avec de la lumière cohérente et une suspension colloïdale telle que la laponite, nous avons des clignotements du signal qui vont générer des erreurs. Il est très difficile d'estimer ces erreurs car elles dépendent de nombreux paramètres : distance à la source, temps de vieillissement, nature de la particule qui sédimente (ou plutôt taille de la tâche de

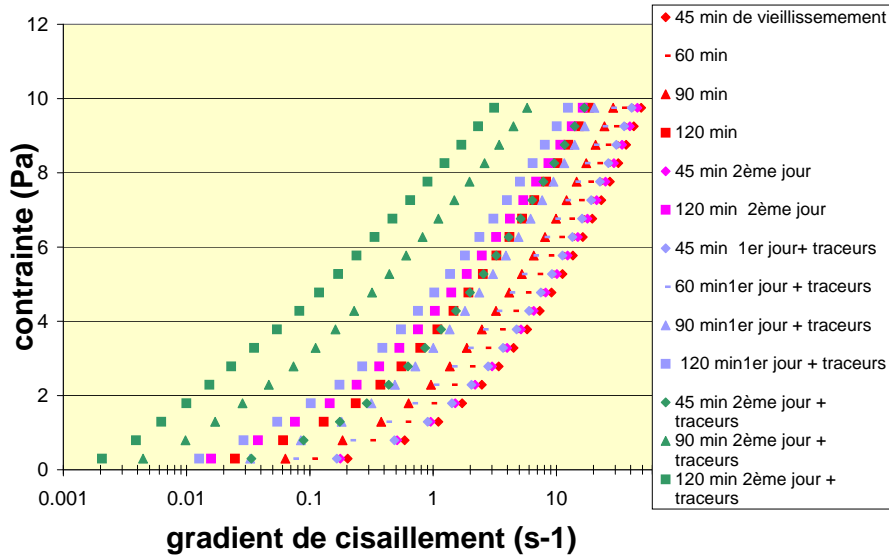


FIG. 3.II.5 – Rhéogrammes de la laponite avec ou sans traceurs en fonction du temps depuis l'ouverture de la bouteille (premier ou deuxième jour). L'échelle est linéaire en contrainte et logarithmique en gradient de cisaillement. La forme des symboles code le temps de vieillissement du fluide, la couleur les conditions expérimentales **le premier jour**, **le deuxième jour**, **le premier jour avec traceurs**, **le deuxième jour avec traceurs**.

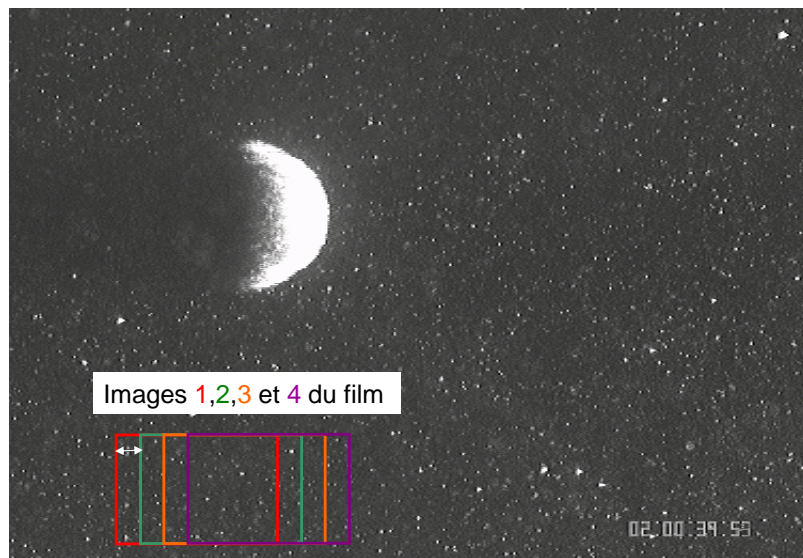


FIG. 3.II.6 – Construction du film pour calculer les erreurs dues au logiciel.

diffusion).

Nous avons donc constaté que l'erreur due au logiciel et à l'optique n'est pas nulle et peut être ponctuellement élevée. Aussi, pour chaque détermination du champ de vitesse, nous avons mis un filtre

déplacement	erreur relative max	erreur relative moyenne
(pixels)	(%)	(%)
10	1,2	0,34
5	5	0,7
1	7,7	3

TAB. 3.II.1 – Erreurs dues au calcul de PIV.

après les calculs afin de retirer les vecteurs très aberrants (c'est-à-dire les vecteurs très différents de leurs plus proches voisins ; le filtre ne retire toutefois pas tous les vecteurs aberrants en effet un filtrage trop sévère retirerait trop de vecteurs justes dans les zones de fort gradient de vitesse). Ceci nous conduit à mettre sur nos résultats de vitesse une barre d'erreur de 5 %. Les erreurs seront les mêmes pour les vues proches et les vues de plus loin car il y a deux effets antagonistes qui se compensent : sur les vues proches, le déplacement est plus important réduisant ainsi l'erreur relative, mais les traceurs sont plus gros ce qui augmente les erreurs de calculs.

Erreurs sur et au voisinage de la particule : La technique de calcul corrèle des intensités entre deux images, une variation brutale d'intensité donne un mauvais résultat. Ainsi sur la particule les calculs ne peuvent pas être réalisés par corrélation d'images. En particulier, il n'est pas possible de déterminer par PIV la vitesse de la particule car c'est une zone de fort gradient de vitesse. De plus, en amont à l'endroit où était la particule, comme en aval à l'endroit où arrive la particule, les calculs ne peuvent pas être réalisés. Cette zone de l'espace est donc interdite. Nous avons aussi à gauche de la particule l'ombre portée de la particule qui gêne les calculs, à droite nous avons une tâche de diffusion du laser sur la particule (comme il est possible de le voir sur la photo 3.II.4). La technique de PIV ne permet donc pas de raccorder le champ de vitesse du fluide à la vitesse de la particule les résultats de PIV étant faux aussi bien sur la particule qu'à son voisinage immédiat comme il est possible de le remarquer sur la figure 3.II.8 (zone d'un rayon en amont et aval et sur toute l'horizontale de la particule).

Erreurs sur la détermination de la vitesse de la particule : Toutes les vitesses sont normées par la vitesse de la particule. Celle-ci a été déterminée avec le logiciel *Image Pro Plus*. Dans les films réalisés pour la PIV, la valeur de la vitesse est entachée d'erreur car la particule n'est vue qu'à moitié et à cause de la tâche de diffusion sur la particule (cette tâche est plus visible sur les particules d'acier et d'aluminium). L'erreur que nous faisons peut être estimée à 5%. Remarquons que chaque vecteur du champ de vitesse normé par la vitesse de la particule sera alors entaché d'une erreur due à la normalisation, erreur homogène au sein d'un même champ de vitesse. Cette erreur est également plus importante aux temps longs.



FIG. 3.II.7 – Échelle de couleur de la norme de la vitesse.

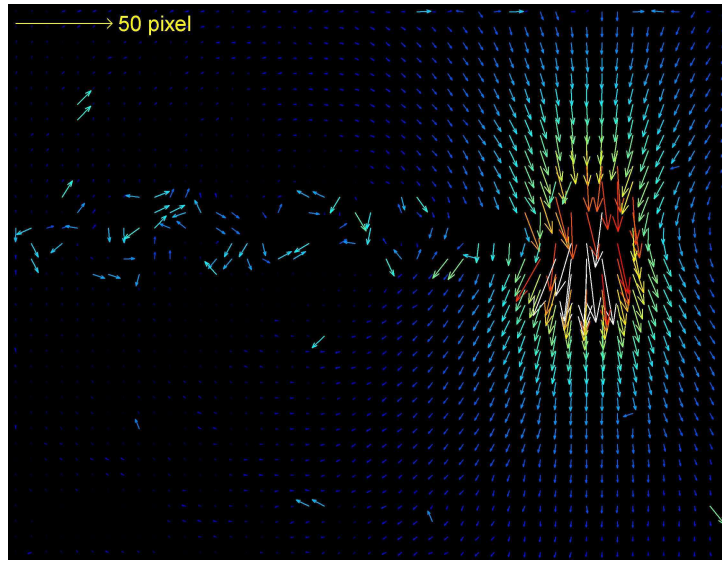


FIG. 3.II.8 – Champ de vitesse autour d'une particule d'aluminium en sédimentation dans le glycérol. Nous pouvons repérer les erreurs dues à l'ombre portée de la particule et les erreurs de calculs de PIV (vecteurs aberrants locaux). L'échelle de couleur correspond à la figure 3.II.7.

II.2.1.3 Erreurs dues au déplacement de la particule

Nous avons constaté que le calcul de PIV était précis si la particule se déplace typiquement de son rayon entre deux images successives (pour avoir un déplacement suffisant loin de la particule). Les résultats de PIV ne sont alors pas directement comparables aux calculs théoriques de champ de vitesse. Nous mesurons non pas une vitesse locale instantanée mais une vitesse estimée à partir du déplacement de paquets de fluide lors du déplacement de la particule d'une fois son rayon. Afin d'évaluer l'importance de cet effet, nous avons considéré le cas newtonien pour lequel le champ de vitesse est connu analytiquement. Nous avons intégré la vitesse locale du fluide à la verticale de la particule sur le temps de chute de la particule entre les deux images du calcul pour obtenir le déplacement de paquets de fluide pour différentes positions initiales de ces paquets. Le calcul est présenté en détail en annexe B.

Les calculs numériques ont été réalisés dans deux cas : d'une part avec un déplacement de la particule identique à celui de l'expérience en newtonien c'est-à-dire d'un rayon (données expérimentales notées "expérience"), ces résultats sont notés "calculs déplacement Maple" d'autre part avec un déplacement de la particule d'un diamètre (déplacement typique pour les résultats dans la laponite) ces résultats sont notés "calculs déplacement Maple 1 diamètre". Nous pouvons alors comparer nos résultats expérimentaux avec les expressions théoriques de la vitesse et les calculs prenant en compte le

déplacement de la particule (calculs avec le logiciel *Maple*) présentés sur la figure 3.II.10 dans la section suivante). Nous remarquons que ces courbes calculées diffèrent seulement à proximité de la particule (typiquement 1 diamètre) donc à la limite de résolution de la PIV. Cette erreur de calcul peut ainsi être négligée dans notre zone de travail. Dans la suite de cet exposé, nous ne présenterons plus que les calculs à partir des expressions théoriques du champ de vitesse dans le cas newtonien.

II.2.1.4 Limite de mesure

Des mouvements de faible vitesse existent dans le fluide lorsqu'il est au repos : ils sont dus à la présence d'un gradient de température qui, même faible, peut induire une cellule de convection dans toute la cellule. Ceci limite le champ de vitesse à des vitesses de fluide suffisamment élevées que nous allons quantifier. Les équations permettant de décrire les effets observés peuvent être trouvés dans [80]. Ces effets sont présents à partir d'un nombre de Rayleigh de 1. Ce nombre compare la convection et la diffusion thermique. Le nombre de Rayleigh peut être calculé à partir de¹ $Ra_H = \frac{g\beta H^3 \rho \Delta T}{\alpha \eta}$. Dans l'eau, une différence de température de $1,4 \cdot 10^{-7}$ K est suffisante pour créer une cellule de convection. Cette cellule de convection est donc très facilement présente dans l'eau. Elle entraîne une vitesse verticale du fluide qui évolue avec le temps pour atteindre une saturation, la vitesse à saturation peut être estimée à $v_{th} = \left(\frac{g\beta H \alpha \rho \Delta T}{\eta} \right)^{1/2}$. Ce qui donne pour une différence de température de 0,01 K une vitesse "thermique" proche de 0,5 mm/s. Dans la laponite, on peut considérer que la masse volumique et les propriétés thermiques sont celles de l'eau et que seule la viscosité est différente. Elle dépend du temps de vieillissement. En supposant que l'instabilité existe toujours, on trouve une vitesse "thermique" correspondante qui évolue en exponentielle décroissante avec le temps de vieillissement comme la vitesse de la particule. Puisque les résultats présentés dans ce chapitre sont normés par la vitesse de la particule, la vitesse "thermique" normée par la vitesse de la particule restera la même avec le temps de vieillissement. Par exemple à $t_w = 45$ min, la viscosité vaut 2 Pa s (pour le plateau de viscosité), la vitesse de la particule d'acier vaut 2 mm/s. La vitesse de cet effet thermique vaut $v_{th} = \frac{v_{th\text{eau}} \eta_{\text{eau}}}{\eta_{\text{laponite}}}$ soit 0,24 $\mu\text{m/s}$ soit un rapport $\frac{v_{th}}{V_p} = 1,2 \cdot 10^{-4}$. Ceci nous donne donc la limite de mesure pour l'acier. Pour le laiton ce rapport vaut $0,39 \cdot 10^{-4}$ et pour l'aluminium $6,0 \cdot 10^{-4}$. Dans le cas du glycérol les constantes thermiques sont différentes² ce qui nous donne un rapport $\frac{v_{th}}{V_p}$ de $3,8 \cdot 10^{-3}$ pour la particule d'aluminium. Ainsi, les mesures réalisées ne sont à considérer que pour des vitesses suffisamment importantes. Les vitesses faibles ne sont pas accessibles par ce type d'expérience.

Nous venons d'estimer les erreurs dues au montage de PIV. Les erreurs dues au fluide seront consi-

¹ici β désigne le coefficient de dilatation thermique il vaut $2,1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ dans l'eau à 20°C, α la diffusivité thermique elle vaut $1,42 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ dans l'eau à 20°C, H est la hauteur de la cellule (8 cm), ΔT la différence de température, g l'accélération de la gravité, ρ la masse volumique du fluide et η la viscosité.

² $\beta = 5 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $\alpha = 9,8 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$, $\eta = 1,15 \text{ Pa s}$ et $\rho = 1260 \text{ kg/m}^3$

dérées comme négligeables. Les erreurs dues aux images sont estimées à 5 % sur le calcul de la vitesse, à 5 % pour la détermination de la vitesse de la particule et la zone à proximité de la particule ne sera pas prise en compte de même que loin de la particule où la vitesse du fluide est faible. Le déplacement de la particule peut également être négligé. Les résultats seront ainsi présentés avec une barre d'erreur de 10 %.

II.2.2 Cas newtonien

Pour valider notre montage, nous avons réalisé une série d'expériences avec les particules d'aluminium ($2a = 1,5 \text{ mm}$) dans le glycérol (fluide newtonien de forte viscosité). Le nombre de Reynolds de ces expériences peut ainsi être estimé à $Re \sim 2 \cdot 10^{-3}$. Nous avons utilisé le montage décrit précédemment et réalisé des calculs de PIV avec le logiciel *DaVis*. Le champ de vitesse obtenu est présenté sur la figure 3.II.9³. Nous allons déterminer à l'aide de ces expériences les caractéristiques de l'écoulement et les comparer aux calculs théoriques. Les observations de ces effets sont réalisées sur la verticale passant par le centre de la particule et sur des horizontales en amont et aval de la particule.

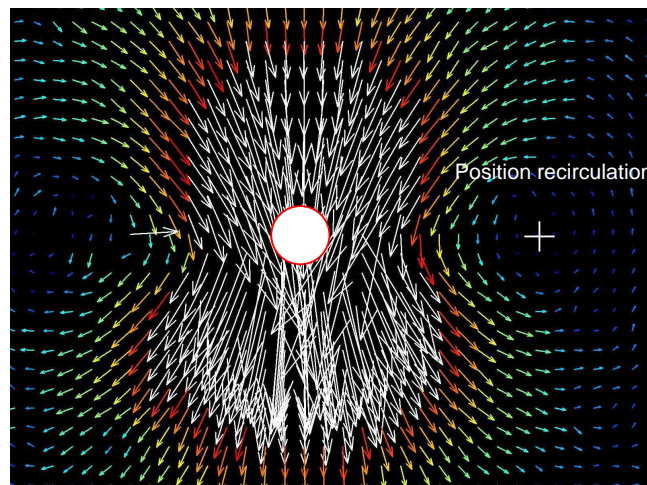


FIG. 3.II.9 – Champ de vitesse autour d'une particule d'aluminium en sédimentation dans du glycérol (vue de loin). Nous avons repéré la position du point de recirculation horizontale. L'échelle de couleur correspond à la figure 3.II.7.

Nous présentons $V_z(z/a)$ du fluide en $x = 0$ sur la figure 3.II.10. Nous comparons nos résultats expérimentaux aux expressions théoriques de la vitesse dans le cas de la sédimentation dans un fluide newtonien infini (que nous avons détaillée dans le paragraphe IV.1 du chapitre 4 de la première partie) et aux calculs prenant en compte le déplacement de la particule présentés dans la section précédente.

³À l'oeil, l'écoulement peut sembler dissymétrique entre l'amont et l'aval mais ceci est dû aux flèches dont la taille ne doit être affectée qu'à l'origine du vecteur.

Nous remarquons que les résultats expérimentaux sont en accord les uns avec les autres pour tous les cas : au milieu de la cellule, près du bord (de la face d'entrée du laser) et dans le cas des vues proches. Il n'y a donc pas d'effets spécifiques dus à la proximité des bords ni des erreurs plus ou moins importantes selon la proximité des vues. Les résultats expérimentaux sont également en accord avec les résultats théoriques des calculs jusqu'à une distance de 5 rayons. Au-delà, les différences observées entre résultats théoriques et résultats expérimentaux viennent du milieu qui n'est pas infini (comme dans les calculs) : nous avons un effet du fond et des parois.

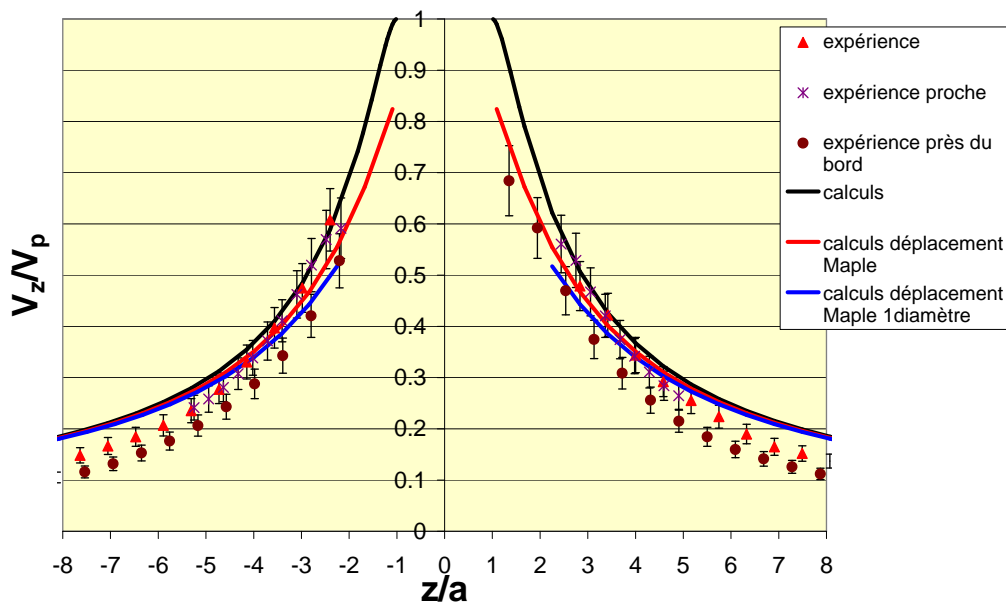


FIG. 3.II.10 – Évolution de la vitesse verticale du fluide (normée par la vitesse de la particule) à la verticale de la particule en fonction de la position verticale (normée par le rayon). Expériences : -au centre de la cellule, -près d'un bord et -vues de près, calcul à partir de l'expression du champ de vitesse en newtonien et calcul prenant en compte le déplacement de la particule avec le logiciel *Maple*.

Nous avons également étudié $V_z(x/a)$ sur différentes horizontales. Il n'est pas possible d'avoir des résultats corrects sur l'horizontale de la particule (ombre portée de la particule à gauche et tâche de diffusion à droite). Nous avons représenté sur la figure 3.II.11 la vitesse verticale du fluide à 3 rayons en aval⁴ de la particule et à 3 rayons en amont en fonction de la position x centrée sur la particule

⁴La position (z) de la particule n'est pas nécessairement sur une maille, nos calculs de PIV étant réalisés sur des mailles de 16 pixels. Aussi les mailles de calculs ne tombent pas exactement à 3 rayons, c'est pourquoi la superposition des courbes amont et aval n'est pas parfaite.

et normée par le rayon. Nous pouvons ainsi étudier la symétrie amont/aval de l'écoulement ; en effet les courbes se superposent assez bien entre amont et aval (la distance verticale à la sphère n'étant pas exactement la même pour les différentes expériences). Nous remarquons un assez bon accord entre les calculs à partir des expressions théoriques en newtonien et les résultats sauf assez loin de la particule où la recirculation due aux dimensions finies du réservoir entre en compte (le débit total de matière étant nul, le fluide doit remonter, l'existence de la recirculation est due au fond et sa position aux parois de la cellule de sédimentation).

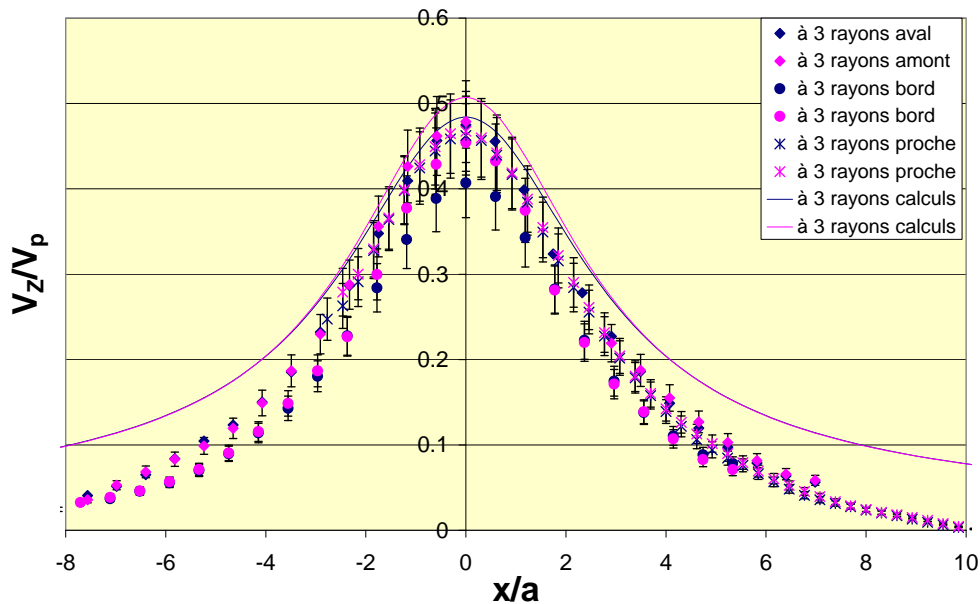


FIG. 3.II.11 – Évolution de la vitesse verticale du fluide en différentes position (3 rayons en aval et 3 rayons en amont) en fonction de la position horizontale. Expériences au centre de la cellule, près d'un bord et vue de près, calcul du champ de vitesse en newtonien (dans les mêmes conditions que l'expérience notée 3 rayons aval/amont).

Nous avons également mesuré la position du point de recirculation (c'est-à-dire x sur l'axe $z = 0$ tel que $V_z = 0$). Pour cela, nous avons repéré cette position sur les images de PIV en prenant l'inversion de la direction des vecteurs (comme présenté sur la figure 3.II.9, la visualisation des vecteurs à l'écran est de meilleure qualité). Nous avons choisi de ne pas utiliser le calcul à l'horizontale de la particule car celui-ci est entâché d'erreurs et peu précis (tâche de diffusion de la particule...). Cette technique qui utilise tout le champ de vitesse permet de déterminer beaucoup plus précisément la position de la recirculation. Cependant elle dépend de l'appréciation de la personne qui réalise cette détermination. Nous obtenons ainsi une position de recirculation horizontale située **entre 9,2 et 9,5 rayons de**

particule du centre de la particule. Il est possible d'estimer simplement cette position en la fixant à mi-distance entre le bord de la particule et le bord du réservoir (estimation proposée par M.T. Arigo dans [61]⁵). Ce calcul nous donne alors pour les particules d'aluminium étudiées ($2a = 1,5$ mm) et la colonne de 24 mm d'épaisseur une recirculation située à 9,2 rayons de particules. Ce résultat est tout-à-fait en accord avec les résultats expérimentaux.

II.2.3 Conclusion

Nous avons évalué l'ensemble des erreurs à 10 %. Malgré l'important déplacement de la particule, nous avons montré que son effet sur la vitesse était négligeable pour une distance à la particule ni trop importante (il existe un rapport $\frac{V_z}{V_p}$ minimal défini dans la section II.2.1.4 pour les différentes particules étudiées), ni trop faible (en dehors de la zone comprise entre la position de la particule sur la première image et sa position sur la suivante). Nous avons mesuré le champ de vitesse dans le glycérol (fluide newtonien) qui nous donne une bonne corrélation entre les résultats théoriques et les expériences. Nous avons aussi déterminé l'effet des parois sur la position de la recirculation. L'ensemble de cette analyse nous permet de conclure sur la validité de notre montage expérimental.

II.3 Résultats dans la laponite

Nous allons dans un premier temps présenter des images de champ de vitesse pour les différentes particules à différents temps de vieillissement. Ensuite, nous allons décrire les résultats obtenus dans les différentes zones de l'écoulement autour de la particule comme définies sur le schéma 1.IV.3 :

- zone en compression en amont de la particule
- zone en cisaillement à l'horizontale de la particule
- zone en élongation et relaxation du cisaillement à l'aval de la particule.

L'analyse des résultats est réalisée dans un premier temps en fonction du type de particule puis détaillée dans les différentes zones d'écoulement pour être généralisée en conclusion en fonction des contraintes exercées par la particule.

⁵Cette estimation est réalisée pour des colonnes cylindriques, nous l'étendons au cas des colonnes parallélépipédiques en supposant que l'écoulement reste axisymétrique.

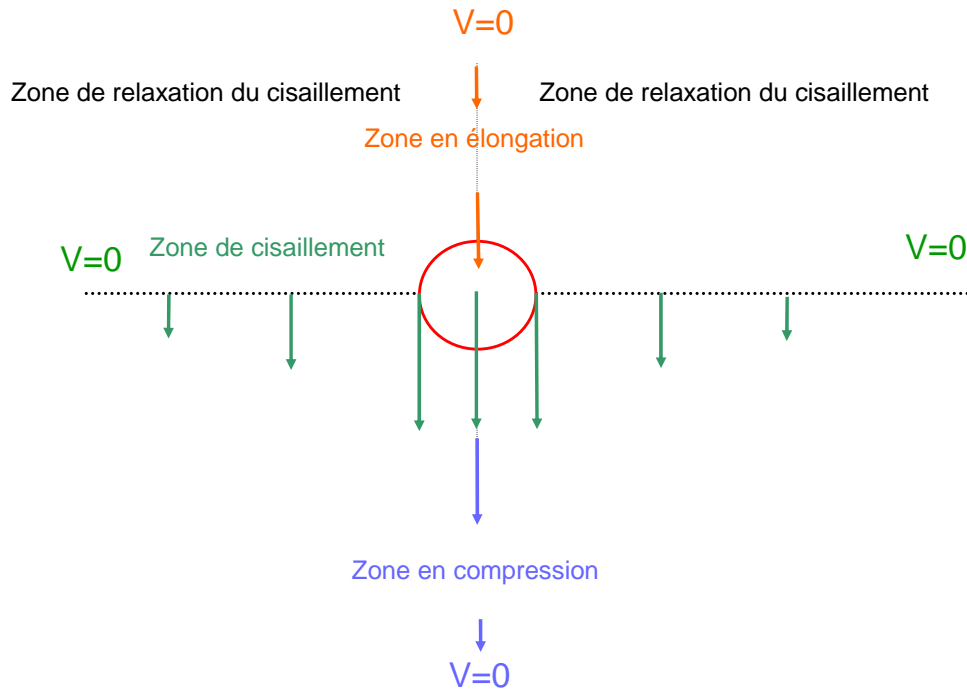


FIG. 1.IV.3 - Description des zones d'écoulement autour d'une particule en sédimentation

II.3.1 Champs de vitesse

Nous allons ici présenter globalement les champs de vitesse autour des particules en sédimentation dans la laponite. La taille des vecteurs dans les différentes figures est proportionnelle à la norme de la vitesse ; mais puisque la vitesse évolue de plusieurs ordres de grandeur les échelles ne sont pas les mêmes sur les différentes figures. L'échelle de couleur (identique au cas newtonien figure 3.II.7) code la norme de la vitesse (toujours avec une échelle différente selon les particules et les temps de vieillissement). Sur ces figures la particule est représentée *a posteriori* : la position correspond à la position moyenne entre les deux pas de PIV. Sa position sur les figures (comme la taille de la particule) est présente pour guider le lecteur mais sans en garantir l'exactitude. Sur les figures qui suivent, les échelles spatiales sont les mêmes ce qui permet de comparer les étendues spatiales du champ de vitesse suivant les conditions expérimentales.

En aval de la particule, les images de PIV nous montrent des comportements du champ de vitesse complètement différents selon les types de particule. Pour l'aluminium l'évolution avec le temps de vieillissement semble assez faible et l'écoulement reste proche du cas newtonien. Pour l'acier l'écoulement change complètement de forme : il passe d'une forme proche du newtonien à une forme avec une traînée négative. Pour le lait, il y a toujours une traînée négative qui garde une forme similaire avec le temps de vieillissement mais se rapproche de la particule.

Particule d'aluminium

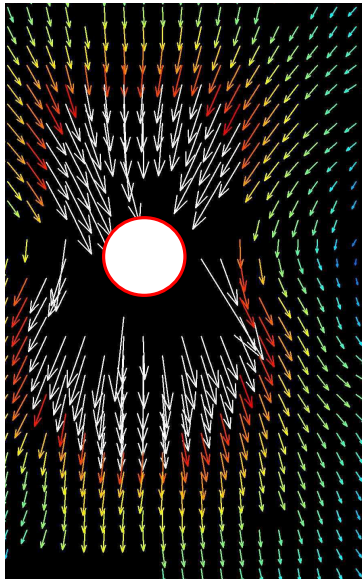


FIG. 3.II.12 – Champ de vitesse autour de la particule d'aluminium pour un temps de vieillissement de 45 min, $V_p = 0,4$ mm/s.

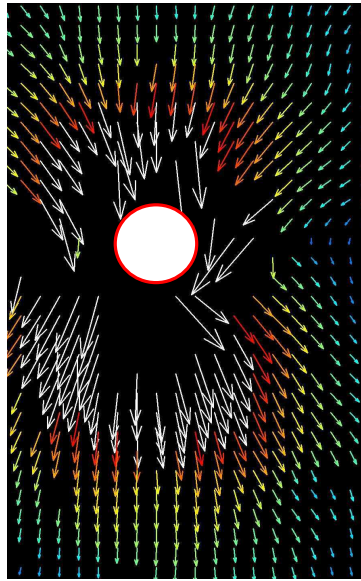


FIG. 3.II.13 – Champ de vitesse autour de la particule d'aluminium pour un temps de vieillissement de 80 min, $V_p = 0,036$ mm/s.

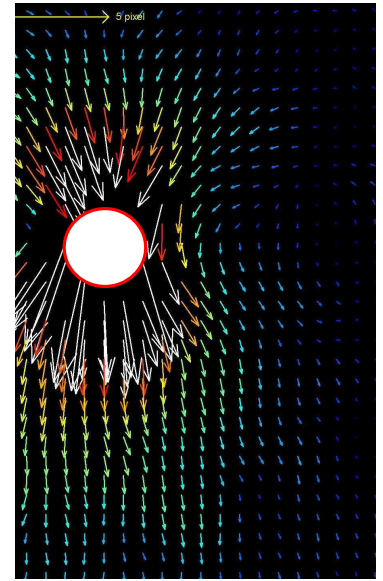


FIG. 3.II.14 – Champ de vitesse autour de la particule d'aluminium pour un temps de vieillissement de 150 min, $V_p = 0,001$ mm/s.

Particule d'acier

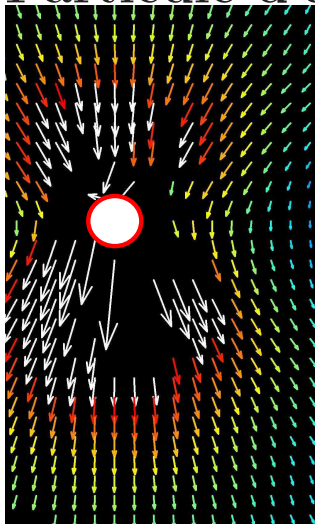


FIG. 3.II.15 – Champ de vitesse autour de la particule d'acier pour un temps de vieillissement de 30 min, $V_p = 7$ mm/s.

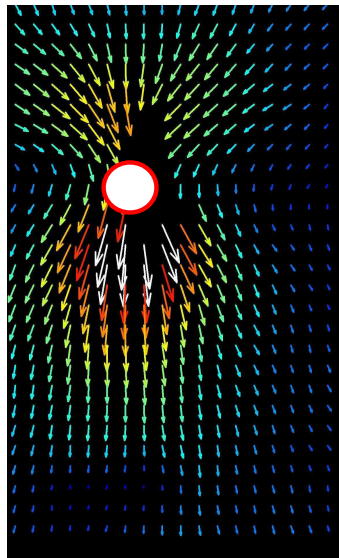


FIG. 3.II.16 – Champ de vitesse autour de la particule d'acier pour un temps de vieillissement de 80 min, $V_p = 0,15$ mm/s.

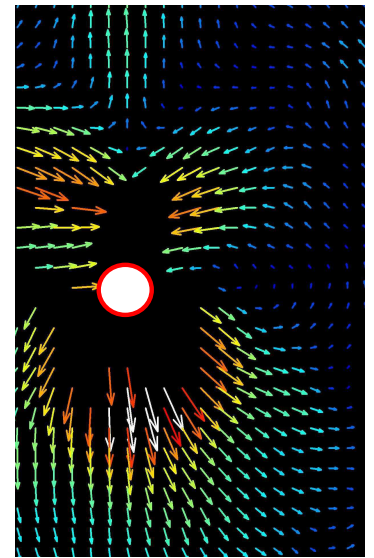


FIG. 3.II.17 – Champ de vitesse autour de la particule d'acier pour un temps de vieillissement de 120 min, $V_p = 0,07$ mm/s.

Particule de laiton

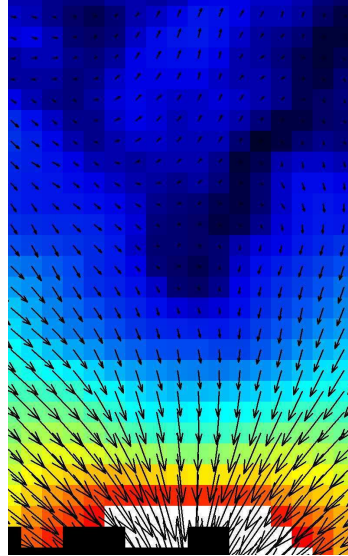
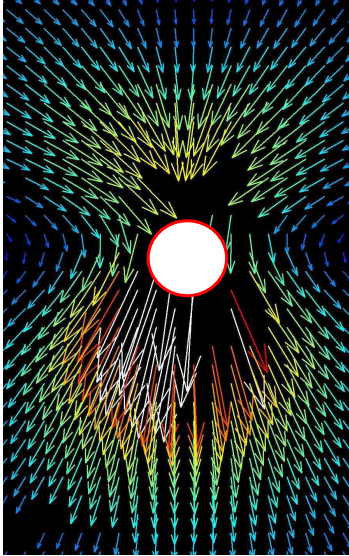


FIG. 3.II.18 – Champ de vitesse autour de la particule de laiton pour un temps de vieillissement de 45 min, $V_p = 11$ mm/s. La figure de gauche présente l'environnement de la particule, la figure de droite la traînée derrière la particule (le fond comme les flèches à gauche code la norme du vecteur vitesse, les vecteurs vitesse sont représentés en noir).

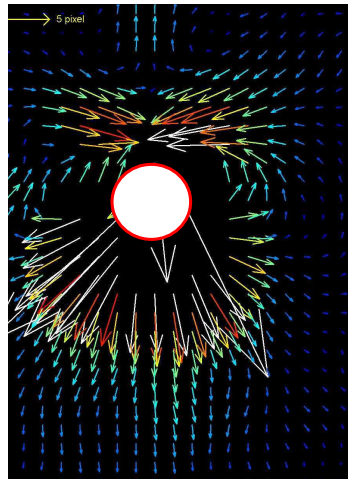
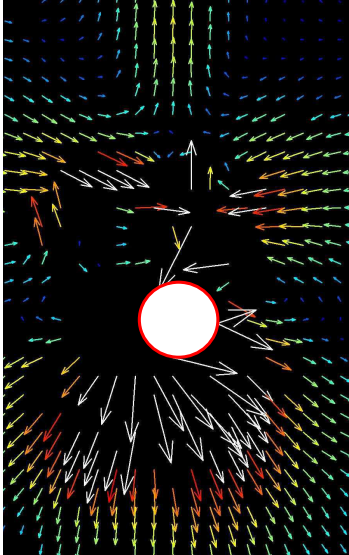


FIG. 3.II.19 – Champ de vitesse autour de la particule de laiton pour un temps de vieillissement de 90 min, $V_p = 1,4$ mm/s.

FIG. 3.II.20 – Champ de vitesse autour de la particule de laiton pour un temps de vieillissement de 120 min, $V_p = 0,3$ mm/s.

II.3.2 Analyse en amont de la particule

Nous pouvons remarquer sur les images de champ de vitesse que les vitesses en amont de la particule ont une évolution assez proche du cas newtonien : même symétrie radiale et évolution verticale monotone. Pour faire une analyse quantitative de chaque expérience, nous avons relevé les vitesses verticales en amont en fonction de la position verticale pour les particules d'aluminium, d'acier et de laiton représentées respectivement sur les figures 3.II.21, 3.II.22 et 3.II.23 à différents temps de vieillissement. Nous pouvons remarquer tout d'abord que tous les points expérimentaux sont décalés par rapport au calcul newtonien même assez près de la particule⁶ : l'écoulement est plus confiné près de la particule que dans le cas newtonien.

Nous remarquons par ailleurs que, pour la particule d'aluminium, les vitesses verticales se superposent très bien pour tous les temps de vieillissement. Ceci signifie que le fluide en amont de la particule réagit de la même manière quel que soit le temps de vieillissement en représentation normée. Par contre, pour les particules d'acier et de laiton, nous observons que l'évolution de la vitesse avec la position verticale se confine de plus en plus près de la particule avec le temps de vieillissement. Aux temps longs, la zone comprimée se rapproche nettement de la particule. La variation de cette étendue reste toutefois faible en comparaison de la variation de la vitesse de la particule (qui est de plusieurs ordre de grandeur). La zone en compression en amont de la particule est ainsi qualitativement peu modifiée pendant le vieillissement du fluide pour tous les types de particules.

II.3.3 Analyse de la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule

Pour analyser la zone de cisaillement, nous avons mesuré pour chaque expérience, la position du point de recirculation horizontal. Cette position peut dépendre de plusieurs paramètres : la distance aux parois comme dans le cas newtonien, le caractère rhéofluidifiant du fluide, la contrainte seuil dans le fluide qui confine l'écoulement dans une "coque" autour du fluide comme décrit dans le chapitre IV de la première partie (figure 1.IV.8). Nous avons mesuré la position de la recirculation de la même manière que dans le cas newtonien, les résultats sont présentés sur la figure 3.II.24 pour l'aluminium, sur la figure 3.II.25 pour l'acier et sur la figure 3.II.26 pour le laiton pour différents temps de vieillissement.

Nous remarquons que pour l'aluminium cette position évolue très peu avec le temps de vieillissement et est proche de la valeur trouvée dans le cas newtonien. L'étendue de la zone cisailée est donc

⁶La vitesse diminue également plus vite que les résultats expérimentaux en newtonien par exemple pour $\frac{z}{a} = 5$ (valeurs moyennées sur les différents temps de vieillissement) :

	newtonien	aluminium	acier	laiton
$\frac{\bar{V}}{V_p}$	0,25	0,18	0,13	0,08

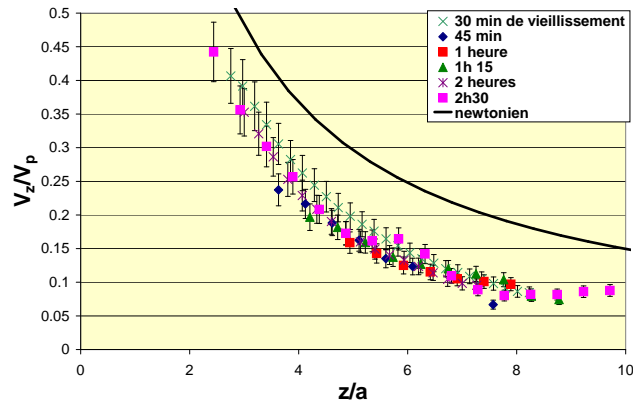


FIG. 3.II.21 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule en fonction de la distance verticale à la particule normée par le rayon : cas de l'**aluminium** en **amont** de la particule.

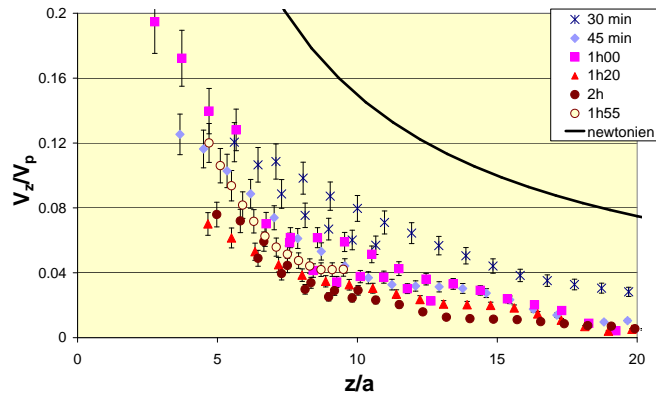


FIG. 3.II.22 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule en fonction de la distance verticale à la particule normée par le rayon : cas de l'**acier** en **amont** de la particule.

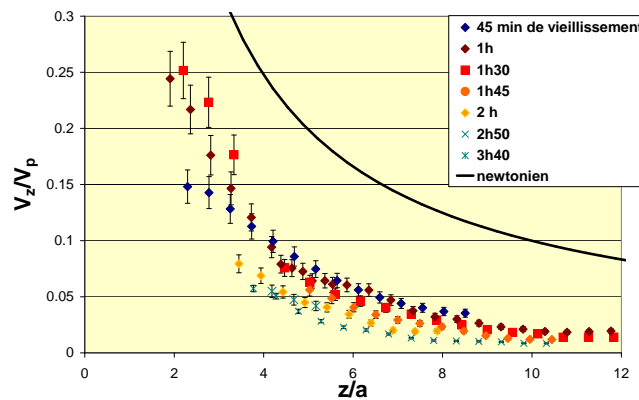


FIG. 3.II.23 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule en fonction de la distance verticale à la particule normée par le rayon : cas du **laiton** en **amont** de la particule.

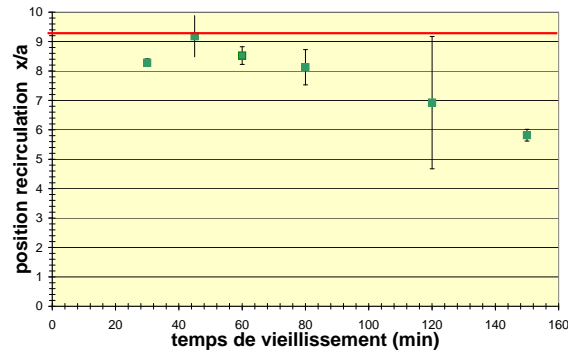


FIG. 3.II.24 – Position du point de recirculation horizontal pour la particule d'**aluminium** par rapport au centre de la particule pour différents temps de vieillissement. La ligne rouge représente la position de la recirculation mesurée dans le cas newtonien.

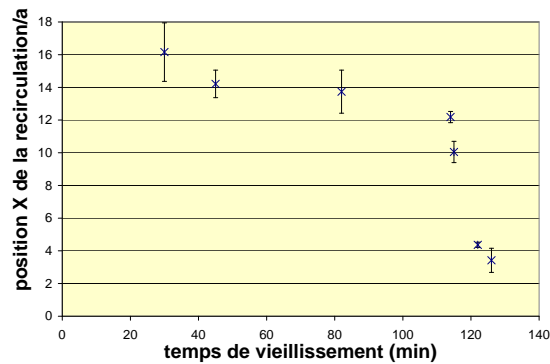


FIG. 3.II.25 – Position du point de recirculation horizontal pour la particule d'**acier** par rapport au centre de la particule pour différents temps de vieillissement.

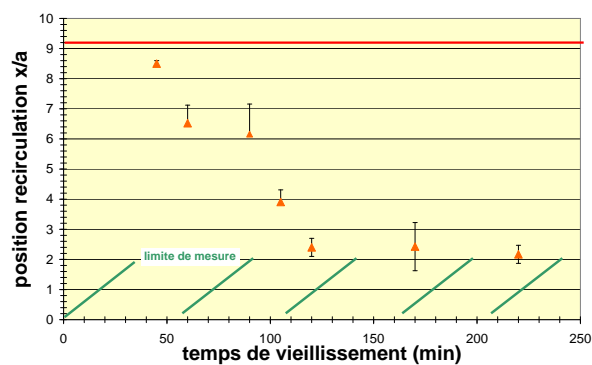


FIG. 3.II.26 – Position du point de recirculation horizontal pour la particule de **laiton** par rapport au centre de la particule pour différents temps de vieillissement. La ligne rouge représente la position de la recirculation mesurée dans le cas newtonien.

peu modifiée avec le temps de vieillissement.

Nous remarquons que pour l'acier la position du point de recirculation est assez loin de la particule. Nous n'avons pas fait d'expérience dans le cas newtonien avec cette taille de particule : cette position plus éloignée est sans doute due au rapport différent entre l'épaisseur de la cellule et la taille de la particule ($e/2a$ vaut 16 pour les particules d'aluminium et de laiton et 24 pour les particules d'acier). Cette position se rapproche de la particule avec le temps de vieillissement. La zone cisailée est donc de plus en plus petite.

Pour le laiton cette position diminue fortement avant de devenir constante (on atteint la limite de résolution du champ de vitesse). Ceci signifie que la zone cisailée est très proche de la particule : elle atteint une valeur de l'ordre d'un diamètre. À temps de vieillissement court, cette valeur est de l'ordre de grandeur de ce que nous trouvons dans le cas newtonien.

La position de la recirculation horizontale pour la particule d'aluminium reste donc presque inchangée (supérieure à 5 rayons), cette position est loin de la particule pour l'acier et diminue avec le temps de vieillissement. Pour le laiton, cette position diminue vite avec le temps de vieillissement jusqu'à la limite de mesure. Cet effet peut être dû au seuil "apparent" du fluide qui augmente avec le temps de vieillissement. Dans les travaux de A.N. Beris *et al.* [69], les paramètres décrivant cet effet sont Y_g qui compare la contrainte seuil et la contrainte exercée par la particule et B qui compare la contrainte seuil et la contrainte venant du terme de viscosité dans la loi rhéologique (équations (1.4.3) et (1.4.4) du chapitre II de la première partie). Plus Y_g est important, plus l'écoulement est localisé près de la particule. Puisque le seuil augmente avec le temps de vieillissement, l'écoulement devrait se localiser de plus en plus près de la particule. Cependant cet effet devrait être observé de manière plus importante pour l'aluminium que pour les autres particules puisque celle-ci exerce une contrainte plus faible. L'effet observé ne semble pas être dû au seuil d'écoulement qui augmente pendant le temps de vieillissement du fluide sauf peut-être dans le cas du laiton à t_w grand. Notons que le modèle de fluide utilisé par A.N. Beris est un modèle de Bingham (fluide à seuil le plus simple donc non thixotrope et sans viscoélasticité). L'enveloppe prévue limitant la zone d'écoulement est peu différente d'une sphère ce qui n'est pas le cas ici où l'écoulement est beaucoup plus localisé en $z=0$ (horizontale passant par le centre de la particule) qu'en $x=0$ (sur la verticale de la particule). Nous n'avons trouvé aucun calcul dans la littérature traitant du cas des fluides à seuil thixotropes.

Le confinement plus important autour de la particule observé dans l'acier ou le laiton à t_w court est typique d'un comportement rhéofluidifiant [61].

II.3.4 Analyse en aval de la particule : zone d'élongation

Les figures 3.II.27, 3.II.28 et 3.II.29 représentent $V_z(z/a)$ pour les trois particules dans la zone en aval de la particule soit la zone en élongation. Nous remarquons que pour tous les types de particule, la vitesse du fluide est plus faible localement que pour le cas newtonien à même vitesse de particule. De plus cet effet s'amplifie avec le temps de vieillissement pour toutes les particules.

Dans le chapitre sur la rhéologie, nous avons défini deux limites en contrainte dans la laponite : une première contrainte entre le vieillissement sans sollicitation et un vieillissement sous contrainte, et une seconde contrainte entre structuration sous contrainte et déstructuration. Ces contraintes critiques augmentent avec le temps de vieillissement. Ainsi dès les temps courts, la contrainte exercée par la particule d'aluminium est de l'ordre de grandeur de la contrainte la plus basse. La contrainte exercée par la particule d'acier est à temps court supérieure à ces deux contraintes, à temps long la première contrainte est supérieure. La contrainte exercée par la particule de laiton reste supérieure aux deux contraintes pour tous les temps de vieillissement étudiés. Par ailleurs, à tous les temps de vieillissement, le fluide a un caractère rhéofluidifiant qui s'accroît avec le temps de vieillissement (cf. §I.3.2.1 dans la deuxième partie) et qui a permis de comprendre l'évolution de la vitesse de sédimentation (cf. figure 3.I.15). Les effets de seuil et de rhéofluidification peuvent donc expliquer le confinement autour de la particule observé en aval de la particule.

Pour la particule d'aluminium, nous observons un comportement similaire au cas newtonien (décroissance en $1/r$ de la vitesse du fluide) qui se confine près de la particule avec le temps de vieillissement.

La contrainte exercée par la particule d'acier est plus importante que la contrainte exercée par la particule d'aluminium, nous observons le passage d'un comportement du même type que pour l'aluminium à temps de vieillissement court à un comportement présentant une traînée négative à temps de vieillissement long. Pour des temps de vieillissement intermédiaires, nous observons un écoulement dissymétrique entre l'amont et l'aval mais pour lequel nous n'avons pas repéré de traînée négative.

Pour la particule de laiton, nous observons toujours une traînée négative. Le point de stagnation se rapproche de la particule avec le temps de vieillissement⁷. Nous pouvons ainsi présenter l'effet sur le type d'écoulement de la contrainte exercée par la particule et du temps de vieillissement figure 3.II.30. Le comportement intermédiaire correspond à un écoulement sans recirculation négative mais ne présentant pas de symétrie entre l'amont et l'aval.

Pour l'acier et le laiton, nous observons que la diminution de la vitesse avec la distance à la particule

⁷à temps de vieillissement court (45 min) le point de stagnation est assez loin de la particule à 10 rayons de la particule

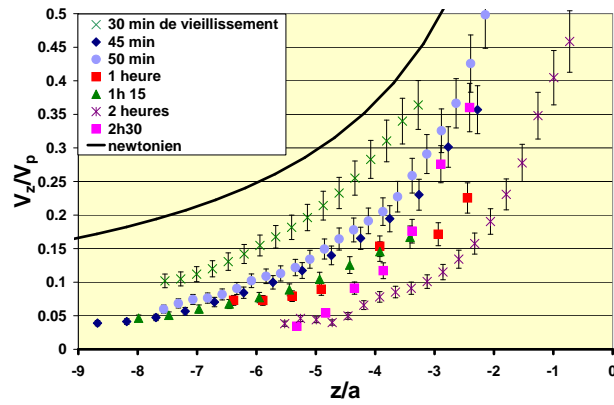


FIG. 3.II.27 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule à la verticale de la particule en fonction de la distance verticale à de la particule d'aluminium en aval de la particule.

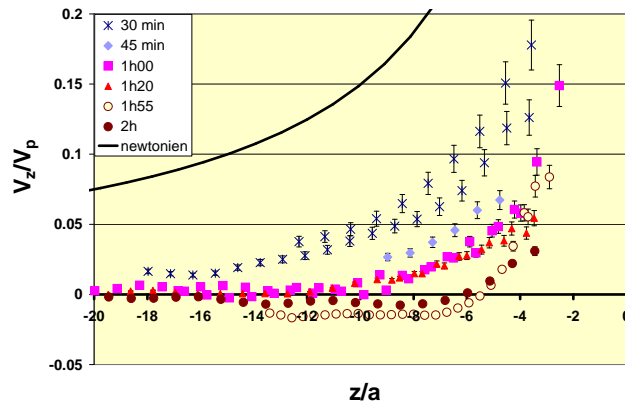


FIG. 3.II.28 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule à la verticale de la particule en fonction de la distance verticale à la particule d'acier en aval de la particule.

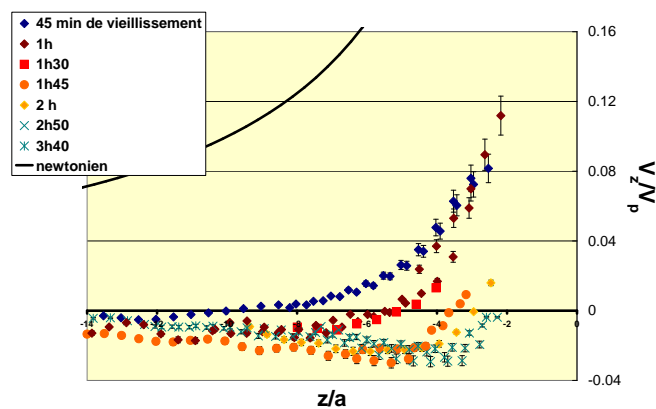


FIG. 3.II.29 – Vitesse verticale normée par la vitesse de la particule à la verticale de la particule en fonction de la distance verticale à la particule de laiton en aval de la particule.

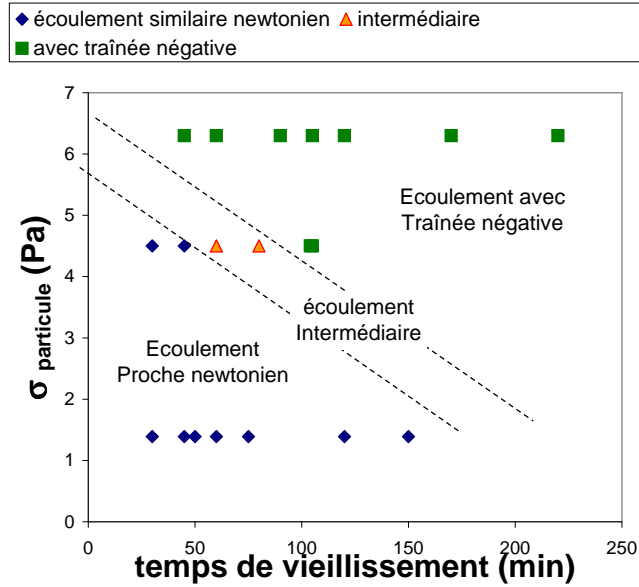


FIG. 3.II.30 – Types d'écoulement observés en fonction du temps de vieillissement et de la contrainte exercée par la particule sur le fluide.

change d'allure avec le temps de vieillissement contrairement aux expériences avec l'aluminium où la diminution de la vitesse reste de même type avec le temps de vieillissement. Nous repérons que le point de stagnation à l'arrière de la particule se rapproche de la particule et que l'amplitude normée du minimum de la vitesse augmente avec le temps de vieillissement. Ceci est différent du comportement observé par M.T. Arigo *et al.* (où les courbes $V_z/V_p = f(z/a)$ se superposent pour différents nombre de Deborah étudiés) dans [61] (représenté figure 1.IV.5 dans le chapitre IV de la première partie). S. Chen *et al.* [68] observent une transition entre un comportement de type newtonien et un comportement avec une traînée négative dont le point de stagnation s'éloigne de la particule au fur et à mesure que les propriétés viscoélastiques augmentent (quand le nombre de De augmente). Nous pouvons estimer le nombre de Deborah des expériences réalisées dans la laponite comme le rapport entre le temps de vieillissement ($t_{relax} \sim t_w$) et le gradient de cisaillement induit par la sédimentation de la particule : $De = t_w V_p / 2a$ que nous pouvons estimer à⁸ :

$$De \sim \Delta\rho^{\frac{1}{n}} a^{\frac{1}{n}} \exp(-t_w/\tau) t_w$$

Ainsi le nombre de Deborah pour un temps de vieillissement donné est plus faible pour l'aluminium que pour l'acier, et plus faible pour l'acier que pour le laiton. Avec le temps de vieillissement, le nombre de Deborah augmente de $t_w=0$ à environ τ puis diminue fortement. Les observations réalisées sont toutes à $t_w > \tau$. Suivant cet argument, le nombre de De devrait donc diminuer avec le temps de vieillissement.

⁸L'évolution de $n(t_w)$ est négligée par rapport à l'exponentielle

Cette évolution est similaire aux expériences de S. Chen pour expliquer l'évolution de la position du point de stagnation avec le temps de vieillissement pour la particule de laiton et pour la particule d'acier à temps long.

La zone en aval de la particule est une zone en élongation. Dans le chapitre sur la rhéologie de la laponite, nous avons tenté de mesurer une viscosité élongationnelle : à temps de vieillissement court, celle-ci peut être estimée à $3\eta_0$ soit entre 2 et 5 Pa s. A temps de vieillissement long, la mesure n'est pas sûre, nous allons donc supposer que la viscosité élongationnelle reste avec une évolution newtonienne : $3\eta_0$.

L'effet direct d'une importante viscosité élongationnelle (vue dans le premier chapitre et prise en compte par différents auteurs B.M. Bush [62, 63], M.T. Arigo [61] et O.G. Harlen [64]) est de retenir la particule et d'augmenter l'étendue spatiale de l'écoulement en aval de la particule au delà du cas newtonien ("extended wake"), ce qui n'est pas observé dans le cas de la laponite. Pour expliquer les phénomènes de traînée négative, ces auteurs comparent les effets élongationnels ($\Delta\sigma_{ext} = \bar{\eta}\dot{\epsilon}$) à des effets dus au cisaillement : soit le rapport $\Delta\sigma_{ext}/N_1$ dans la description de Bush soit dans la description de Harlen le rapport entre $\Delta\sigma_{ext}$ (subi par les particules situées à la verticale de la particule) et la contrainte de rappel élastique des particules désaxées par rapport à la particule. Nous avons observé dans les expériences de rhéologie sur la laponite que la réponse élastique à un créneau de contrainte est importante et augmente avec le temps de vieillissement. Ainsi, lorsque son effet devient de l'ordre de grandeur de l'effet de l'élongation (que nous supposons constant par type de particule), une traînée négative peut apparaître. Après le passage de la particule sous l'effet de la réponse élastique, le fluide qui a été fortement cisailé a tendance à remonter vers sa position initiale. Les effets élastiques doivent être plus fort que les effets élongationnels pour tous les temps de vieillissement étudiés dans la gamme correspondant à la particule de laiton, moins importants puis plus importants dans la gamme correspondant à la particule d'acier et toujours plus faibles dans la gamme correspondant à la particule d'aluminium.

Dans les cas où l'on observe une traînée négative, il est possible de calculer un temps équivalent à la position du point de stagnation ($t_{eq} = z_{stagn}/V_p$). Pour l'acier à temps de vieillissement long, ce temps vaut 25 s. Pour le laiton à temps de vieillissement court, le temps équivalent est de 1 s et à temps de vieillissement long de 100 s. Nous avons mesuré en rhéologie le temps de relaxation pour une sollicitation correspondant aux différentes particules (cf. deuxième partie §I.3.2.4 figure 2.I.23). Nous pouvons repérer à temps de vieillissement long une corrélation entre le temps de relaxation (de l'ordre de 100 s) et ce temps équivalent pour le laiton (100 s). À temps court, cette corrélation ne semble pas faisable, mais peut s'expliquer par un régime sans cesse transitoire en sédimentation où la particule sollicite le fluide pendant trop peu de temps pour être comparée à une expérience de

rhéologie. Finalement, nous avons observé lors des expériences de rhéologie que le temps de Stokes $2a/V$ ne semblait pas le temps pertinent dans nos expériences. Au vu de la complexité et des variations observées du comportement du champ de vitesse autour de la particule ce résultat n'est pas surprenant.

Loin de la particule, puisque nous sommes dans un fluide à seuil⁹, nous pouvons supposer que le fluide n'est plus en écoulement. La mesure n'est pas assez précise pour déterminer si la laponite est en mouvement ou pas.

II.4 Conclusion

Nous avons réalisé un montage et utilisé une technique d'analyse des films qui permettent de sonder l'écoulement autour d'une particule en sédimentation dans une suspension de laponite. Notre montage a été validé par des expériences en milieu newtonien. Dans le cas de la laponite, nous avons déterminé pour les différentes zones autour de la particule, l'évolution du champ de vitesse en fonction du type de particule et du temps de vieillissement. Nous avons alors distingué deux types de comportements limites : soit l'écoulement garde une évolution spatiale proche du cas newtonien si la contrainte exercée par la particule est assez faible et que le temps de vieillissement est court soit l'écoulement présente une traînée négative en aval de la particule (comme présenté sur la figure 3.II.30). Pour une contrainte et un temps intermédiaires, nous avons observé un comportement intermédiaire entre ces deux comportements. Cet effet semble relié à la forte viscoélasticité et la faible viscosité élongationnelle du milieu dans ce régime. Le caractère rhéofluidifiant influence l'écoulement en le confinant plus près de la particule. L'écoulement est aussi très différent du comportement attendu dans un fluide à seuil sans dépendance temporelle (aucune traînée négative n'a été calculée ni observée dans ce cas).

⁹nous en avons mesuré plusieurs caractéristiques

Chapitre III

Étude de la sédimentation d'une particule isolée par biréfringence

Après avoir étudié l'écoulement autour d'une particule isolée en sédimentation, nous avons observé la biréfringence induite par la sédimentation d'une particule isolée. Quand la loi tensio-optique est vérifiée, le tenseur des indices est proportionnel au tenseur des contraintes ; l'intensité de biréfringence devrait donc permettre d'obtenir des informations sur la répartition des contraintes dans le fluide. Dans un premier temps, je décrirai le montage réalisé pour les expériences de biréfringence et sa calibration, dans un deuxième temps les résultats obtenus pour les différentes particules étudiées. Dans un troisième temps, une comparaison qualitative et quantitative entre les résultats de biréfringence et de champ de vitesse sera présentée. Enfin, je discuterai les résultats obtenus.

Sommaire

III.1 Montage	144
III.1.1 Principe du montage	144
III.1.2 Principe de la mesure	145
III.1.3 Protocole expérimental	145
III.1.4 Description des résultats	146
III.1.5 Calibration	147
III.1.6 Limites de mesure	148
III.2 Résultats	148
III.2.1 Images brutes	148
III.2.2 Évolution de la biréfringence maximale	150
III.2.3 Description de la biréfringence à la verticale de la particule	151
III.2.4 Relaxation de la biréfringence après le passage de la particule	151
III.2.5 Analyse à l'horizontale de la particule en fonction du temps de vieillissement	155
III.3 Comparaison avec les résultats en champ de vitesse	158

III.3.1 Comparaison locale avec le champ de vitesse	158
III.3.2 Comparaison de la biréfringence avec le gradient de vitesse et le taux d'élongation	159
III.3.2.1 Discussion dans la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule	160
III.3.2.2 Discussion sur la zone en élongation à la verticale de la particule . . .	160
III.3.3 Discussion	162
III.3.4 Conclusion sur la biréfringence	163
III.4 Conclusion sur la sédimentation d'une particule isolée	163

III.1 Montage

III.1.1 Principe du montage

Nous avons réalisé un montage pour mesurer l'intensité de biréfringence de la laponite autour de la particule qui sédimente. Le montage est présenté sur les figures 3.III.1 et 3.III.2. La cellule de sédimentation est observée entre polariseur et analyseur croisés. Le polariseur et l'analyseur sont montés sur des platines de rotation *micro-contrôle* pour avoir une précision sur l'angle de rotation de l'ordre de la minute d'angle. Une caméra numérique avec 2^{12} niveaux de gris est utilisée pour acquérir le signal, c'est une caméra refroidie qui donne un bon rapport signal/bruit. L'éclairage consiste en une plaque de diodes qui donne un éclairage en lumière blanche très homogène. Un filtre infrarouge est placé devant l'analyseur pour réduire la gamme de longueurs d'ondes de la lumière incidente. Initialement, nous avons positionné un filtre rouge sur la caméra. Nous avons repéré qu'il ne modifiait pas de manière sensible l'intensité de biréfringence. La cellule de sédimentation est de dimensions similaires à celle utilisée pour les expériences de champ de vitesse de même que le bouchon d'introduction des particules. Cependant les faces sont en verre car le plexiglas est biréfringent sous contrainte.

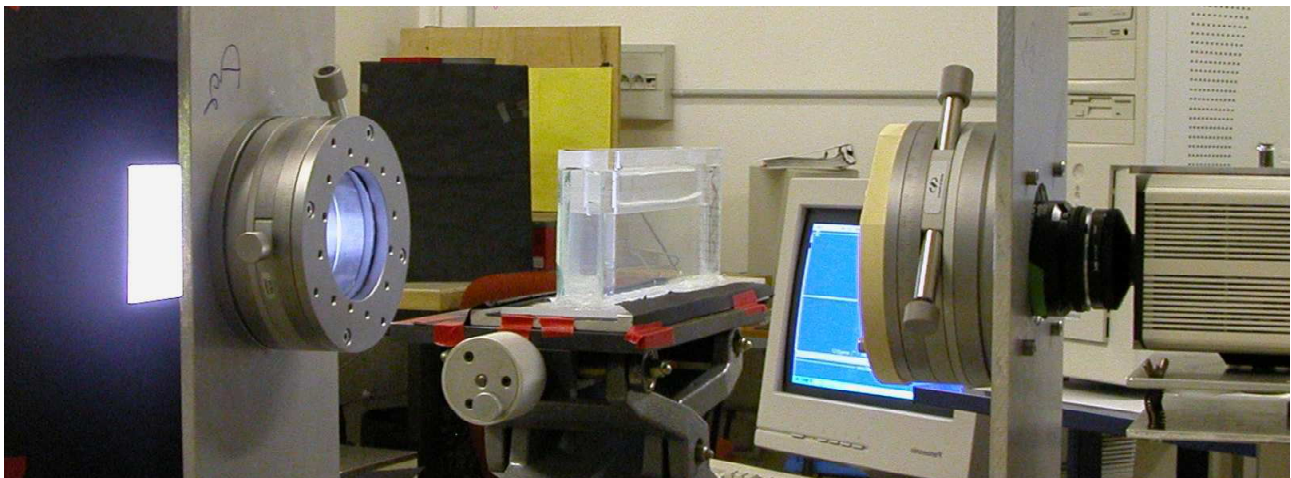


FIG. 3.III.1 – Photo du montage de biréfringence.

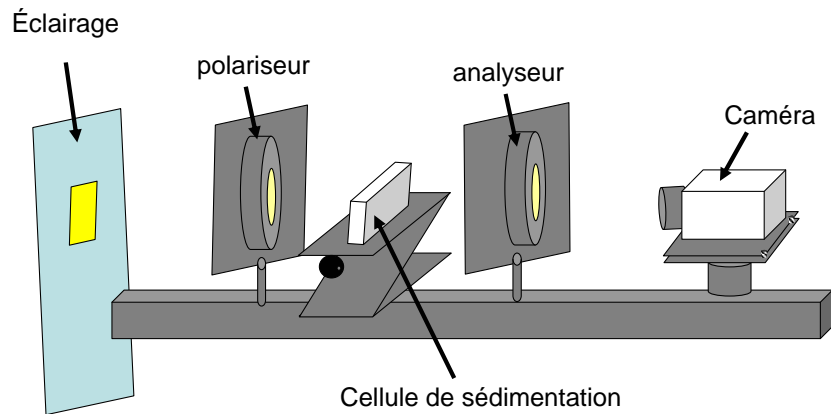


FIG. 3.III.2 – Schéma du montage de biréfringence.

III.1.2 Principe de la mesure

Nous avons choisi un montage simple qui permet une mesure locale en espace. Nous avons cependant besoin de deux mesures pour connaître le retard optique (δ) et l'angle d'extinction (χ). Si entre polariseur et analyseur croisés un milieu biréfringent est traversé, l'intensité en sortie vaudra I_{45} (respectivement I_0) si le polariseur est tourné de 45° (respectivement 0°) par rapport à la verticale sur les équations (3.3.1) et (3.3.2).

$$I_0 = E_0^2 \sin^2(2\chi) \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right) \quad (3.3.1)$$

$$I_{45} = E_0^2 \cos^2(2\chi) \sin^2\left(\frac{\delta}{2}\right) \quad (3.3.2)$$

avec χ mesuré par rapport à la direction verticale, δ le retard optique entre les deux directions de polarisation et E_0 est l'intensité du champ électrique.

III.1.3 Protocole expérimental

Nous avons réalisé les expériences de sédimentation comme les expériences de PIV pour les mêmes temps d'attente et avec un protocole assez proche. La position du polariseur est choisie initialement soit à 45° par rapport à la verticale soit à l'horizontale et n'est pas modifiée pendant l'expérience. Le fluide a été précisaillé à l'agitateur magnétique pendant une heure. Il est ensuite introduit dans la colonne de sédimentation entre polariseur et analyseur croisés. Au bout d'un temps de vieillissement déterminé une particule est lâchée dans le fluide par le bouchon de sédimentation. Le temps d'intégration de la caméra choisi est suffisamment court pour les temps où la vitesse de la particule est importante (c'est-à-dire 25 ms pour les expériences avec la particule de laiton aux temps de vieillissement courts

du laiton), il est choisi plus long pour les particules qui exercent des contraintes plus faibles et pour les temps de vieillissement longs pour avoir assez de signal (jusqu'à 200 ms pour les particules d'aluminium à temps long). La durée de l'expérience varie avec le temps de vieillissement ; deux pas d'acquisition ont été choisis : un pas de temps court pour observer le passage de la particule et un autre plus long pour mesurer la relaxation du signal après le passage de la particule (à partir d'une seconde pour le premier pas de temps et jusqu'à 20 s pour le second).

III.1.4 Description des résultats

À partir des données brutes, il faut convertir le signal pour obtenir les résultats souhaités en termes de retard optique δ , de biréfringence Δn et d'angle d'extinction χ .

$$|\delta| = 2 \sin^{-1} \left(\sqrt{\frac{(I_0 - I_0^0) + (I_{45} - I_{45}^0)}{E_0^2}} \right) \quad (3.3.3)$$

$$|\Delta n| = \frac{\lambda}{2\pi d} |\delta| \quad (3.3.4)$$

$$\chi = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\sqrt{\frac{(I_0 - I_0^0)}{(I_{45} - I_{45}^0)}} \right) \quad (3.3.5)$$

avec E_0^2 estimée dans les expériences de calibration (présenté dans le §suivant).

I_0^0 et I_{45}^0 sont les intensités lumineuses mesurées avant le lâché de la particule dans les expériences à 0° et 45° ; ces intensités correspondent au fond lumineux

La détermination de δ et χ ne pose pas de problème, la détermination de $|\Delta n|$ a nécessité précautions et simplifications. Tout d'abord la longueur d'onde λ est supposée unique et égale à 400 nm (maximum du spectre de transmission des polariseurs). La longueur biréfringente d n'est pas connue initialement contrairement aux cas où l'écoulement (donc la biréfringence induite) est homogène sur tout le chemin optique parcouru. À partir de l'image 3.III.5, nous pouvons repérer que la largeur du signal est de l'ordre de grandeur du diamètre de la particule, puisqu'il y a symétrie de révolution autour de la particule, nous allons donc estimer d au diamètre de la particule. L'estimation de d va permettre de comparer l'ordre de grandeur obtenu pour Δn à d'autres résultats de la littérature, mais cette estimation de d n'est sans doute pas exacte en tout point autour de la particule, Δn n'est donc pas exact. Le signe de Δn , n'est pas déterminable par la méthode utilisée. Pour simplifier l'écriture, Δn sera noté sans les valeurs absolues mais son signe restera indéterminé.

Si la différence entre l'intensité lumineuse sur l'image étudiée et la première image ($I_0 - I_0^0$ ou $I_{45} - I_{45}^0$) est négative, alors le numérateur de l'équation (3.3.3) peut être négatif et à cause de la racine carrée, il n'y a alors pas de solution, la biréfringence est mise à 0.

III.1.5 Calibration

La détermination du retard optique nécessite de connaître l'intensité E_0 . A cet effet, la calibration du montage a été réalisée sans cellule et avec une suspension de laponite au repos. Entre polariseur et analyseur décroisés d'un angle φ , l'intensité lumineuse en sortie vaudra :

$$I = E_0^2 \sin^2 \varphi \quad (3.3.6)$$

Nous avons donc mesuré l'intensité lumineuse sur la caméra pour différents angles φ . Ainsi, nous pouvons estimer la valeur de E_0^2 . Nous avons également mesuré cette valeur pour différents temps d'exposition sur la caméra comme présenté figure 3.III.3. Nous avons réitéré ces mesures régulièrement au cours des expériences de sédimentation dans la laponite pour nous assurer de notre calibration. Nous pouvons donc repérer que les résultats sans cellule et avec cellule et laponite donnent les même résultats (à la précision de la mesure près). Ce résultat confirme en particulier que les plaquettes de laponite ne sont pas orientées avant l'introduction de la particule dans la cellule.

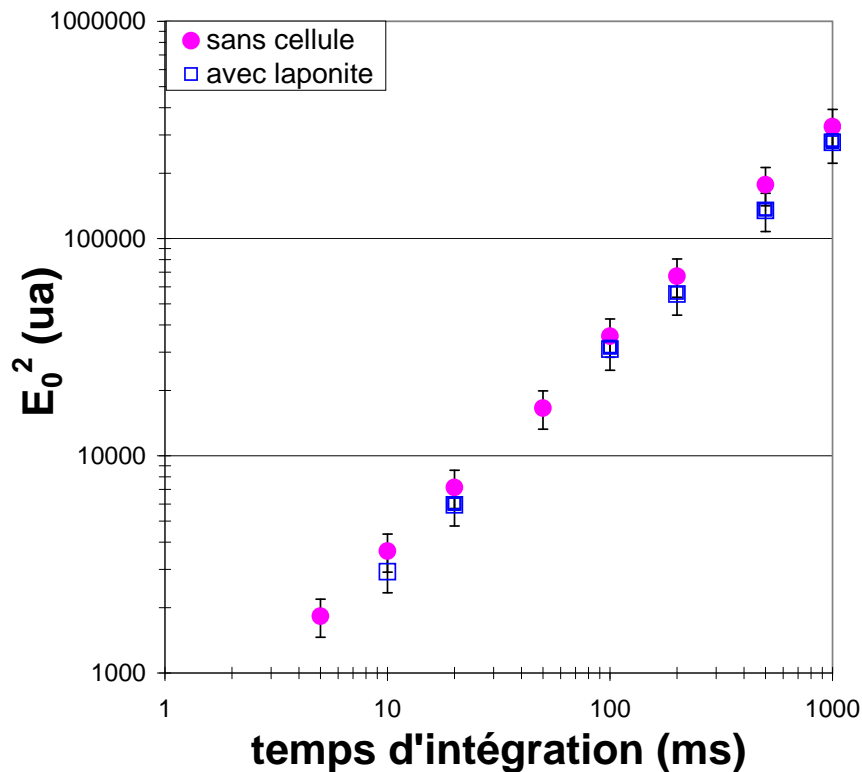


FIG. 3.III.3 – Intensité lumineuse E_0^2 issue du fit des données de $I = E_0^2 \sin \varphi$ pour différentes expériences en fonction du temps d'intégration de la caméra.

III.1.6 Limites de mesure

Le montage utilisé présente des limites de mesure. L'intensité lumineuse mesurée étant assez faible, la limite de mesure est d'un niveau de gris, le signal minimal mesurable est donc de $\Delta n_{min} = 9.10^{-7}$ pour le lait à 45 min de vieillissement (cette mesure dépend de E_0^2 qui dépend du temps d'intégration variant selon les différents temps de vieillissement et les particules étudiés). Les fluctuations d'intensité lumineuse entraînent des fluctuations de Δn de l'ordre de 2.10^{-6} . Ce qui nous donne "l'épaisseur du signal".

L'intensité lumineuse varie comme $\sin^2(\frac{\delta}{2})$ donc la mesure de δ n'est exacte que si le retard optique ne dépasse pas π . Au delà, l'intensité lumineuse diminue et peut présenter des franges. La monotonie du signal sera utilisée pour s'assurer que cette valeur π n'est pas dépassée. Ceci nous donne $\Delta n_{max} = \frac{\lambda}{2d}$ soit $1,3.10^{-4}$ pour l'aluminium et le lait et 2.10^{-4} pour l'acier¹.

Notons enfin que le signe de Δn n'est pas déterminé par les mesures réalisées car l'on mesure $\sin^2(\frac{\delta}{2})$.

III.2 Résultats

III.2.1 Images brutes

Nous avons obtenu des images similaires pour les différentes particules étudiées. Le cas du lait est présenté figures 3.III.4 et 3.III.5. Nous pouvons remarquer une traînée très lumineuse à l'arrière de la particule pour les mesures à 45° et une traînée très noire au même endroit pour les mesures dans l'autre direction.

Nous avons représenté sur les figures 3.III.6 et 3.III.7 la répartition spatiale de l'angle d'extinction χ et du retard optique autour de la particule de lait qui sédimente après 45 min de repos. Nous pouvons repérer qu'à la verticale de la particule l'angle d'extinction est toujours nul. Il atteint une valeur proche de 45° sur deux axes qui passent par la particule et sont orientés à 45° de la verticale. Le retard optique est maximal proche de la particule ; il relaxe plus lentement en aval qu'en amont de la particule. Nous allons dans la suite de ce chapitre analyser en détail l'évolution de la biréfringence (grandeur proportionnelle au retard optique) pour les différents types de particules et les différents temps de vieillissement.

Grâce à la mesure de l'angle d'extinction, il est possible de se faire une image de l'orientation moyenne des plaquettes de laponite autour de la particule telle que celle schématisée figure 3.III.8. En amont, la compression oriente les plaquettes horizontalement alors qu'en aval, l'élongation les oriente verticalement. Ce résultat est intuitif car seule une mesure du signe de δ pourrait le confirmer. Notons

¹en prenant pour d le diamètre de la particule qui sédimente

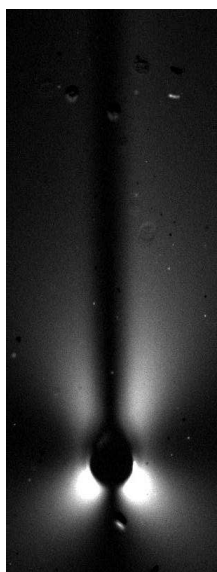


FIG. 3.III.4 – Image brute lorsque les axes des polariseur et analyseur sont en horizontale/verticale. Particule de laiton $t_w = 45$ min.

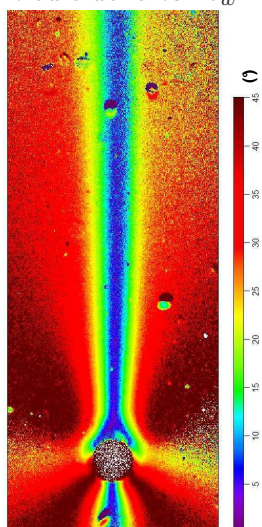


FIG. 3.III.6 – Image de l'angle d'extinction χ autour de la particule en sédimentation (échelle en $^\circ$). Issue des figures 3.III.4 et 3.III.5.



FIG. 3.III.5 – Image brute lorsque les axes des polariseur et analyseur sont à 45° de la verticale. Particule de laiton $t_w = 45$ min.

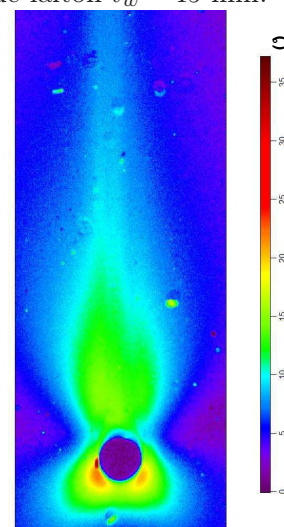


FIG. 3.III.7 – Image du retard optique δ autour de la particule en sédimentation (échelle en $^\circ$). Issue des figures 3.III.4 et 3.III.5.

que l'orientation des plaquettes (comme l'écoulement) est axisymétrique par rapport à l'axe vertical passant par le centre des particules. En dehors de ces zones, l'orientation des plaquettes relaxe vers une orientation aléatoire.

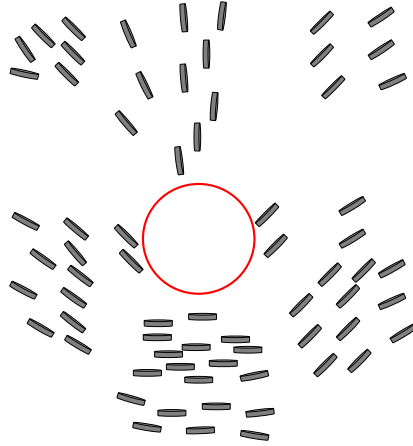


FIG. 3.III.8 – Schéma intuitif de l'orientation des plaquettes de laponite autour de la particule en sédimentation. Les plaquettes de laponite ne sont pas à l'échelle par rapport à la taille de la particule. Les plaquettes ne sont pas forcément individualisées. Notons que l'orientation des plaquettes est axisymétrique par rapport à l'axe passant par le centre de la particule.

III.2.2 Évolution de la biréfringence maximale

Nous avons repéré pour toutes les expériences (en horizontale et à 45°) les valeurs maximales de l'intensité lumineuse obtenue. Pour les expériences à 45° , l'intensité lumineuse possède deux maxima à la verticale de la particule en amont et en aval à ces deux endroits sur l'image en horizontale l'intensité lumineuse est très faible, il est donc possible d'estimer² Δn_{max} à partir de cette image seulement à l'aide des équations (3.3.1) et (3.3.2). En configuration horizontale des polariseurs, l'intensité est maximale sur une droite passant par le centre de la particule et à 45° de la verticale comme nous pouvons le voir sur la figure 3.III.4. De même que précédemment, l'intensité lumineuse à 45° est très faible, il est possible d'estimer Δn_{max} à partir de cette image seulement. Les résultats sont assez dispersés en fonction du temps de vieillissement, nous avons donc choisi de représenter les résultats également en fonction de la vitesse de la particule en échelle logarithmique et en ordre inverse ($V_p = V_0 \exp(-t_w/\tau)$ donc $\ln V_p = \ln V_0 - \frac{t_w}{\tau}$ puisque V_0 varie beaucoup d'un échantillon à l'autre, on peut considérer un "temps de vieillissement effectif" : $t_{eff} = -\ln V_p = -\ln V_0 + \frac{t_w}{\tau}$). Les figures 3.III.9 présentent les résultats

²Les résultats sont dépendants de la longueur biréfringente d qui est seulement estimée, ils sont à prendre avec précaution lorsque l'on compare les résultats pour des particules de tailles différentes.

de Δn_{max} en fonction de ce temps effectif ($=\log V_p$) à la verticale de la particule (résultats notés "45° amont" et "45° aval") et à 45° en amont (résultats notés "horizontal"). Nous pouvons repérer que le maximum de biréfringence est identique quelle que soit la direction de polarisation. Pour une particule donnée, nous obtenons une diminution importante de la biréfringence avec le temps de vieillissement. Le fait que la biréfringence diminue avec le temps de vieillissement peut se comprendre comme le fait que les plaquettes de laponite sont de plus en plus "coincées" et s'alignent de plus en plus difficilement lors de la sédimentation d'une particule. Cette évolution est attendue quelle que soit la structure de la laponite : si les particules s'agrègent, les particules au sein de l'agrégat vont difficilement s'orienter, si l'interaction est vitreuse, le système rend plus difficile les mouvements des particules uniques.

Pour la particule d'aluminium, les résultats sont plus dispersés à cause d'un signal lumineux plus faible mais la biréfringence est toujours significativement plus faible en amont (symboles rouge vides) qu'en aval (symboles rouge pleins) contrairement aux autres particules. Pour la particule d'acier la biréfringence est un plus différente entre amont et aval à temps court qu'à temps long. La valeur maximale atteinte est de l'ordre de grandeur des valeurs trouvées par G. Schmidt *et al.* (-12 ± 8.10^{-6}) pour une suspensions de laponite à 3%_{poids}. Notons également que Δn_{max} augmente avec la contrainte exercée par la particule comme nous l'attendions par la loi tensio-optique.

III.2.3 Description de la biréfringence à la verticale de la particule

Pour les différentes particules, nous avons calculé la biréfringence (Δn) à la verticale de la particule en fonction de la distance à la particule pour toutes les images du film (même sur les images où la particule est absente) pour toutes les particules étudiées. Nous avons reconstruit la distance (z_i) à la particule sur les différentes expériences en décrivant cette distance comme la distance à la particule sur une image prise au temps (t_0) où l'on voit la particule (z_0) plus le déplacement de la particule en chaque point $z_i = z_0 - (t_i - t_0)V_p$. La figure 3.III.10 représente la biréfringence en fonction de la distance à la particule (distance comptée comme positive en amont et négative en aval comme nous l'avons fait dans le chapitre précédent). Sur ces figures, la biréfringence en aval relaxe beaucoup plus lentement qu'en amont. Dans le paragraphe suivant, nous allons décrire en détails la relaxation en aval.

III.2.4 Relaxation de la biréfringence après le passage de la particule

La figure 3.III.11 représente toute la relaxation en aval en fonction de la distance à la particule. La biréfringence relaxe avec le temps jusqu'à zéro (la différence d'intensité lumineuse mesurée entre l'image autour de $z/a = -300$ figure 3.III.11 et l'image initiale est en moyenne nulle). Nous avons également converti cette distance en temps avant le passage de la particule via la vitesse de la particule (figure 3.III.12). La décroissance de Δn avec le temps peut être décrite par une exponentielle étirée

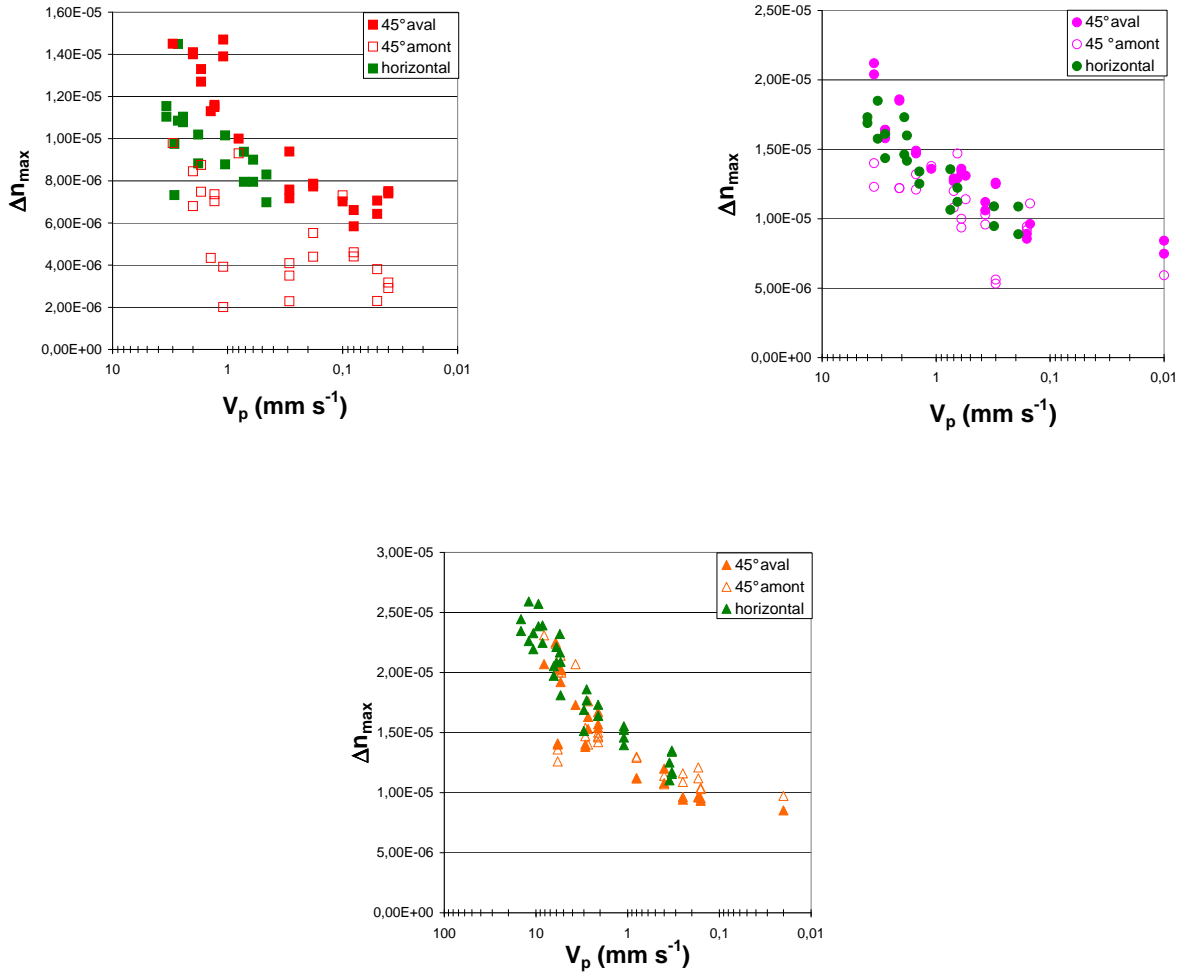


FIG. 3.III.9 – Biréfringence maximale en fonction du temps de vieillissement effectif ($= -\log V_p$). En haut à gauche particule d'aluminium, en haut à droite particule d'acier, en bas particule de laiton.

décroissante comme pour les expériences de rhéologie (expériences de relaxation après l'application d'un créneau de contrainte simulant le passage d'une particule) selon l'équation (3.3.7). Le temps physique moyen correspondant à cette description est rappelé sur l'équation (3.3.8).

$$\Delta n = \Delta n_{max} \exp\left(\frac{-t}{\tau_{exp}}\right)^\beta \quad (3.3.7)$$

$$t_{moyen} = \frac{\tau_{exp}}{\beta} \Gamma\left(\frac{1}{\beta}\right) \quad (3.3.8)$$

avec τ_{exp} et β des paramètres à déterminer, Γ est connue³.

Nous avons alors déterminé les paramètres τ_{exp} et β pour toutes les expériences et représenté ces paramètres pour les différentes particules sur la figure 3.III.13. Les résultats montrent une augmentation exponentielle du temps caractéristique de biréfringence avec le temps effectif de vieillissement ($= \log V_p$). Cette augmentation peut être donc décrite par une exponentielle croissante : $t_{moyen} \sim \exp(t_w/\tau_{moyen})$. Le temps caractéristique τ_{moyen} peut être évalué à 17 min pour les par-

³fonction définie par $\Gamma(1+x) = x\Gamma(x)$ et $\Gamma(1) = 1$.

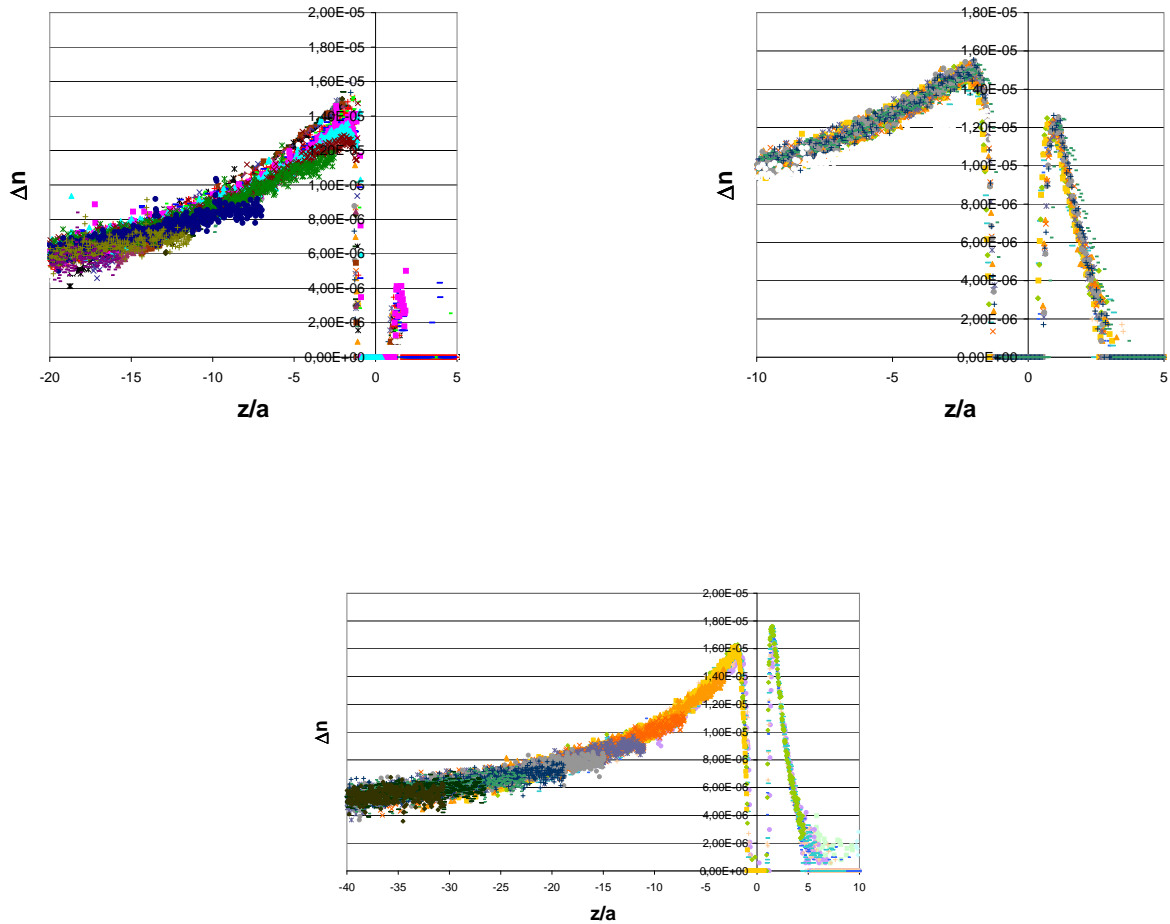


FIG. 3.III.10 – Biréfringence en fonction de la distance à la particule (positive en amont, négative en aval). Les différentes couleurs correspondent à des images différentes. En haut à gauche particule d'aluminium pour $t_w = 48$ min, en haut à droite particule d'acier pour $t_w = 1$ h, en bas particule de laiton pour $t_w = 45$ min.

ticules d'aluminium, 21 min pour les particules d'acier et 20 min pour les particules de laiton soit proche de 20 min pour chaque type de particule. De plus, quel que soit le type de particule, si une particule sédimente avec une vitesse de sédimentation donnée, le temps caractéristique de biréfringence reste identique. Nous pouvons également comparer ces paramètres aux résultats obtenus en diffusion de la lumière de la littérature, en particulier aux expériences réalisées par S. Jabbari-Farouji *et al.* sur la laponite [20] comme nous l'avons vu dans le chapitre bibliographique sur la laponite car les dynamiques de diffusion de rotation et de translation sont mesurées dans cette étude. En biréfringence, la relaxation est liée à la diffusion rotationnelle des particules. Les fonctions de corrélation mesurées relaxent en une exponentielle décroissante avec un temps caractéristique très court plus une exponentielle étirée décroissante avec un temps caractéristique τ_2 qui varie entre 1 et 100 ms et un exposant β . Ce temps τ_2 augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement comme pour ce temps de relaxation

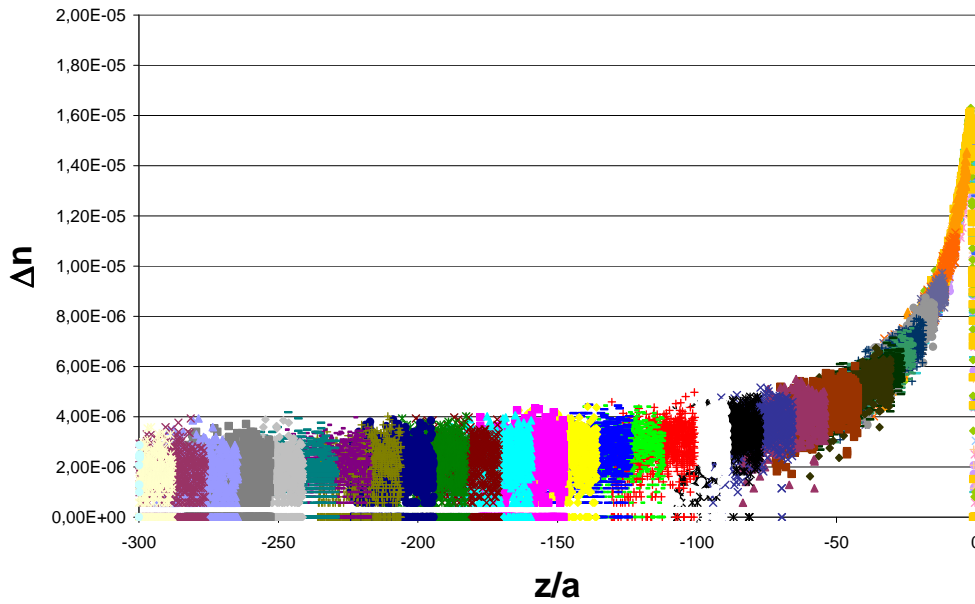


FIG. 3.III.11 – Biréfringence à la verticale de la particule en fonction de la distance à la particule ($z > 0$ avant le passage de la particule comme dans les représentations en champ de vitesse). Les différentes couleurs correspondent à différentes images (avant et après le passage de la particule). Particule de laiton après 45 min de repos.

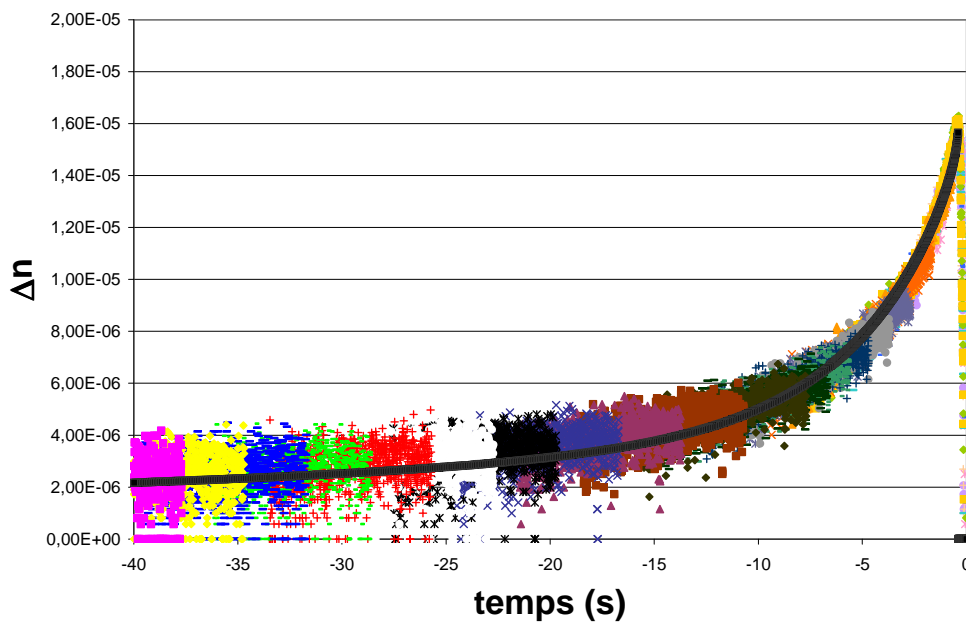


FIG. 3.III.12 – Biréfringence à la verticale de la particule en fonction du temps avant le passage de la particule ($t > 0$ avant le passage de la particule). La courbe noire représente l'équation (3.3.7) ajustée aux paramètres expérimentaux. Particule de laiton après 45 min de repos.

de biréfringence. Le paramètre β mesuré dans l'étude citée diminue avec le temps de vieillissement ; en biréfringence (figure 3.III.13), nous ne trouvons pas de variation significative sans doute à cause de la mauvaise précision de la mesure. Les résultats sont très dispersés en particulier dans le cas de l'aluminium car le signal est faible. Les valeurs obtenues pour l'acier et le laiton sont toutefois dans le même intervalle de valeurs que celle de l'étude citée (pour des temps de vieillissement équivalents).

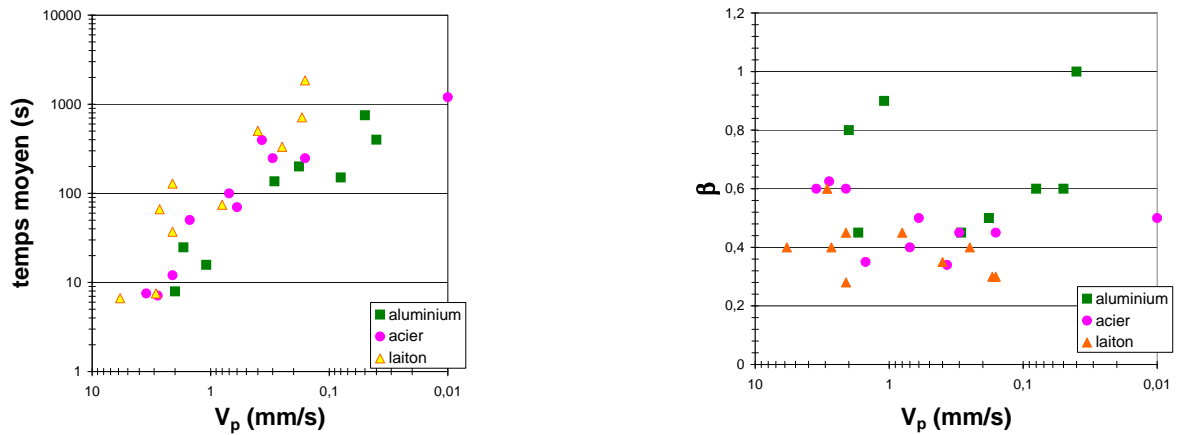


FIG. 3.III.13 – Évolution du temps moyen de biréfringence (à gauche) et de l'exposant β (à droite) obtenus après fit selon les équations (3.3.7) et (3.3.8) (échelles logarithmique) en fonction du temps de vieillissement effectif du fluide ($= -\log V_p$).

III.2.5 Analyse à l'horizontale de la particule en fonction du temps de vieillissement

Nous avons mesuré le retard optique (δ) et l'angle d'extinction (χ) sur des horizontales situées à différentes distances du centre de la particule pour plusieurs temps de vieillissement et pour les trois particules étudiées. Nous avons repéré le même type d'évolution pour les différentes particules, nous allons donc analyser en détail le comportement pour la particule de laiton en fonction de la distance à la particule et du temps de vieillissement du fluide (figures 3.III.14 à 3.III.19). L'objectif de cette analyse est de comparer ultérieurement ces résultats à ceux de champ de vitesse décrits dans le chapitre précédent.

Le retard optique évolue pour des valeurs de z/a de -16 à +2 de la même manière : il est maximal à la verticale de la particule et diminue quand on s'éloigne horizontalement de la particule. L'angle d'extinction (χ) est toujours nul à la verticale de la particule ; quand on s'éloigne de la particule horizontalement, il augmente assez vite jusqu'à une valeur maximale assez proche de 45° puis relaxe doucement. La distance entre le centre de la particule et le point de valeur maximale de χ est d'autant

Retard optique δ et angle d'extinction χ à différentes distances verticales de la particule pour différents temps de vieillissement en fonction de la distance horizontale à la particule (à 60 et 120 min les particules vont à la même vitesse)

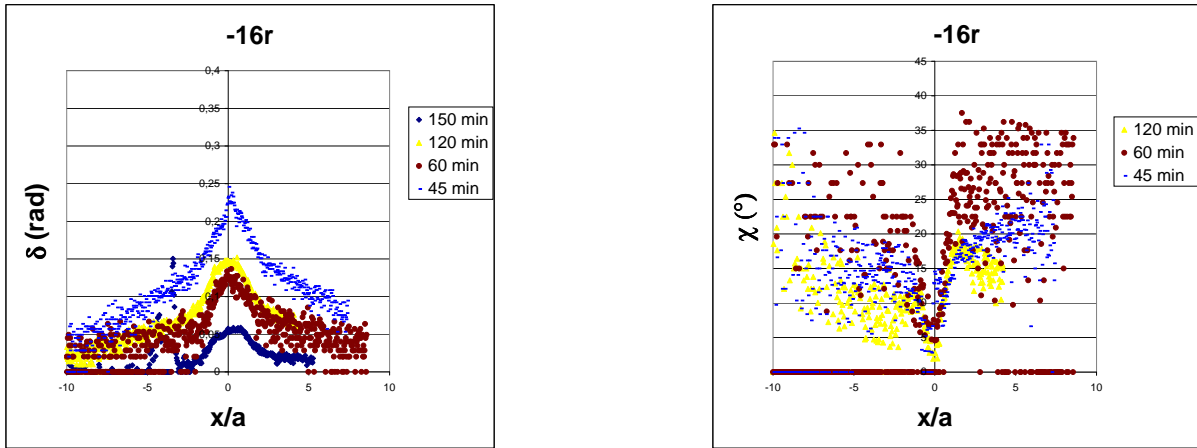


FIG. 3.III.14 – À 16 rayons de la particule en aval.

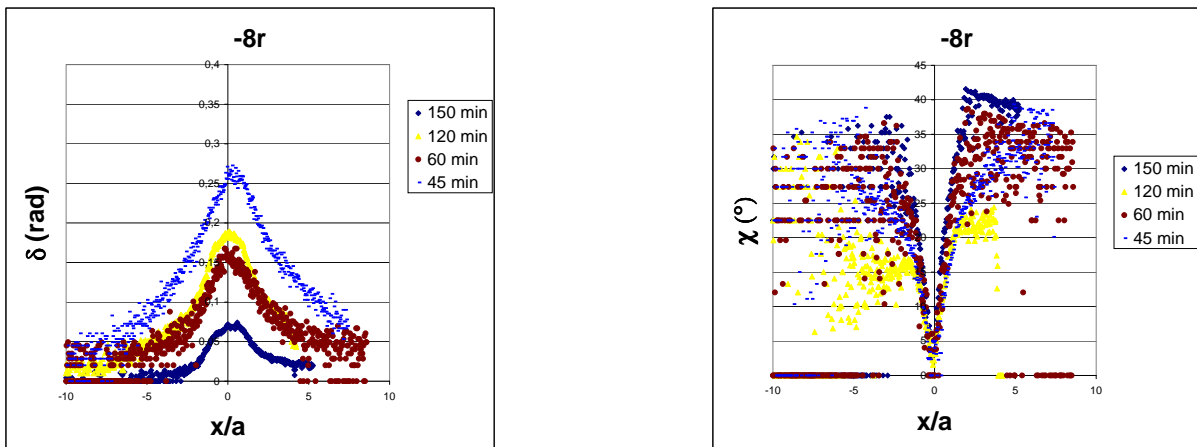


FIG. 3.III.15 – À 8 rayons de la particule en aval.

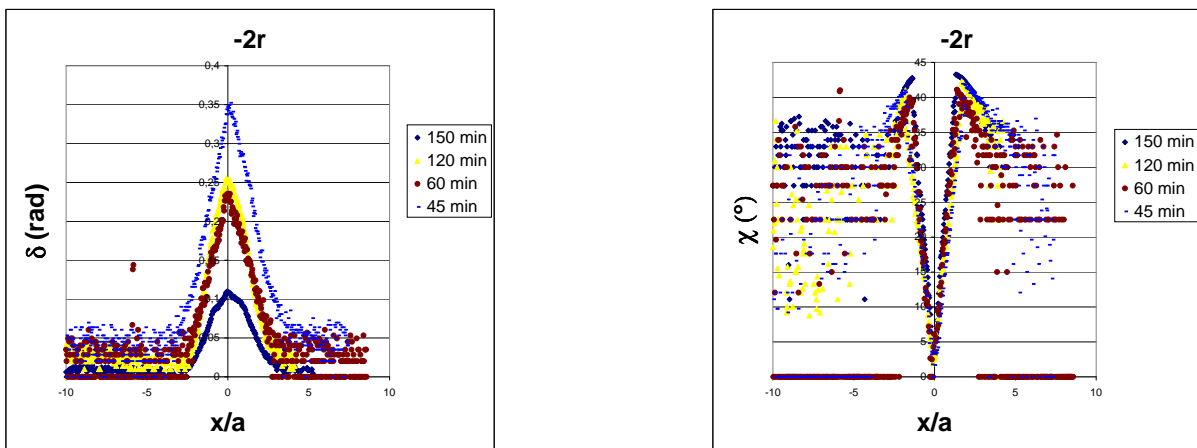


FIG. 3.III.16 – À 2 rayons de la particule en aval.

Suite de la page précédente

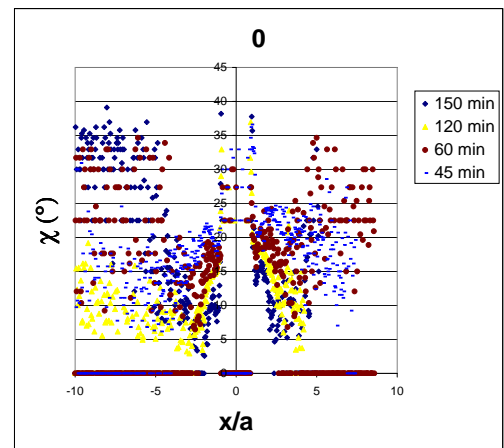
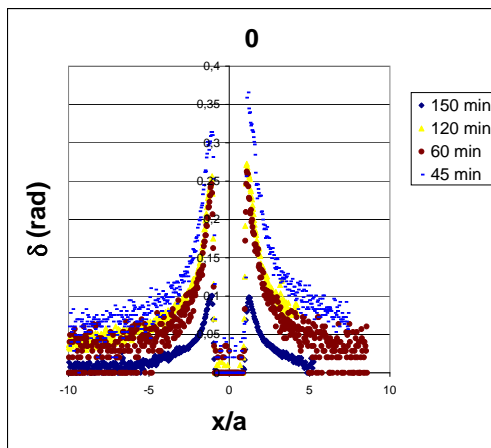


FIG. 3.III.17 – À l'horizontale de la particule.

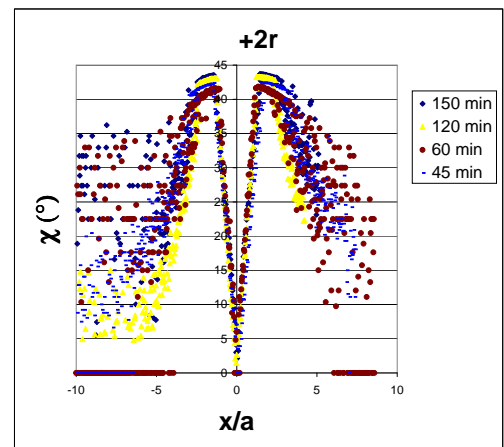
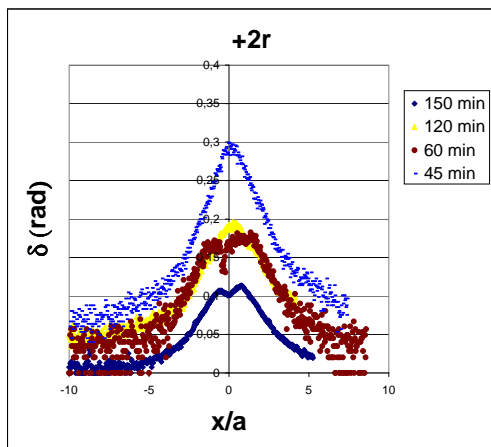


FIG. 3.III.18 – À 2 rayons de la particule en amont.

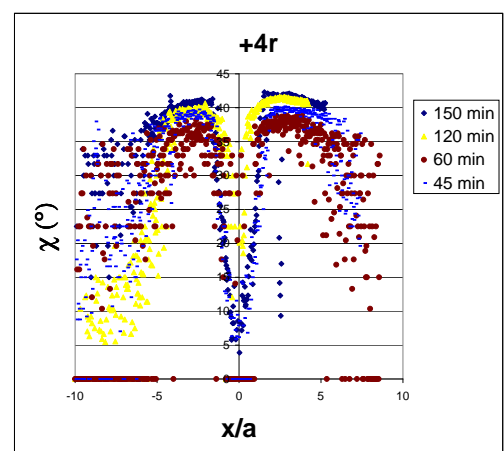
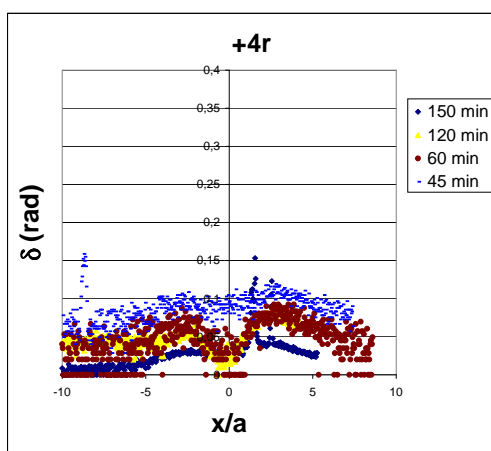


FIG. 3.III.19 – À 4 rayons de la particule en amont.

plus grande qu'on s'éloigne de la particule, elle est également d'autant plus grande que la particule exerce une contrainte faible sur le fluide. En amont de la particule, le retard optique est important. À 4 rayons de la particule, il augmente puis diminue quand on s'éloigne de la particule. En aval, nous pouvons repérer un retard optique important avec un maximum du même ordre de grandeur que mesuré en amont pour ces particules de laiton (nous avons discuté des valeurs des maxima précédemment). Il diminue ensuite lentement. Avec le temps de vieillissement, le retard optique diminue autour de la particule. La mesure de l'angle d'extinction χ est assez bruitée. Il atteint presque la valeur maximale de 45° à 2 rayons en amont et en aval.

III.3 Comparaison avec les résultats en champ de vitesse

Nous avons pu repérer précédemment que le champ de vitesse autour de la particule en sédimentation évolue avec le temps de vieillissement de manière différente pour les particules utilisées. Pour les particules de laiton, le champ de vitesse présente toujours une traînée négative; pour les particules d'aluminium, le champ de vitesse ne présente pas de traînée négative; pour les particules d'acier, le champ de vitesse ne présente pas de traînée négative à temps de vieillissement court (45 min) et présente une traînée négative à temps de vieillissement long (120 min). Nous allons dans un premier temps comparer l'évolution de la biréfringence en fonction du temps de vieillissement avec l'évolution du champ de vitesse (en particulier quand il y a apparition d'une traînée négative). Dans un deuxième temps, nous présenterons des estimations du taux de cisaillement et d'élongation autour de la particule à celles de biréfringence locale. Enfin, nous discuterons les résultats obtenus.

III.3.1 Comparaison locale avec le champ de vitesse

Pour les différents types de particule, nous avons mesuré le champ de vitesse et la biréfringence sur la verticale passant par le centre de la particule. Les figures 3.III.20, 3.III.21 et 3.III.22 présentent le champ de vitesse (en couleur bleu) et la biréfringence⁴ (en couleur rouge) pour les différentes particules étudiées. Nous pouvons remarquer que l'allure de la courbe de biréfringence est similaire pour les différentes particules alors que le champ de vitesse évolue fortement. Les variations de la biréfringence sont beaucoup moins confinées que celles du champ de vitesse. Contrairement aux résultats de S. Chen *et al* [68] où la position du point de stagnation correspond à la position du maximum de biréfringence, la présence d'une traînée négative n'influe pas sur le signal de biréfringence à l'aval de la particule. Dans l'article de S. Chen, la correspondance entre le point de stagnation et le maximum de biréfringence est attribuée au fait qu'en ce point le temps de résidence des micelles est très long et de plus il correspond à un taux d'élongation maximal. Cependant, si on compare l'amont et l'aval de la particule, on a pour

⁴obtenue à partir de l'image à 45° uniquement car $\chi=0$.

l'aluminium un Δn en amont qui est significativement plus faible qu'en aval alors que pour le laiton, les Δn ont toujours des valeurs proches. Pour l'acier, il n'est pas facile de conclure mais il semble que l'écart soit plus important à temps de vieillissement court ce qui semble indiquer une différence entre les différents écoulements.

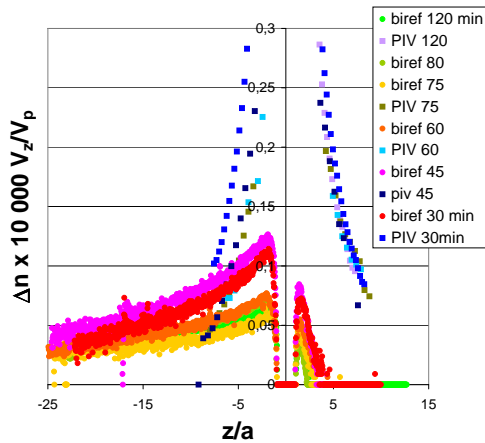


FIG. 3.III.20 – Evolution de la biréfringence et du champ de vitesse en fonction de la position à la particule d'aluminium.

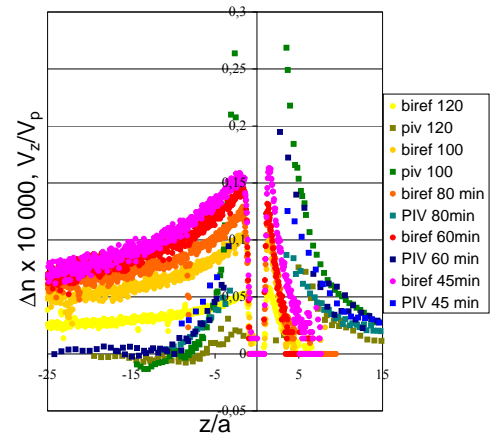


FIG. 3.III.21 – Evolution de la biréfringence et du champ de vitesse en fonction de la position à la particule d'acier.

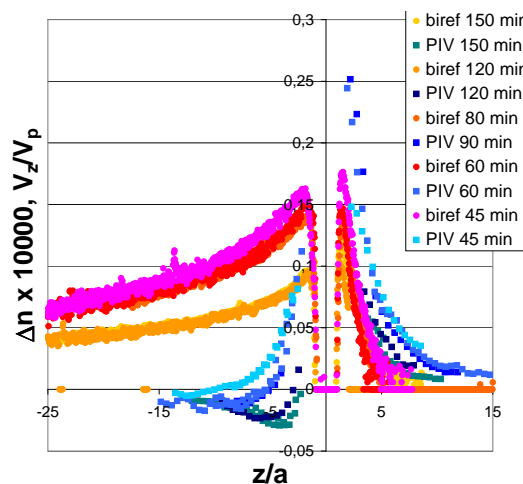


FIG. 3.III.22 – Evolution de la biréfringence et du champ de vitesse en fonction de la position à la particule de laiton.

III.3.2 Comparaison de la biréfringence avec le gradient de vitesse et le taux d'élongation

Nous avons vu dans le chapitre bibliographique sur la biréfringence que la biréfringence induite par écoulement permet de mesurer les contraintes dans le fluide via la loi tensio-optique. Celle-ci est connue

de manière simple dans le cas du cisaillement simple et de l'élongation. Nous avons donc pour simplifier considéré uniquement les deux zones où l'écoulement est simple : à l'horizontale de la particule qui est une zone en cisaillement et à la verticale de la particule qui est une zone en compression en amont et en élongation en aval. De plus, l'écoulement est axisymétrique, ainsi la contrainte n'est pas constante sur tout le chemin optique. La loi tensio-optique ne s'applique pas directement.

III.3.2.1 Discussion dans la zone en cisaillement à l'horizontale de la particule

Pour les différents types de particule, nous avons calculé le gradient de vitesse à l'horizontale de la particule ($\dot{\gamma} = \frac{\partial V_z}{\partial x}$) à partir des données de champ de vitesse présentées dans le chapitre précédent (il faut être prudent car les données à l'horizontale de la particule sont bruitées⁵). Les résultats pour le gradient de cisaillement sont très bruités en particulier pour les particules d'aluminium et d'acier, nous analyserons donc seulement les données avec la particule de laiton. La biréfringence varie surtout dans une zone très proche de la particule où la mesure du taux de cisaillement n'a pas été possible. Ailleurs, elle varie assez peu contrairement au gradient de vitesse qui varie d'un ordre de grandeur. Nous pouvons cependant comparer les valeurs maximales obtenues autour de la particule de laiton pour le gradient de cisaillement et pour la biréfringence via la rhéologie et la loi tensio-optique : $\sigma = (\Delta n \sin 2\chi)/2C$. Nous pouvons estimer le coefficient tensio-optique (C) à l'aide des expériences de P. Mongondry [14] à $9.10^{-7} \text{ Pa}^{-1}$ (pour une concentration de 2,5 % en masse). Le coefficient tensio-optique varie seulement de 4 unités en 7 jours, il est alors supposé constant pendant la durée des expériences réalisées. Il est également possible d'estimer les contraintes correspondant aux valeurs de gradient de cisaillement calculées à l'aide des expériences de rhéologie réalisées pour les différents temps de vieillissement (rampe de contrainte non présentée dans ce manuscrit). Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 3.III.1, on observe une diminution plus rapide avec le temps de vieillissement de la contrainte estimée à partir des données de champ de vitesse que de celles estimées à partir des expériences de biréfringence. Nous pouvons donc conclure que cette comparaison est dans le bon ordre de grandeur à faible temps de vieillissement et qu'à temps de vieillissement long cette comparaison n'est plus bonne où il est probable que la loi tensio-optique ne s'applique plus. De plus, la mesure n'est pas réalisée en régime stationnaire. En aval en particulier, les plaquettes ont subi toute une "histoire" ce qui peut modifier le signal de biréfringence.

III.3.2.2 Discussion sur la zone en élongation à la verticale de la particule

Nous avons également calculé un taux d'élongation à partir des expériences de champ de vitesse ($\dot{\epsilon} = \frac{\partial V_z}{z}$) nous l'avons comparé aux expériences de biréfringence $\Delta\sigma_{ext} = (\Delta n \cos 2\chi)/C$ en fonction

⁵Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, par l'ombre portée de la particule et la tache de diffusion sur la particule.

TAB. 3.III.1 – Comparaison des données de biréfringence et champ de vitesse dans la zone de cisaillement à l'horizontale de la particule. Particule de laiton.

t_w (min)	$\Delta n \sin(2\chi)$	$\dot{\gamma}_{\max}(PIV)$ (s^{-1})	σ_{biref} (Pa)	σ_{rheol}/PIV (Pa)
45	$8,1 \cdot 10^{-6}$	0,30	4,7	3
60	$6,4 \cdot 10^{-6}$	0,3	3,7	3
80	$6,4 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-3}$	3,7	0,5
120	$3,4 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-3}$	2,0	0,2

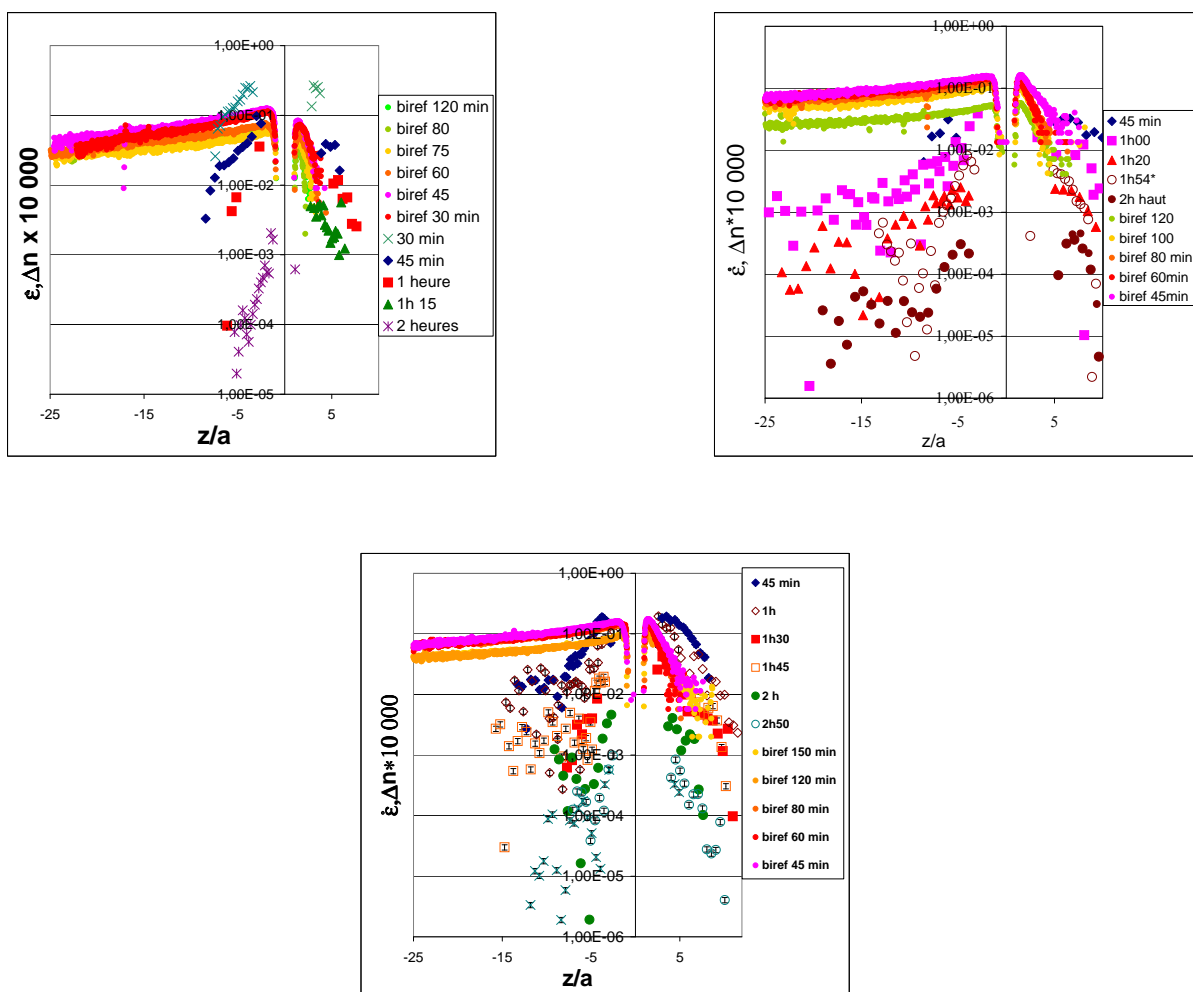


FIG. 3.III.23 – Biréfringence locale et taux d'élongation (en valeur absolue) calculé à partir des expériences de champ de vitesse ($\dot{\epsilon} = \frac{\partial V_z}{z}$) en fonction de la distance verticale à la particule (échelle logarithmique en ordonnée). En haut à gauche particule d'aluminium, en haut à droite particule d'acier, en bas particule de laiton.

de la distance à la particule sur les figures 3.III.23. En amont de la particule, le taux d'élongation (ici compression) varie avec z qualitativement comme la biréfringence (seulement un plus lentement à

TAB. 3.III.2 – Comparaison des contraintes issues de la biréfringence via la loi tensio-optique entre l'amont et l'aval de la particule.

t_w (min)	amont compression			aval élongation		
	Δn	σ (Pa)	$\dot{\epsilon}_{\max}$ (s ⁻¹)	Δn	σ (Pa)	$\dot{\epsilon}_{\max}$ (s ⁻¹)
45	$2,2 \cdot 10^{-5}$	26	0,18	$2,2 \cdot 10^{-5}$	26	0,2
60	$2,0 \cdot 10^{-5}$	23	0,13	$2,1 \cdot 10^{-5}$	24	0,14
90	$1,6 \cdot 10^{-5}$	18	0,04	$1,7 \cdot 10^{-5}$	20	0,008
120	$1,5 \cdot 10^{-5}$	17	0,005	$1,6 \cdot 10^{-5}$	18	0,005

proximité de la particule et un plus vite plus loin) ; en aval (zone en élongation) il évolue plus vite avec z que la biréfringence. Nous avons converti les valeurs maximales de la biréfringence via la loi tensio-optique en élongation. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.III.2. Les expériences de mesures de viscosité élongationnelle ne permettent pas de convertir les taux d'élongation en contrainte. Nous pouvons seulement repérer que le taux d'élongation évolue beaucoup plus vite que la contrainte quand le temps de vieillissement augmente, cette dernière restant toujours du même ordre de grandeur. Ceci peut être compris comme une contrainte qui reste presque constante une fois établie et qui relaxe très lentement avec le temps et la distance à la particule. Cette relaxation lente peut venir de l'aspect fluide "à seuil" dans le fluide : la biréfringence reste presque constante dans le fluide donc la contrainte relaxe très lentement dans le fluide. Notons également les valeurs élevées déduites de la loi tensio-optique : ces contraintes sont plus importantes que la contrainte exercée par la particule.

III.3.3 Discussion

Nous avons tout d'abord analysé la dynamique de relaxation de la biréfringence après le passage de la particule. Le temps caractéristique (t_{moyen}) de cette dynamique a été étudié pour les différentes particules. Nous avons trouvé que quel que soit le type de particule une vitesse de particule donnée conduisait à un temps de relaxation donné (figure 3.III.13). Ceci est très différent de ce qui a été observé dans les expériences de champ de vitesse : par exemple la particule d'aluminium sur la figure 3.II.12 et la particule de laiton sur la figure 3.II.20 sédimentent avec une vitesse similaire tandis que les types d'écoulements autour des particules sont distincts (présence d'une traînée négative très proche de la particule dans le cas du laiton et pas de traînée négative pour l'aluminium) donc pour les deux particules le temps caractéristique de biréfringence est le même alors que les écoulements respectifs sont très variés.

La biréfringence à la verticale de la particule est ainsi très différente du champ de vitesse pour tous

les temps de vieillissement. La loi tensio-optique n'est pas toujours vérifiée [14] à temps de vieillissement long. Dans les expériences réalisées, il est possible de se demander si la loi tensio-optique est encore vérifiée à cause en particulier de l'aspect "fluide à seuil". En effet, en amont comme en aval, en élongation comme en cisaillement, la biréfringence évolue beaucoup plus lentement que l'écoulement. La contrainte relaxe assez peu avec le temps.

III.3.4 Conclusion sur la biréfringence

Nous avons pu mesurer la biréfringence dans le fluide autour de la particule en sédimentation. Elle évolue avec le temps de vieillissement du fluide en diminuant de manière significative signe que les plaquettes sont de plus en plus "coincées". Le temps de relaxation augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement. Cette évolution temporelle de la relaxation de biréfringence est similaire aux résultats de diffusion de la lumière de la littérature. En comparant les résultats à ceux de champ de vitesse, nous pouvons remarquer que la biréfringence relaxe moins vite que le taux de cisaillement ou d'élongation. Malgré les limitations de mesure (en particulier puisque l'écoulement est axisymétrique, on moyenne sur un écoulement non homogène), les informations obtenues complètent bien les résultats sur le champ de vitesse obtenu par PIV.

III.4 Conclusion sur la sédimentation d'une particule isolée

La sédimentation d'une particule isolée dans la laponite a été étudiée sous différents aspects : vitesse de la particule, champ de vitesse autour de la particule et biréfringence induite par la sédimentation d'une particule. Les particules sédimentent avec une vitesse qui diminue en exponentielle décroissante avec le temps de vieillissement et atteignent une position d'arrêt. Le champ de vitesse autour des particules dépend à la fois de la contrainte exercée par la particule et du temps de vieillissement du fluide. Le champ de vitesse varie entre deux comportements limites : une évolution spatiale quasi-similaire entre l'amont et l'aval (assez proche du cas newtonien) ou une traînée négative. Dans tous les cas, celui-ci se confine autour de la particule avec le temps de vieillissement. L'étude de la biréfringence permet de sonder la relaxation du fluide après le passage de la particule. Le temps caractéristique correspondant augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement. Contrairement à ce que l'on attendait, la dynamique de la biréfringence et du champ de vitesse sont distinctes.

Quatrième partie

Étude de la sédimentation de plusieurs particules

Chapitre I

Sédimentation de doublets de particules dans la laponite

L'étude de la sédimentation de doublets de particules (2 particules identiques) donne des informations sur l'interaction entre deux particules. Dans le cas newtonien à faible nombre de Reynolds, l'interaction hydrodynamique entre particules peut être déduite de l'additivité des champs de vitesse autour de chaque particule. Ainsi un doublet de particules va plus vite qu'une particule isolée et le doublet est stable (les particules restent à la même distance pendant la sédimentation). Le cas de la sédimentation de deux particules dans des solutions polymères a été beaucoup étudié. Lorsqu'il y a rhéofluidification et si les particules sont suffisamment proches, elles s'agrègent. La sédimentation de doublets de particules dans la laponite a été étudiée ici dans deux cas particuliers : lorsque l'écoulement autour d'une particule isolée présente une traînée négative (particules de laiton après 60 min de repos) et en absence de traînée négative autour d'une particule isolée (particule d'aluminium après 45 min de repos). Nous avons, dans les deux cas, observé la formation possible d'agrégats. Dans un premier temps, je présenterai le montage expérimental et sa validation dans le cas newtonien. Dans un deuxième temps les résultats obtenus seront décrits à travers la dynamique observée et le déplacement relatif entre particules, enfin je discuterai ces résultats. Dans ce chapitre, l'indice 1 et la couleur rouge correspondent à la première particule lâchée (particule aval), l'indice 2 et la couleur verte correspondent à la seconde particule lâchée (particule amont). Ce travail a fait l'objet d'une publication dans *Physical Review E* [81].

Sommaire

I.1	Dispositif expérimental	168
I.1.1	Protocole expérimental	168
I.1.2	Montage	168
I.1.3	Validation dans le cas newtonien	170
I.1.4	Particules	170

I.2	Résultats dans la laponite	171
I.2.1	Observation macroscopique	171
I.2.2	Comparaison aux résultats attendus dans le cas newtonien	172
I.2.3	Description du déplacement	175
I.2.4	Description de la dynamique observée	175
I.2.4.1	Dynamique de formation d'un agrégat	175
I.2.4.2	Comparaison des rapports de vitesses pour toutes les expériences	176
I.2.5	Angle de l'agrégat	178
I.2.6	Discussion	178
I.2.7	Conclusion	179

I.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est similaire à celui utilisé pour les mesures de la vitesse de particule avec deux différences essentielles : la cellule est cylindrique et l'observation se fait avec deux caméras situées dans des directions perpendiculaires.

I.1.1 Protocole expérimental

Le fluide précisaillé est versé dans une colonne de sédimentation cylindrique. Le bouchon de sédimentation est mis en place, puis les particules introduites dans le bouchon. Le temps de vieillissement est comptabilisé à partir de cet instant. Au bout d'un temps de vieillissement déterminé (45 min pour les particules d'aluminium et 60 min pour les particules de laiton), deux particules identiques sont lâchées dans le fluide à la même verticale au centre de la colonne à l'aide de la plaque en téflon à un seul trou (cf. figure 4.I.3, l'écart à la verticalité initiale est donc inférieur à $2a$). Le temps entre les lâchers des particules n'est pas contrôlé *a priori*. Il est mesuré après la réalisation de l'expérience. La distance entre les particules est restée inférieure à 16 rayons dans les expériences présentées ici.

I.1.2 Montage

Le montage expérimental utilisé pour ces expériences est le suivant (figures 4.I.1 et 4.I.2) : deux caméras synchronisées permettent d'observer la sédimentation dans deux directions orthogonales. L'observation est réalisée dès le haut de la colonne jusqu'au fond sur une caméra et à 1 cm du fond sur l'autre. La colonne est placée dans une cuve parallélépipédique d'eau thermostatée pour supprimer les effets optiques de courbure de la colonne de sédimentation. Deux éclairages sont utilisés pour chacune des caméras ; ainsi les particules sont observées noires sur fond blanc sur chacune des caméras. La verticalité des caméras est réglée grâce à un fil à plomb au pixel près. La verticalité de la colonne de

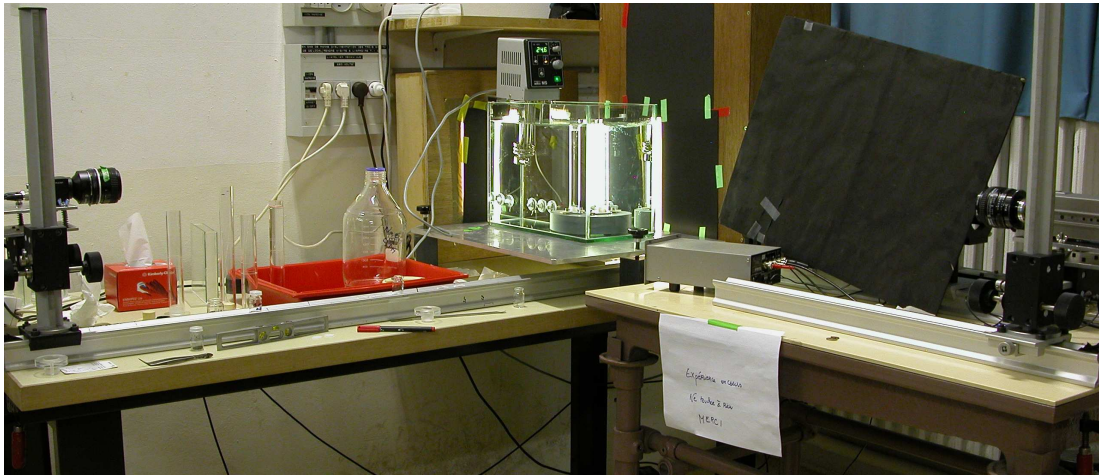


FIG. 4.I.1 – Photo du montage des expériences de doublets de particules.

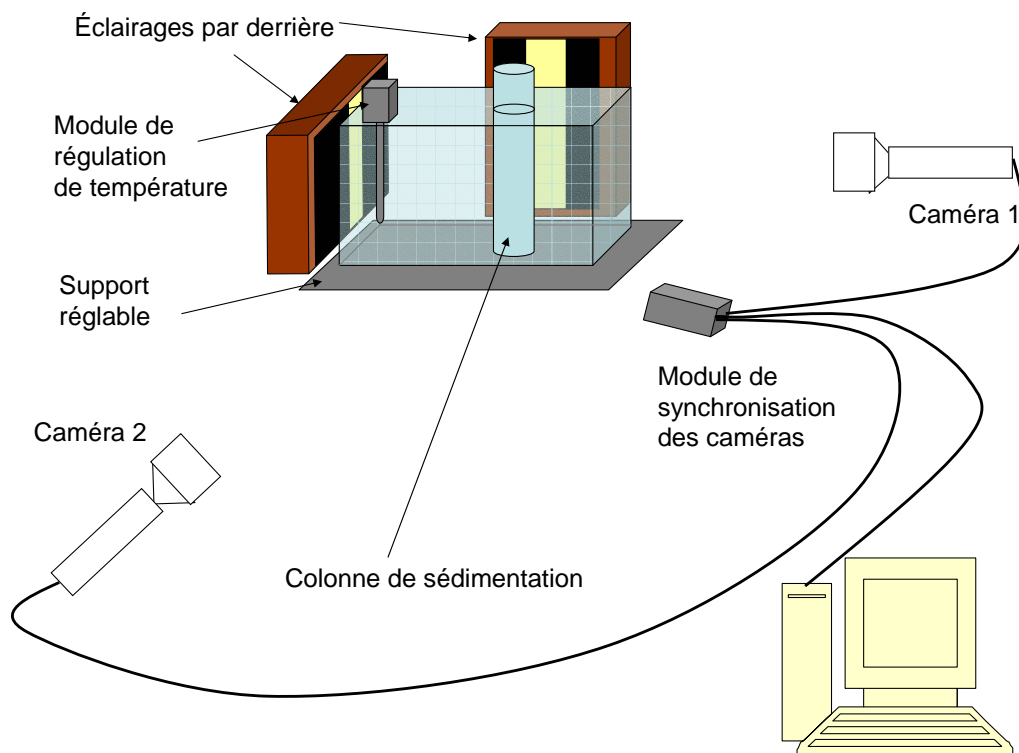


FIG. 4.I.2 – Schéma du montage des expériences de doublets.

sédimentation est réglée, à l'aide de trois plots sur le support de la cellule, par l'image de la cellule sur la caméra. Pour l'introduction des particules, un bouchon spécifique a été utilisé, il est constitué d'une pièce en plexiglas et d'une rondelle en téflon (figure 4.I.3).

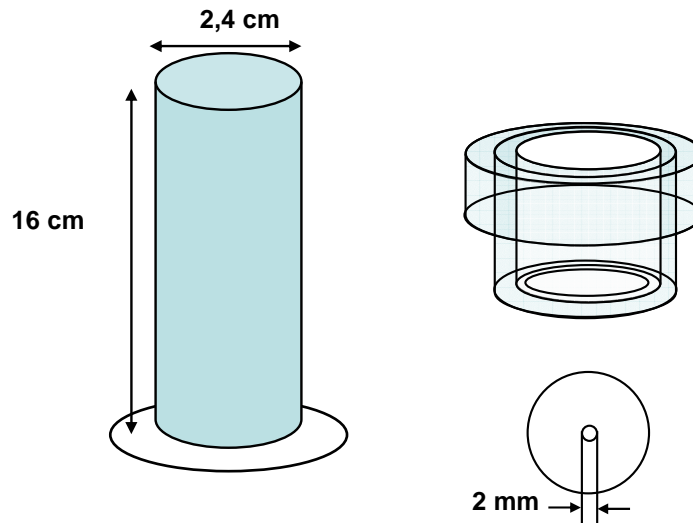


FIG. 4.I.3 – À gauche, schéma de la cellule de sédimentation utilisée pour les expériences de doublets de particules (les côtes désignent les dimensions intérieures). À droite, le bouchon utilisé pour les expériences et la rondelle de téflon utilisées.

I.1.3 Validation dans le cas newtonien

Le montage a été testé avec deux particules d'aluminium dans du glycérol. Nous avons relevé la position des deux particules dans les deux directions d'observation en fonction du temps. La figure 4.I.4, qui représente l'évolution de la position verticale de chaque particule et leur distance radiale en fonction du temps, montre que les deux particules sédimentent à la même vitesse et que leur distance n'est pas modifiée pendant la sédimentation. Le nombre de Reynolds de cette expérience est très petit ($Re = \frac{V_d a}{\eta} \sim 10^{-6}$). La vitesse du doublet ($V_d = 2,4$ mm/s) est supérieure à celle d'une particule isolée dans le même fluide ($V_p = 2,1$ mm/s), les deux particules sédimentent à la même vitesse donc restent à la même distance l'une de l'autre. Ceci est conforme à ce que l'on attend par additivité des vitesses¹ : $V_d = V_p + v_{2 \rightarrow 1}$ la distance entre les particules est de $\Delta z = 5,5$ mm soit $\frac{z}{a} = 7,3$. Expérimentalement dans le chapitre du champ de vitesse dans un fluide newtonien, nous avons trouvé : $\frac{V_z}{V_p}(z/a = 7,3) = v_{2 \rightarrow 1} = 0,16$ ce qui nous donne une vitesse attendue pour le doublet de $V_d = 2,4$ mm/s ce qui est la vitesse mesurée expérimentalement pour le doublet.

I.1.4 Particules

Les conditions expérimentales ont été choisies de façon à avoir un champ de vitesse connu, les temps de vieillissement sont suffisamment courts pour pouvoir réaliser de nombreuses expériences dans une même journée et avec un même échantillon et correspondant à une dynamique suffisamment lente pour

¹ $v_{2 \rightarrow 1}$ désigne l'effet du champ de vitesse autour de la particule 1 sur la particule 2.

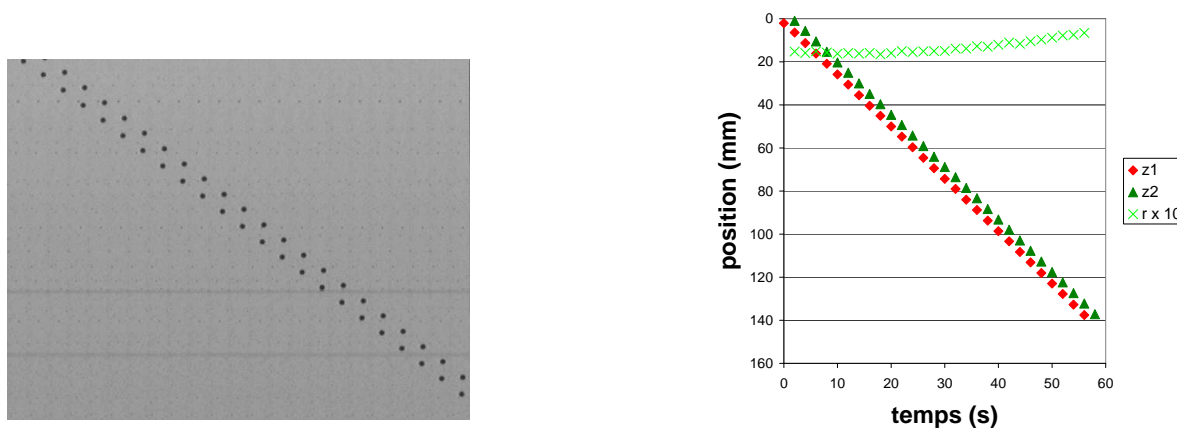


FIG. 4.I.4 – À gauche : images successives de la sédimentation de deux particules d'aluminium $\Delta t = 2$ s dans le glycérol. Les traits horizontaux sont distants de 2 cm. À droite : position verticale de chaque particule et distance radiale entre particules en fonction du temps.

tester différentes distances entre particules. Les particules utilisées dans ce chapitre sont les particules d'aluminium ou de laiton de 1,5 mm de diamètre déjà utilisées dans les expériences de champ de vitesse. Elles exercent une contrainte respectivement de 1,4 et 6,3 Pa. Les expériences ont été réalisées pour un temps de vieillissement de 45 min pour les particules d'aluminium et de 60 min pour les particules de laiton. Le champ de vitesse qui a été observé autour des particules présente une traînée négative autour de la particule de laiton et est sans traînée négative autour de la particule d'aluminium.

Nous venons de valider le montage expérimental, nous allons donc désormais décrire ce qui se passe dans la laponite.

I.2 Résultats dans la laponite

I.2.1 Observation macroscopique

Nous avons réalisé différentes expériences pour lesquelles la distance initiale entre les particules varie. Les figures 4.I.5 et 4.I.6 présentent l'évolution de la position verticale de chaque particule et leur distance radiale. Nous avons mis en évidence deux comportements principaux qui ont lieu avec chacun des types de particules : soit les particules forment un agrégat de particules, soit les particules sédimentent sans former d'agrégat. Comme nous pouvons le voir sur les figures 4.I.5 et 4.I.6 la formation d'agrégats est possible (sans être toujours réalisée) à la fois dans le cas de la sédimentation de la particule d'aluminium et la particule de laiton.

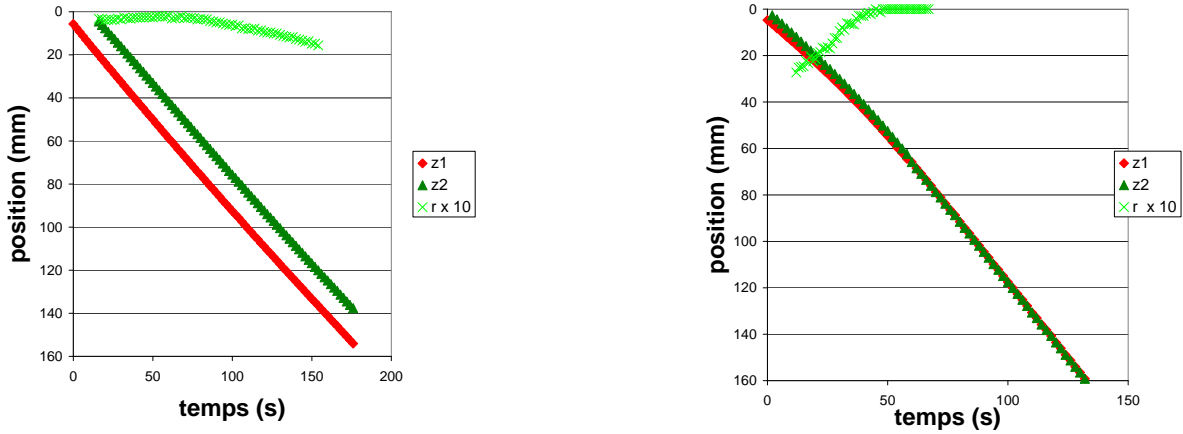


FIG. 4.I.5 – Position verticale de chaque particule et distance radiale entre particules en fonction du temps dans le cas où il y a formation d'un agrégat (à droite) et dans le cas où il n'y en a pas (à gauche). Particules d'aluminium.

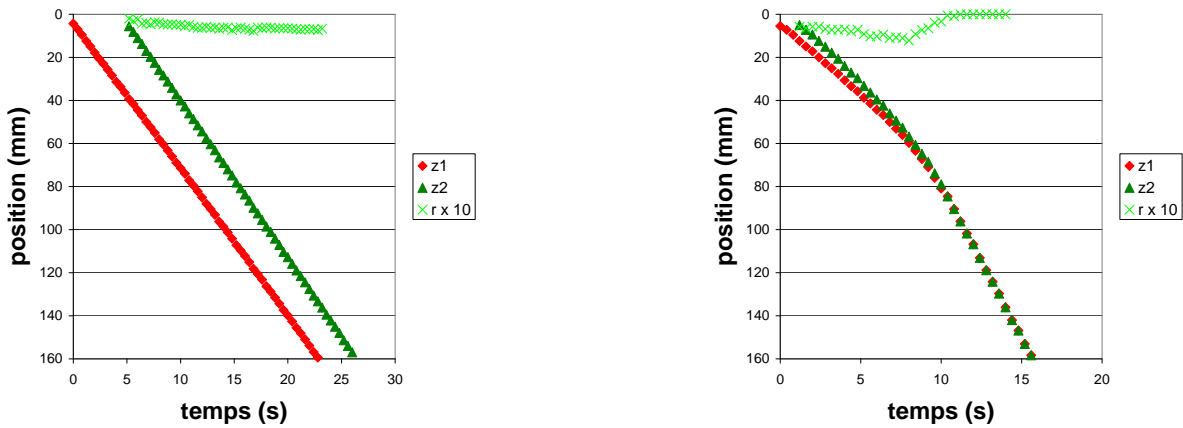


FIG. 4.I.6 – Position verticale de chaque particule et distance radiale entre particules en fonction du temps dans le cas où il y a formation d'un agrégat (à droite) et dans le cas où il n'y en a pas (à gauche). Particules de laiton.

I.2.2 Comparaison aux résultats attendus dans le cas newtonien

Les deux cas où nous avons réalisé des expériences de sédimentation de doublets de particules correspondent à des cas où nous avons mesuré le champ de vitesse. Nous pouvons alors dans un premier temps comparer les résultats attendus par additivité des vitesses à ceux observés comme nous l'avons fait dans le cas newtonien.

La figure 4.I.7 présente le champ de vitesse autour d'une particule isolée pour les temps de vieillissement étudiés. À gauche, sont présentées les cartes des vecteurs de vitesse du fluide, à droite les profils de vitesse verticale selon l'axe vertical passant par la particule. La vitesse horizontale est négligeable (avec la précision des mesures réalisées) à la verticale de la particule dans les deux cas présentés ici.

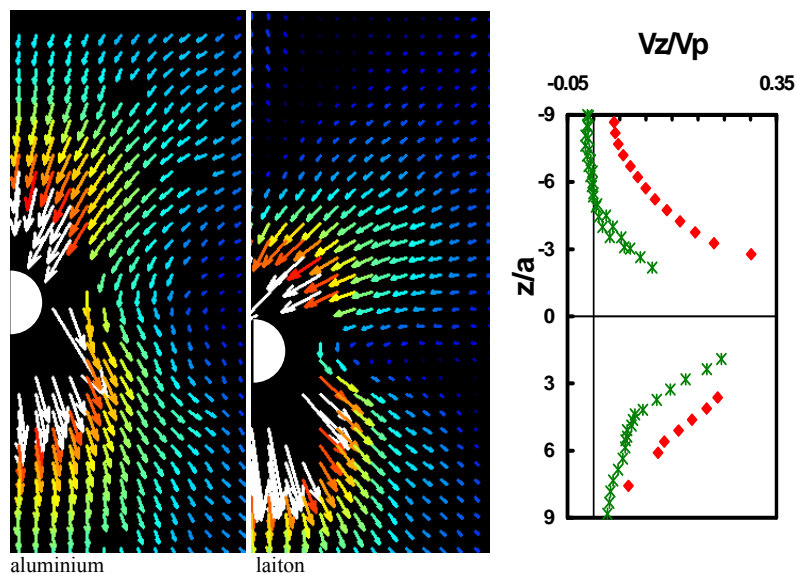


FIG. 4.I.7 – Champ de vitesse pour l’aluminium à 45 min et pour le laitton à 1 heure de vieillissement. À droite la composante verticale de la vitesse sur l’axe passant par le centre de la particule ; les losanges correspondent à l’aluminium les étoiles au laitton.

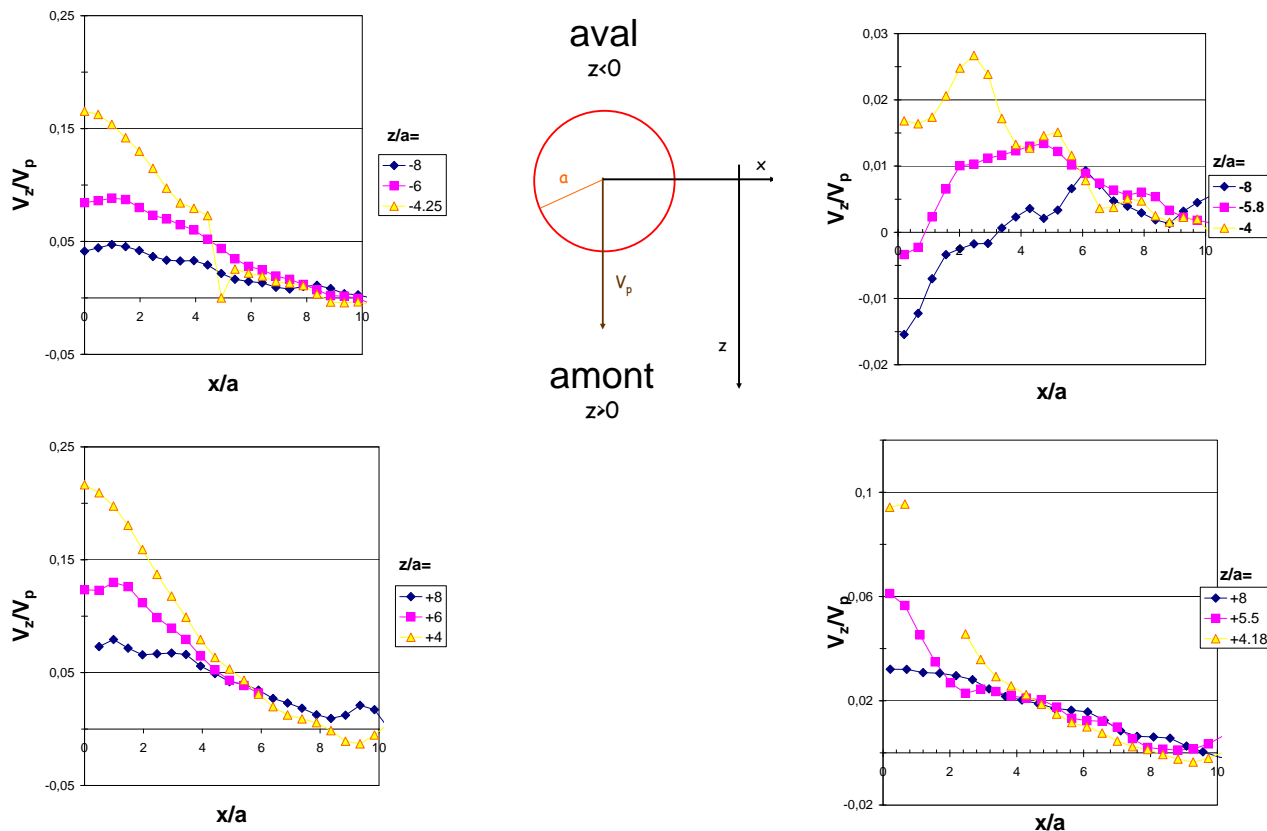


FIG. 4.I.8 – Vitesse du fluide le long d’une horizontale normé par la vitesse de la particule pour différentes positions en fonction de la position à la particule en aval en haut en amont en bas. À gauche, cas d’une particule isolée d’aluminium, à droite cas d’une particule isolée de laitton.

Dans le cas de l'aluminium, le champ de vitesse n'est pas symétrique entre l'amont et l'aval de la particule. Nous pouvons alors analyser en détail l'évolution de la vitesse verticale avec la position radiale figure 4.I.8. La vitesse du fluide est plus faible en aval qu'en amont. Ainsi si on applique l'additivité des vitesses au cas des doublets dans la laponite, la particule en amont aura une vitesse plus élevée que si elle est seule $V_1 = V_p + v_{2 \rightarrow 1}$ ($v_{2 \rightarrow 1} > 0$) et la particule en aval aura aussi une vitesse plus élevée que si elle est seule $V_2 = V_p + v_{1 \rightarrow 2}$ ($v_{1 \rightarrow 2} > 0$) mais cette augmentation sera moins forte ($v_{1 \rightarrow 2} < v_{2 \rightarrow 1}$). On s'attend donc à ce que les particules s'éloignent l'une de l'autre.

Dans le cas du laiton, le champ de vitesse est très différent entre l'amont et l'aval à cause de la traînée négative comme présenté en détail figure 4.I.8. Par un même raisonnement on peut prévoir que la particule en amont aura une vitesse augmentée $V_1 = V_p + v_{2 \rightarrow 1}$ ($v_{2 \rightarrow 1} > 0$) et la particule en aval une vitesse diminuée à cause de la traînée négative $V_2 = V_p + v_{1 \rightarrow 2}$ ($v_{1 \rightarrow 2} < 0$). On s'attend donc à ce que les particules se repoussent l'une par rapport à l'autre encore plus fortement que dans le cas de l'aluminium.

Par l'additivité des vitesses, on s'attend à ce que dans un doublet de particules d'aluminium comme de laiton les particules s'éloignent. Puisque nous observons la formation d'agrégats, comme nous pouvions nous y attendre, l'additivité des vitesses ne permet pas d'expliquer le comportement observé dans le cas de la laponite. Ceci vient du fait que la particule aval "voit" un fluide qui a été cisailé par la particule amont et qui n'a pas relaxé.

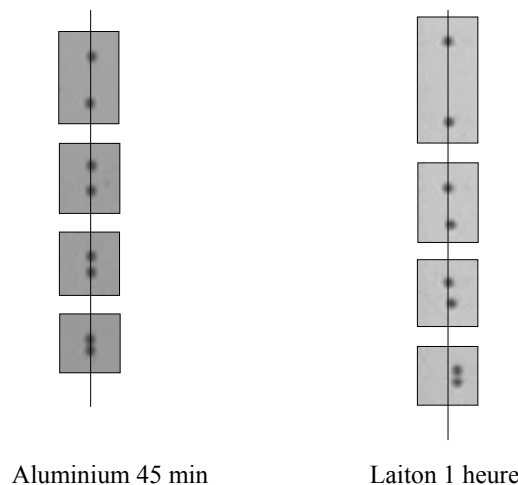


FIG. 4.I.9 – Images de la formation d'un agrégat (à gauche particules d'aluminium, à droite particules de laiton). Le trait noir indique l'axe initial du doublet.

I.2.3 Description du déplacement

À l'aide du logiciel Image Pro Plus, nous avons suivi la position des particules sur les deux caméras, nous avons donc une mesure de la position (x,z) de chaque particule. Nous avons représenté sur les figures 4.I.9, 4.I.10 et 4.I.11 la position de la deuxième particule (particule en aval) dans le référentiel de la première particule (particule en amont) pour les cas où il y a formation d'agrégat. Dans le cas des particules d'aluminium, la distance radiale entre les particules diminue de manière monotone. En revanche, dans le cas de la particule de laiton, la particule aval fait un mouvement latéral pour s'éloigner de la particule amont avant de la rejoindre. Nous avons représenté sur la figure 4.I.11 la position de la zone correspondant à une vitesse nulle du fluide autour de la traînée négative (obtenue par les images de champ de vitesse). Nous en déduisons que le mouvement latéral se fait autour de cette zone. Pour comprendre plus précisément le mouvement observé, on peut se reporter à la figure 4.I.8. À 8 rayons en aval pour une position radiale de 1,5 rayons, la vitesse verticale du fluide est négative. La particule aval évite donc cette zone. Lorsqu'elle est située à 4 rayons, la vitesse verticale du fluide est alors positive ce qui induit que les particules se rapprochent radialement.

Dans le cas du laiton, la particule amont a une vitesse latérale non nulle dans le référentiel du laboratoire, ce que nous pouvons observer sur les figures 4.I.9. Le trait vertical représenté sur ces figures indique la position radiale initiale du doublet. Dans le cas de l'aluminium le doublet reste vertical pendant toute la sédimentation. Nous allons dans la suite décrire plus en détail la dynamique observée dans le cas de l'aluminium et du laiton.

I.2.4 Description de la dynamique observée

I.2.4.1 Dynamique de formation d'un agrégat

Lorsqu'il y a formation d'agrégats de particules, le doublet a une dynamique que je vais décrire. Cette dynamique est qualitativement la même quelle que soit la nature des particules. La figure 4.I.12 présente la vitesse verticale de chaque particule en fonction du temps de l'expérience. Nous observons trois régimes : un premier régime dans lequel les vitesses des particules croissent faiblement (avec une vitesse légèrement plus importante pour la particule en aval). Ensuite les particules sont toutes les deux fortement accélérées, la seconde particule ayant une vitesse légèrement plus grande. Enfin, l'agrégat formé sédimente avec une vitesse constante (qui varie beaucoup d'une expérience à l'autre comme dans le cas d'une particule isolée). Nous pouvons décrire la formation d'un agrégat à l'aide de deux vitesses verticales caractéristiques : la vitesse verticale initiale des particules (V_i) et la vitesse verticale de l'agrégat final formé (V_f). Nous avons mesuré ces deux vitesses pour toutes les expériences de sédimentation de doublets. S'il y a formation d'agrégat la vitesse finale est celle du doublet, s'il n'y a pas de formation d'agrégat la vitesse reste identique à la vitesse initiale (modulo le vieillissement

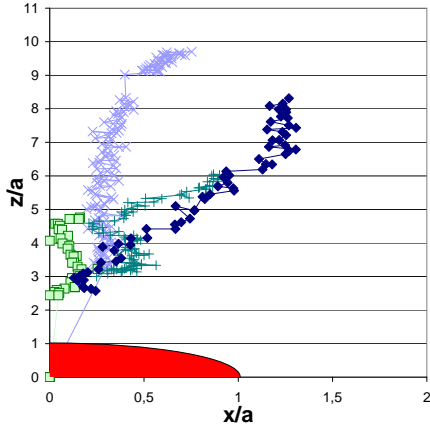


FIG. 4.I.10 – Trajectoire de la seconde particule dans le référentiel de la première particule. L'objet rouge représente la première particule. La précision de la position (r et z) est à $\pm \frac{a}{4}$. Particules d'aluminium.

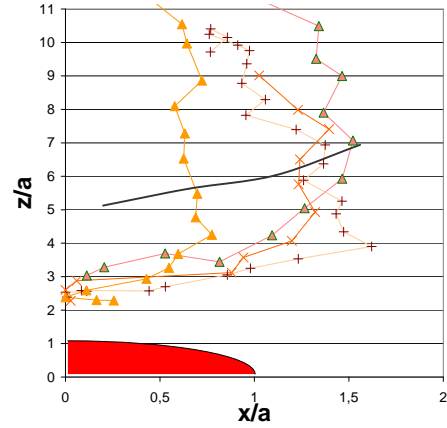


FIG. 4.I.11 – Trajectoire de la seconde particule dans le référentiel de la première particule. La courbe en noir représente la position de la zone d'espace pour laquelle $V_z = 0$ obtenue sur les figures de champ de vitesse pour une particule isolée. La précision de la position (r et z) est à $\pm \frac{a}{4}$. Particules de lait.

du fluide si le temps de l'expérience est long). La cellule de sédimentation n'a pas été toujours assez haute pour observer la totalité de la cinétique des expériences de sédimentation de doublets. Lors de la formation d'un agrégat, la vitesse des particules augmente fortement : les particules ont parfois atteint le fond de la colonne avant d'atteindre le troisième régime de sédimentation à vitesse constante après la formation de l'agrégat.

I.2.4.2 Comparaison des rapports de vitesses pour toutes les expériences

La grandeur physique qui explique la formation d'un agrégat est la distance de coupure minimale pour former un agrégat [1] [51]. En effet, si la distance entre les particules qui sédimentent est supérieure à la distance nécessaire au fluide pour relaxer, les particules vont peu interagir, mais si la distance entre les particules est inférieure à la distance nécessaire à la relaxation des contraintes dans le fluide, les particules vont interagir et d'autant plus fortement qu'elles sont proches. Dans la laponite, cette distance varie beaucoup d'une expérience à l'autre qu'il y ait ou non formation d'agrégat car comme dans le cas d'une particule isolée, les vitesses de particule sont assez dispersées d'un échantillon à l'autre. Le paramètre retenu est alors le temps entre le lâcher des particules (Δt_i). Il est calculé à partir de la distance initiale (Δz_i) et de la vitesse initiale de la particule aval (V_{2i}) : $\Delta t_i = \frac{\Delta z_i}{V_{2i}}$

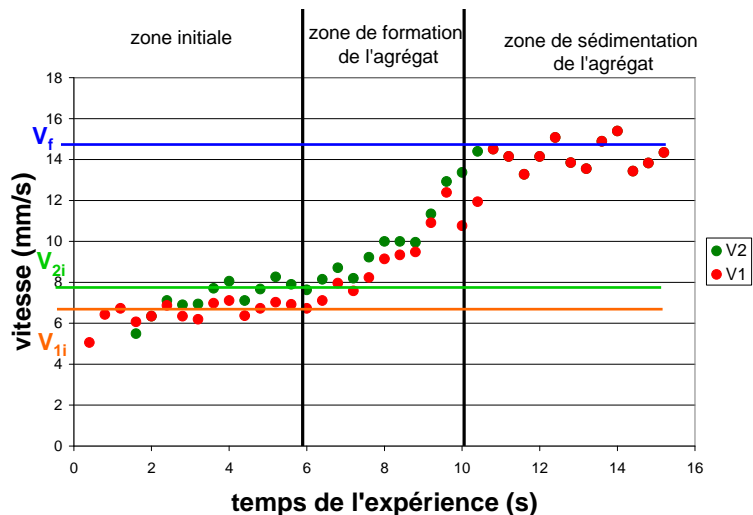


FIG. 4.I.12 – Vitesse des particules pendant la formation d'un agrégat (particules de laiton).

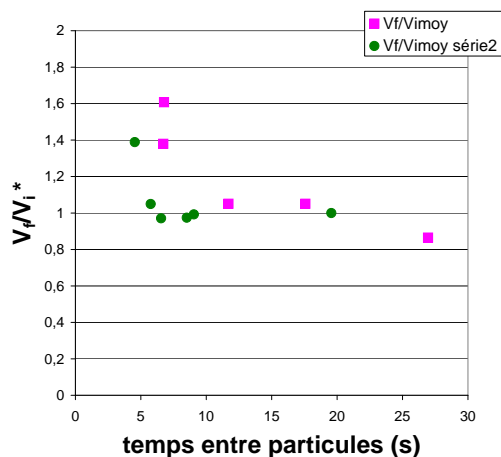


FIG. 4.I.13 – Évolution du rapport de la vitesse finale des particules sur la vitesse moyenne initiale (série2 correspondant à des expériences réalisées 1 mois plus tard). Ce rapport de vitesse est corrigé par le vieillissement du fluide car les temps d'expérience peuvent être longs $\frac{V_f}{V_i}^* = \frac{V_f}{V_i} \exp(t_{expérience}/\tau)$. Particules d'aluminium.

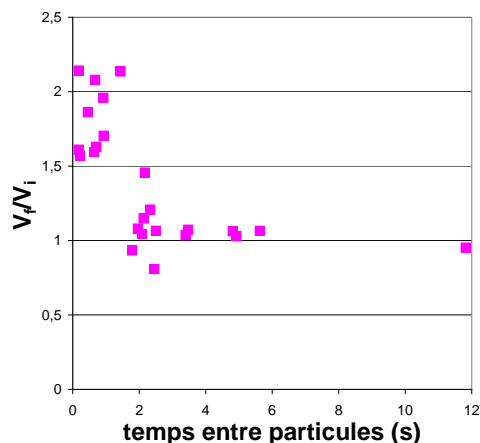


FIG. 4.I.14 – Évolution du rapport de la vitesse finale des particules sur la vitesse initiale de chaque particule. Particules de laiton.

Le rapport entre la vitesse initiale et la vitesse finale $\frac{V_f}{V_i}$ permet de rendre compte s'il y a formation

d'un agrégat. Dans le cas newtonien ce rapport $\frac{V_f}{V_i}$ reste égal à 1 puisque les particules restent à la même vitesse tout au long de la sédimentation. Dans la laponite, s'il y a formation d'un agrégat ce rapport est très supérieur à 1, sinon ce rapport reste au voisinage de 1. Si la sédimentation est très lente, il est possible de sentir l'effet du vieillissement du fluide. Nous avons donc corrigé les vitesses par le vieillissement du fluide dans le cas de la particule d'aluminium². Nous avons donc représenté sur les figures 4.I.13 et 4.I.14 ce rapport en fonction du temps initial entre le lâcher des particules. Nous pouvons ainsi mettre en évidence un temps de coupure en deçà duquel les particules forment un agrégat. Ce temps de coupure vaut entre 5 et 6 s pour l'aluminium et autour de 2 s pour le lait. Il est possible de comparer ce temps à celui trouvé par les mesures de biréfringence après le passage de la particule présenté dans le chapitre précédent (temps alors entre 5 et 1000 s). Ces temps sont plus faibles que les temps mesurés en biréfringence. L'évolution de ce temps caractéristique avec la contrainte exercée par la particule est dans le même sens : il diminue quand la contrainte exercée par la particule augmente. Notons également que les valeurs atteintes par le rapport $\frac{V_f}{V_i}$ dans la laponite de 1,6 dans le cas de l'aluminium et de 2,1 dans le cas du lait. Il n'est cependant pas possible de calculer le rapport $\frac{V_f}{V_p}$ car la dispersion des vitesses d'une particule isolée (V_p) est supérieure à la valeur de $\frac{V_f}{V_i}$.

I.2.5 Angle de l'agrégat

En réalisant les expériences, nous avons remarqué que l'angle par rapport à la verticale de l'agrégat formé n'était en général pas nul. Pour quantifier cette effet, nous avons mesuré l'angle (θ) entre la verticale et l'axe de l'agrégat formé à partir des images sur les deux caméras (θ_1 et θ_2)³. Les angles trouvés sont présentés sur la figure 4.I.15. Ces angles atteignent des valeurs qui peuvent être importantes (de l'ordre de 10° pour un largage en vertical). Nous pouvons donc conclure que dans le cas général, l'agrégat n'est pas strictement vertical.

I.2.6 Discussion

Dans la laponite, nous avons décrit précédemment que les écoulements autour des particules d'aluminium et de lait sont très différents. Nous avons donc étudié le comportement d'un doublet de particules dans chaque cas. La formation d'agrégats est possible pour les deux particules ce qui ne valide pas l'additivité des vitesses qui s'applique dans le cas newtonien. Cependant la trajectoire de la seconde particule dans le référentiel de la première dans le cas du lait montre que la seconde particule évite la zone de remontée du fluide à l'arrière de la première particule avant de la rejoindre (zone

² $\frac{V_f}{V_i}^* = \frac{V_f}{V_i} \exp(t_{\text{expérience}}/\tau)$ avec τ le temps caractéristique de sédimentation de l'ordre de 20 min

³ $\cos \theta = \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\cos^2 \theta_1} + \frac{1}{\cos^2 \theta_2} - 1}}$

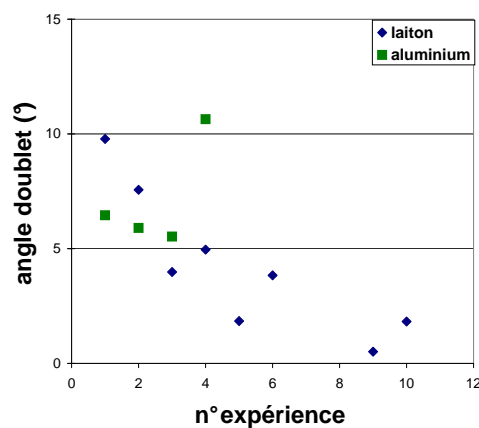
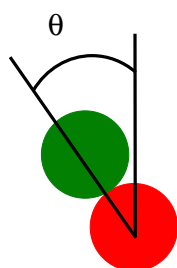


FIG. 4.I.15 – Angle entre la verticale et l’axe de l’agrégat pour les différentes expériences réalisées.

estimée à partir du champ de vitesse autour d’une particule unique en sédimentation). L’augmentation de la vitesse de la seconde particule par rapport à la première est assez faible : les deux particules ont une vitesse quasi identique dans la zone initiale comme dans la zone de forte interaction comme on le voit sur la figure 4.I.12. Le rapport entre la vitesse initiale de la particule aval et la particule amont ($\frac{V_{2i}}{V_{1i}}$) conduisant à la formation d’un agrégat vaut au maximum 1,05 pour l’aluminium et entre 1,03 et 1,12 pour le laiton. La formation d’un doublet dans le cas rhéofluidifiant est attribuée à une zone de viscosité réduite dans le sillage de la première particule. Cette zone relaxe avec le temps caractéristique du fluide. L’effet de la rhéofluidification locale est donc faible et même beaucoup plus faible que dans le cas du xanthane où le rapport des vitesses est de l’ordre de 1,2 [1]. Ce rapport conduit expérimentalement à une vitesse d’agrégat 2 fois supérieure à la vitesse d’une particule isolée. Dans la laponite, le rapport entre la vitesse de l’agrégat et de la particule isolée est du même ordre de grandeur (environ 2). On s’attend donc à ce que l’effet de l’agrégation soit important dans les suspensions dans la laponite. Des expériences de PIV lors de la sédimentation de doublets semble intéressante mais cette expérience est difficile à réaliser en présence d’une traînée négative puisque le mouvement des particules n’est pas plan.

I.2.7 Conclusion

Nous avons réalisé des expériences de doublets de particules dans le cas où, pour une particule isolée, nous avons observé une traînée négative et dans le cas où il n’y en avait pas. Nous observons la formation d’agrégats de particules quel que soit l’écoulement autour d’une particule isolée dans les mêmes conditions. Nous avons mis en évidence un temps caractéristique entre les particules au delà duquel les particules ne forment pas d’agrégat. Ceci avait déjà été observé dans le cas de fluide

rhéofluidifiant. Un déplacement assez inattendu a été observé : dans le cas où il y a une traînée négative, la deuxième particule évite la zone de remontée du fluide à l'aval de la première particule. Contrairement à d'autres fluides rhéofluidifiants, l'agrégat formé de deux particules n'est pas toujours vertical.

Chapitre II

Étude de la sédimentation de suspensions de particules dans la laponite

Lors de l'étude de la sédimentation de doublets de particules, nous avons observé la formation possible d'agrégats. Dans les solutions polymères rhéofluidifiantes, ceux-ci sont considérés comme responsables de la formation de structures lors de la sédimentation de suspensions comme nous l'avons vu dans le chapitre bibliographique. Nous voulons observer si une structuration existe dans la laponite et si le vieillissement peut subsister malgré la sollicitation créée par la sédimentation de nombreuses particules. Ce chapitre présente les résultats de premières expériences de sédimentation de suspensions de particules monodisperses dans la laponite aux faibles fractions volumiques en particules. Ce travail a fait l'objet du stage de MasterI de Nicolas Coulombel. Dans une première partie, le montage est décrit, ensuite les résultats sont présentés : le vieillissement est toujours prédominant, la sédimentation s'arrête pour toutes les fractions volumiques étudiées. Une discussion des résultats termine ce chapitre.

Sommaire

II.1	Système expérimental	182
II.1.1	Montage	182
II.1.2	Particules	183
II.1.3	Cellule de sédimentation	183
II.1.4	Protocole expérimental	183
II.1.5	Conversion $I-\phi$	183
II.2	Validation du système expérimental	184
II.3	Résultats dans la laponite	186
II.3.1	Résultats macroscopiques	186
II.3.2	Dynamique de la sédimentation	186
II.3.3	Dynamique du front de sédimentation	187
II.3.4	Agrégation	191

II.4 Discussion	191
---------------------------	-----

II.5 Conclusion	192
---------------------------	-----

II.1 Système expérimental

La méthode la plus facile à mettre en œuvre pour étudier la sédimentation d'une suspension est de disposer la suspension devant un éclairage homogène et de visualiser la sédimentation à l'aide d'une caméra. L'intensité lumineuse transmise dépend de la fraction volumique en particules.

II.1.1 Montage

Le montage utilisé pour cette étude est présenté figure 4.II.1. La cellule de sédimentation est placée devant un éclairage constitué d'un pavé de diodes qui donne un éclairage très homogène (éclairage identique à celui des expériences de biréfringence). Une caméra numérique de 2^{12} niveaux de gris est utilisée pour acquérir le signal (caméra identique à celle des expériences de biréfringence). La caméra est commandée pour avoir trois pas différents d'acquisition ainsi tous les temps de l'expérience sont sondés (le premier pas est de 3 s pendant 5 min puis de 30 s pendant 50 min enfin de 60 s pendant 100 min). La cellule est positionnée sur un support réglable qui permet d'avoir une cellule bien verticale pour toutes les expériences de sédimentation.

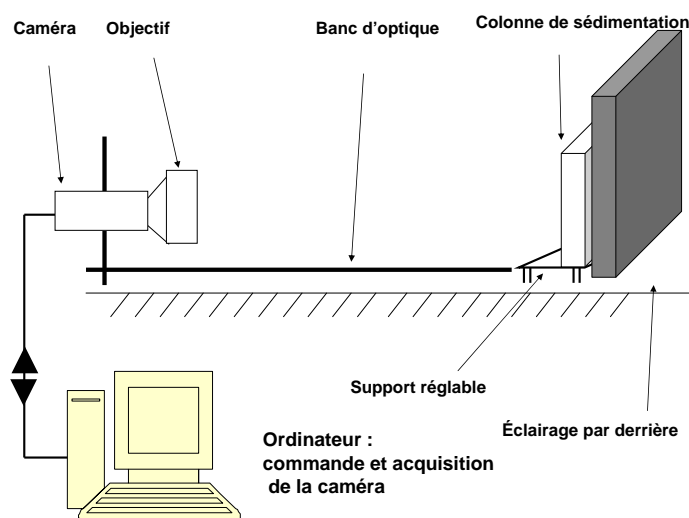


FIG. 4.II.1 – Schéma du montage des expériences de suspensions de particules.

II.1.2 Particules

Les particules utilisées pour ces expériences sont différentes des particules utilisées précédemment. Il s'agit de particules de Zirblast (céramique de zircone et silice). Ces particules ont été utilisées lors de la thèse de S. Daugan [1]. Elles sont employées dans l'industrie pour des applications de nettoyage et broyage. Elles ont donc une très grande résistance. Elles ont une masse volumique importante : $3,76 \pm 0,02 \text{ g/cm}^3$ et une couleur blanche assurant un bon contraste optique. Elles ont été tamisées entre 150 et 160 μm . Nous pouvons ainsi estimer la contrainte exercée par une particule (selon l'équation (1.3.7) établie dans la partie bibliographique) à 0,2 Pa. Ces particules ont été choisies suffisamment petites pour observer l'arrêt des suspensions, suffisamment grandes pour sédimenter pendant un temps "observable". Les fractions volumiques étudiées sont comprises entre 0,5 et 3 %.

II.1.3 Cellule de sédimentation

Nous n'avons fait les expériences que pour une seule taille de cellule de sédimentation. La cellule est parallélépipédique : 20 cm de haut 1,2 cm d'épaisseur et 12 cm de large (dimensions intérieures). Elle est en plexiglas et possède un bouchon qui permet de fermer la cellule sans perdre de fluide.

II.1.4 Protocole expérimental

La laponite est tout d'abord précisailée à l'agitateur magnétique pendant au moins une heure (comme pour les autres expériences). Les particules de Zirblast sont ensuite ajoutées sous azote. Le tout (fluide + particules) est mélangé pendant 5 min puis versé dans la cellule de sédimentation à ras bord, celle-ci contenant initialement un barreau aimanté. Le mélange dans la cellule est ensuite agité à l'agitateur magnétique pour obtenir un état initial bien homogène. Ce protocole a été difficile à mettre au point car le mélange initial possède facilement des inhomogénéités ; même avec ce protocole il a subsisté des problèmes d'homogénéité avec certaines expériences que nous ne présenterons donc pas. La cellule de sédimentation est enfin placée sur son support et filmée. À la fin de la sédimentation (le plus souvent le lendemain), des photos sont réalisées à l'aide d'un appareil photo à fort grandissement.

II.1.5 Conversion I- ϕ

Les particules occultent et réémettent en partie la lumière incidente ; l'intensité lumineuse transmise dépend de la fraction volumique locale en particules. Pour cette étude, nous n'avons pas quantifié la relation entre l'intensité lumineuse transmise et la fraction volumique en particules. Les mesures présentées seront donc qualitatives mais renseignent sur les phénomènes observés. L'intensité lumineuse augmente quand la fraction volumique en particules décroît. L'inhomogénéité initiale sur toute la cellule de sédimentation est inférieure à 14%. L'inhomogénéité de l'éclairage est de 3%.

II.2 Validation du système expérimental

Des expériences préalables ont été réalisées avec un mélange eau/glycérol (20/80% en volume) pour diverses fractions volumiques ϕ en particules. La figure 4.II.2 présente les images obtenues par la caméra à $\phi = 2\%$. Les résultats présentent les caractéristiques attendues : la sédimentation a lieu à vitesse constante et la suspension présente un front relativement net en dessous duquel la concentration en particules reste constante 4.II.3.

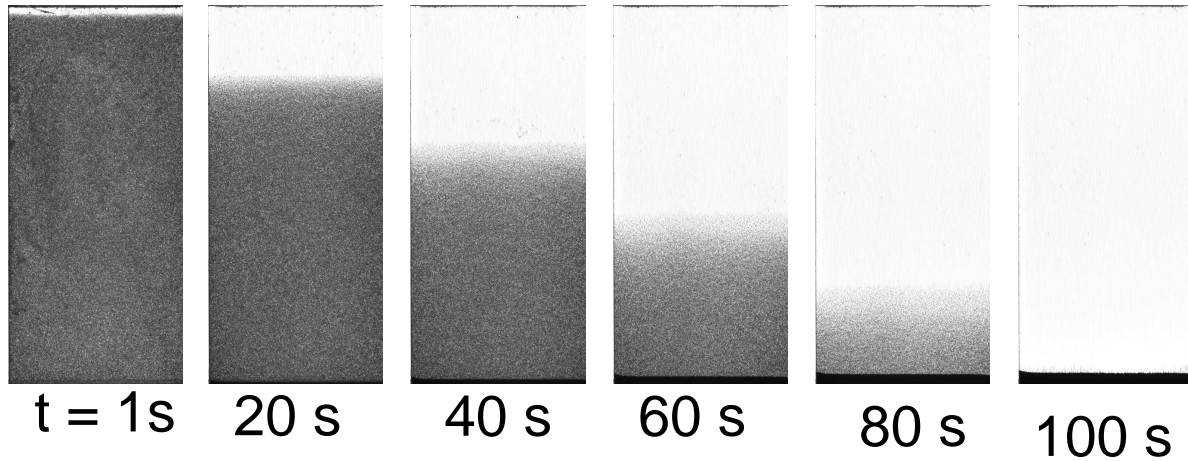


FIG. 4.II.2 – Images de la sédimentation à $\phi = 2\%$ en milieu newtonien.

Le front de sédimentation s'étale avec le temps. Cela peut venir de la polydispersité des particules (diamètres entre 150 et 160 μm). La vitesse du front de sédimentation d'une suspension monodisperse peut être décrite comme nous l'avons vu dans l'analyse bibliographique par la loi de Batchelor (le résultat est le même si on considère l'équation de Richardson-Zaki) :

$$V_{front} = V_{Stokes}(1 - S\phi)$$

$$V_{Stokes} = \frac{2a^2g\Delta\rho}{9\eta}$$

avec $S=6,5$.

Si la suspension n'est pas monodisperse, les particules sédimentent à des vitesses différentes en fonction de leur taille. La conséquence est donc que le front s'étale. L'étalement du front se mesure sur l'évolution temporelle de la position d'iso-intensités (qui sont également des iso-fraction volumique) dans la suspension qui entourent le front, limites entre la suspension homogène à concentration constante et le surnageant. Il faut ainsi considérer deux positions dans la cellule qui entourent les positions maximales et minimales du front de sédimentation. En notant l_{min} et l_{max} les hauteurs de front les hauteurs qui entourent le front, on peut caractériser l'étalement par la grandeur :

$$disp = \frac{\Delta l_{front}}{l_{front_{min}}} \quad (4.2.1)$$

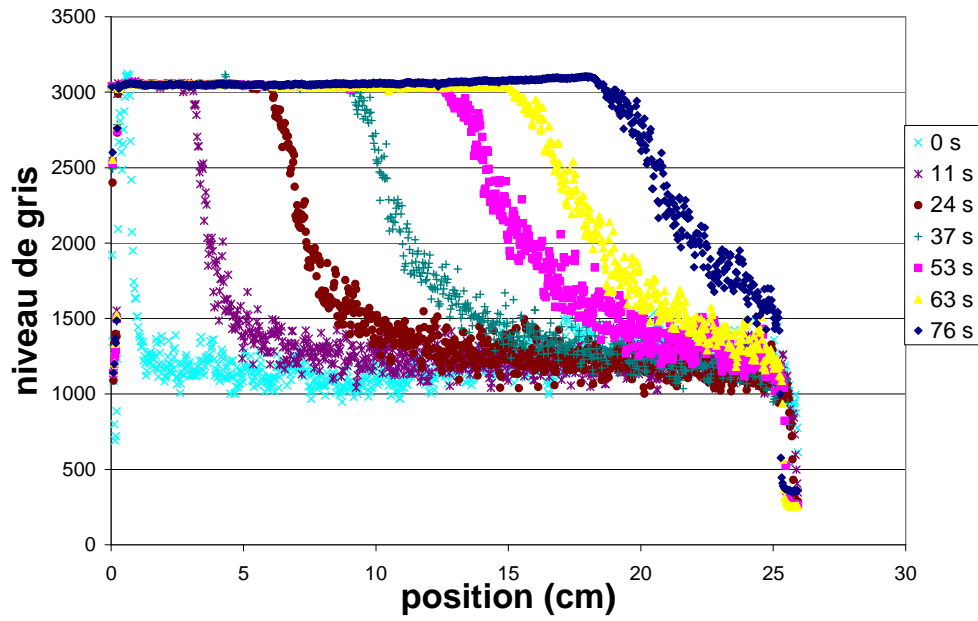


FIG. 4.II.3 – Évolution de l'intensité lumineuse en fonction de la position verticale pour différents temps de vieillissement. Expérience en fluide newtonien.

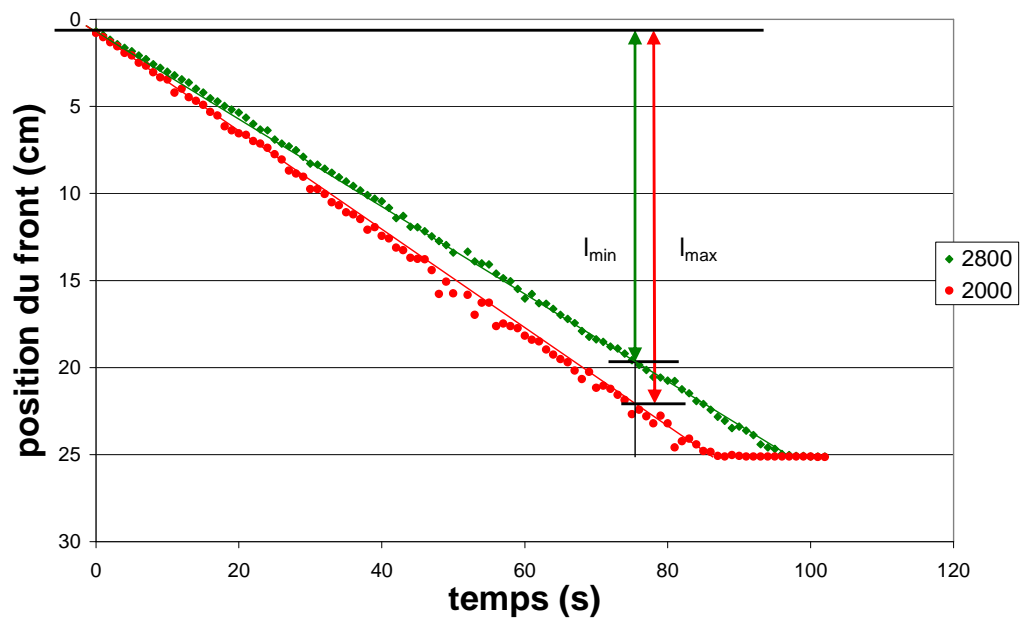


FIG. 4.II.4 – Évolution de deux iso-fractions autour du front de sédimentation. Expérience en fluide newtonien.

Si la dispersion du front est due uniquement à la polydispersité des particules on a alors :

$$disp_{polydispersite} = \frac{V_{Stokes_{max}} - V_{Stokes_{min}}}{V_{Stokes_{min}}} = \frac{a_{max}^2 - a_{min}^2}{a_{min}^2} \quad (4.2.2)$$

Nous avons donc représenté (figure 4.II.4) l'évolution de la position d'iso-intensité avec le temps de l'expérience pour deux iso-intensités qui entourent le front de sédimentation (soit 2000 et 2800 niveaux de gris). Nous obtenons $disp_{exp} = 0,12$. Dans le cas newtonien, la dispersion du front ne vient pas uniquement de la polydispersité des particules comme présenté dans [82]. Les particules situées dans le front de sédimentation ont un comportement différent des particules situées dans le reste de la suspension.

II.3 Résultats dans la laponite

Nous avons réalisé des expériences dans la laponite pour des fractions volumiques variant entre 0,5 et 3 %. Nous allons dans un premier temps présenter la cinétique générale à l'aide d'un exemple à $\phi = 1,5$ %. Ensuite nous présenterons les évolutions temporelles de toutes les suspensions étudiées. Enfin nous discuterons les résultats obtenus.

II.3.1 Résultats macroscopiques

Les images obtenues sont présentées sur la figure 4.II.5, l'intensité lumineuse finale pour toutes les fractions volumiques étudiées est présentée sur la figure 4.II.11. Rappelons que l'intensité lumineuse diminue lorsque la fraction volumique en particules augmente. Nous avons observé que la sédimentation finit par s'arrêter pour toutes les suspensions étudiées. Comme dans le cas newtonien, la suspension présente un front net en début de sédimentation qui s'étale au cours de la sédimentation. La vitesse de sédimentation diminue avec le temps. Notons que la hauteur finale de la suspension varie beaucoup d'une expérience à l'autre signe de la mauvaise reproductibilité d'un échantillon à l'autre. On ne peut donc pas dégager de tendance pour l'évolution de la hauteur d'arrêt avec la fraction volumique en particules. En fin de sédimentation l'image de la suspension présente un aspect granuleux, signe de la présence d'agrégats. Les vues proches réalisées montrent les agrégats formés qui ne sont constitués que de quelques particules (photos 4.II.6 à 4.II.9). Contrairement au cas rhéofluidifiant, on n'observe pas de structure globale sur toute la hauteur de la cellule.

II.3.2 Dynamique de la sédimentation

Nous avons mesuré l'intensité lumineuse moyennée sur des lignes horizontales séparées de 2 cm. Les résultats sont présentés sur la figure 4.II.12. En haut de la cellule (à 16 et 18 cm du fond), l'intensité lumineuse augmente pour atteindre un maximum signe du passage du front à ces hauteurs. En dessous (14 cm), la fraction volumique en particules diminue fortement car cette hauteur est dans l'épaisseur

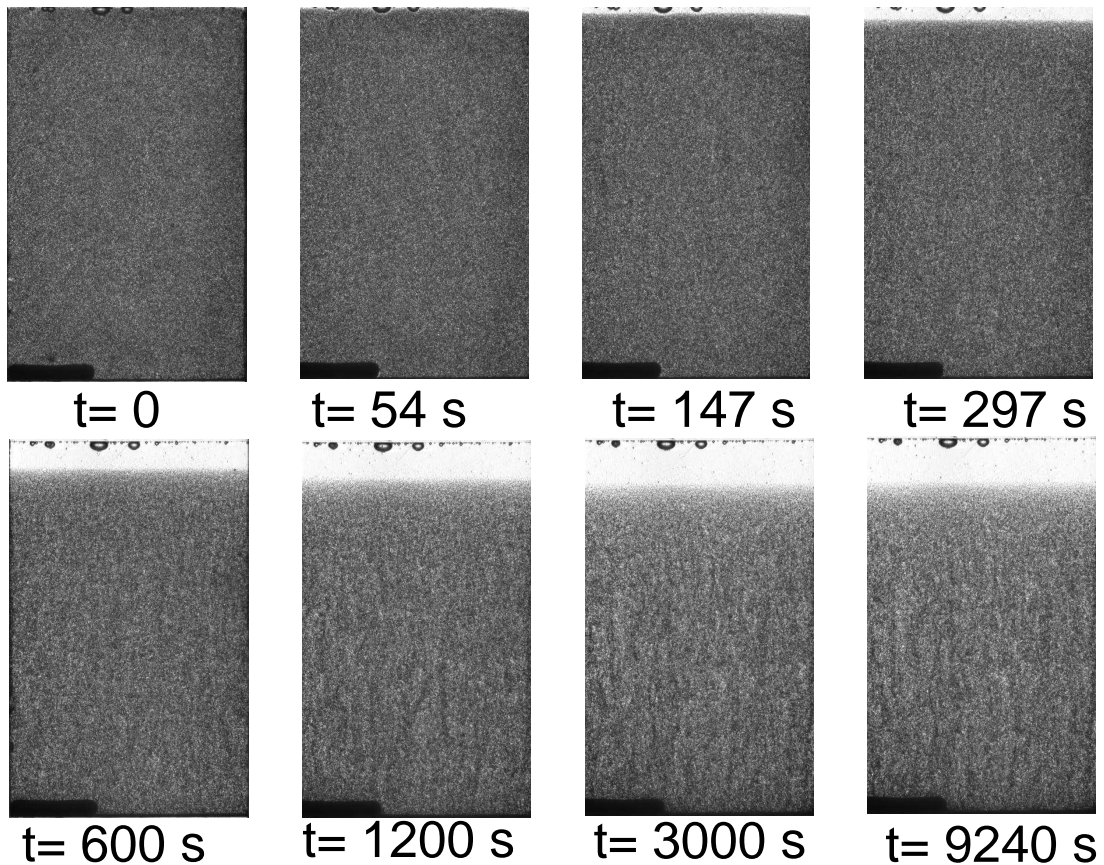


FIG. 4.II.5 – Images de la sédimentation à $\phi = 1,5\%$ dans la laponite. Le cylindre en bas à gauche est le barreau aimanté utilisé pour l’agitation initiale. Aux temps courts, l’interface particules/fluide clair est déformée par la présence de bulles.

du front de sédimentation à la fin de la sédimentation. Plus bas (de 4 à 12 cm), la concentration en particules diminue assez peu au cours du temps. Il reste cependant en fin de sédimentation un gradient de concentration dans cette zone. En fin de sédimentation, il reste ce gradient de concentration au dessus duquel se situe le front diffus puis le surnageant sans particules.

II.3.3 Dynamique du front de sédimentation

Pour toutes les expériences réalisées, il est possible de mesurer la position du haut du front de sédimentation comme dans le cas newtonien à l’aide de la position d’une iso-intensité. La figure 4.II.13 présente l’évolution avec le temps de la position du haut du front de sédimentation ($I = 2800$) pour la fraction volumique $\phi = 1,5\%$. Nous remarquons que l’évolution de la position du front peut être correctement décrite par une exponentielle décroissante (équation (4.2.3)), ce qui est équivalent à l’évolution de la vitesse de sédimentation d’une particule isolée avec le temps de vieillissement (équation (4.2.4)).

$$l_{front} = V_0 \tau_{susp} \exp(-t/\tau_{susp}) + l_{fin} \quad (4.2.3)$$

Photos de près prises le lendemain

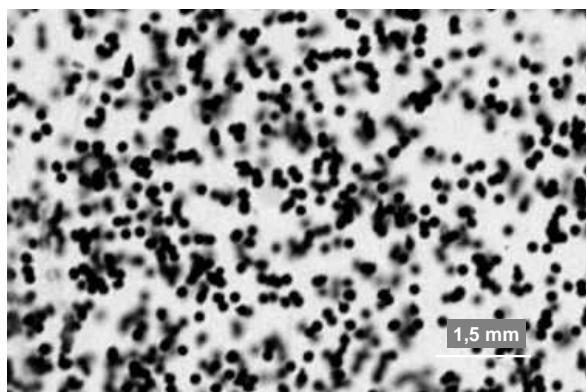


FIG. 4.II.6 - $\phi = 0,5 \%$.

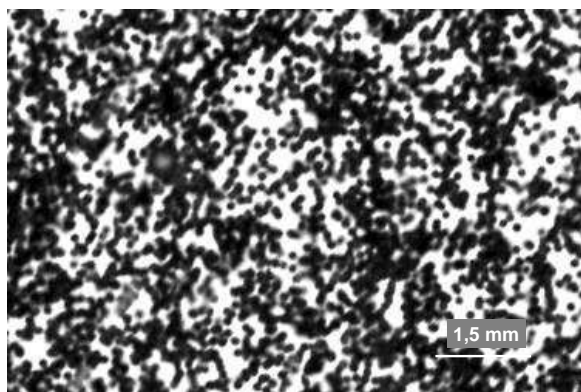


FIG. 4.II.7 - $\phi = 1,5 \%$.

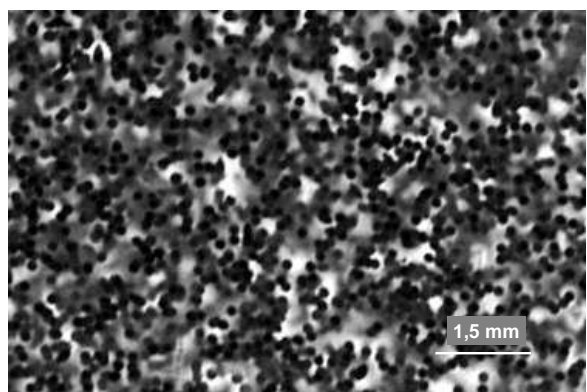


FIG. 4.II.8 - $\phi = 2,5 \%$.

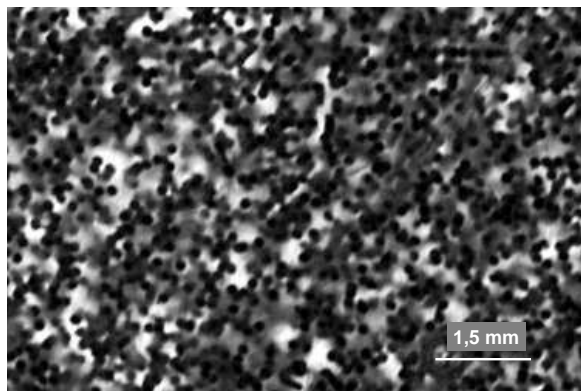


FIG. 4.II.9 - $\phi = 3 \%$.

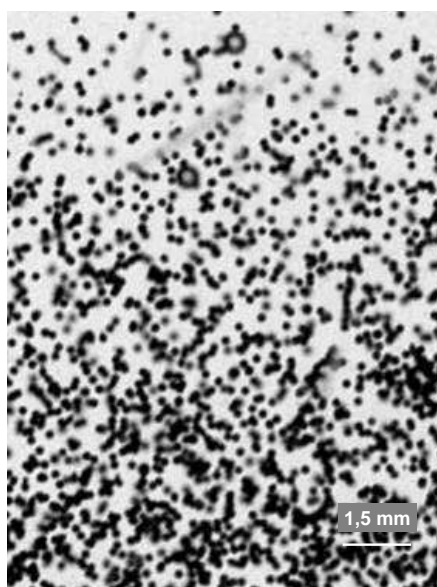


FIG. 4.II.10 - Haut de la suspension $\phi = 2\%$.

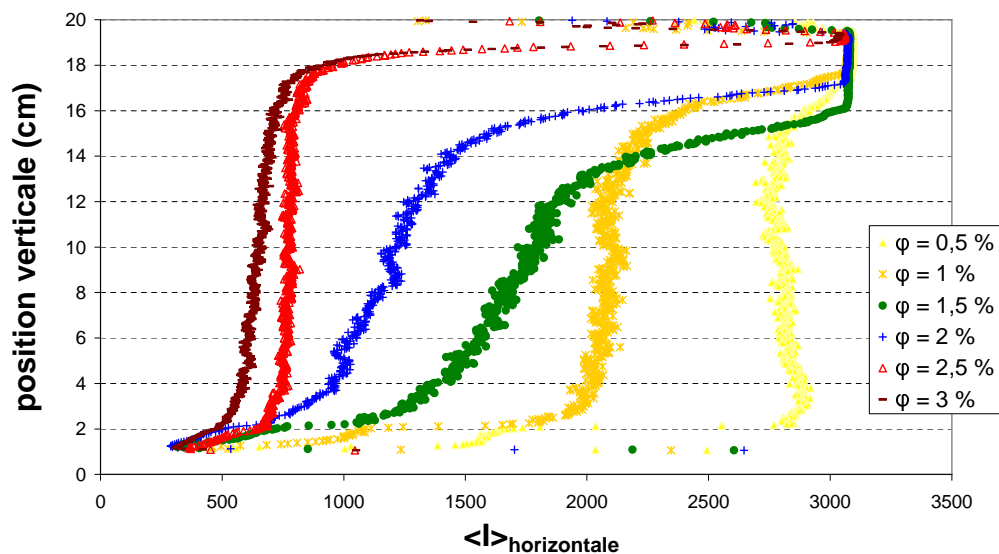


FIG. 4.II.11 – Intensité lumineuse moyennée pour toutes les horizontales sur la dernière image en fonction de la position verticale (par rapport au fond de la cellule). Au fond de la cellule l'intensité lumineuse moyenne est faussée par la présence du barreau aimanté. Les couleurs désignent la concentration en particules du marron pour $\phi=3\%$ au jaune pour $\phi=0,5\%$.

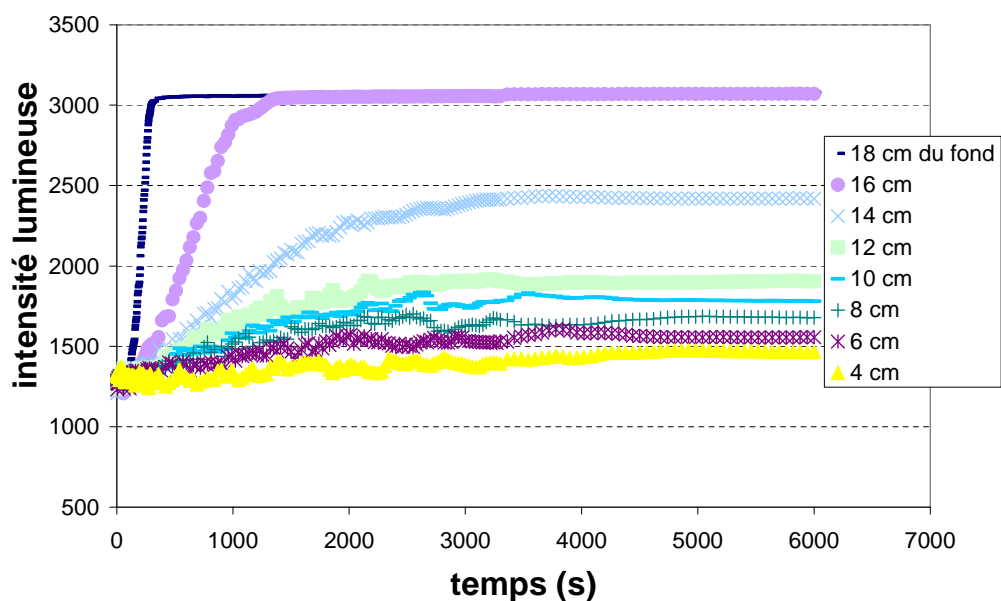


FIG. 4.II.12 – Évolution de l'intensité lumineuse moyennée sur différentes horizontales avec le temps. Expérience à 1,5 %.

$$V = V_0 \exp(-t/\tau_{susp}) \quad (4.2.4)$$

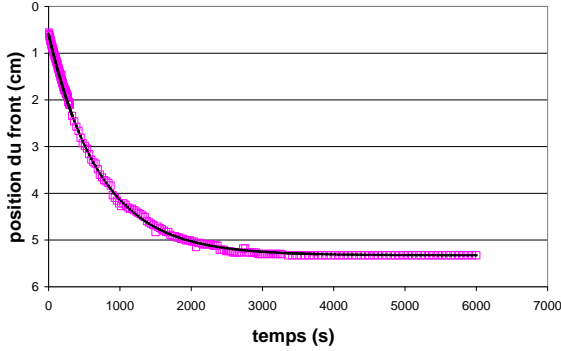


FIG. 4.II.13 – Évolution de la position du haut du front de sédimentation avec le temps. La courbe noire présente la solution du fit par une exponentielle décroissante. $\phi = 1,5\%$

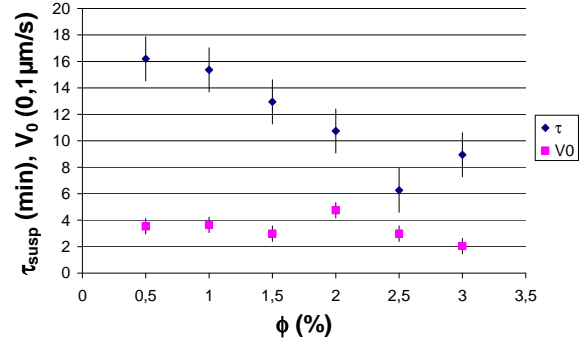


FIG. 4.II.14 – Évolution du temps τ_{susp} et de la vitesse V_0 caractéristiques de l'évolution du front de suspension avec la fraction volumique en particules.

Nous avons ainsi, pour toutes les fractions volumiques étudiées, ajusté l'équation (4.2.3) aux points expérimentaux. La figure 4.II.14 présente les résultats obtenus. Nous remarquons que la vitesse V_0 varie assez peu contrairement au temps τ_{susp} qui diminue avec la fraction volumique. Dans les expériences de particules isolées¹, le temps caractéristique de sédimentation était proche de 20 min. Ce temps caractéristique correspond au temps de restructuration sous contrainte faible mesuré en rhéologie, il est donc possible d'estimer le temps caractéristique de sédimentation d'une particule isolée correspondant aux expériences de suspensions autour de 20 minutes également. Nous pouvons remarquer que l'extrapolation du temps τ_{susp} à fraction volumique en particules nulle donne une valeur proche de 20 min.

La dispersion du front est plus importante dans la laponite que dans le cas newtonien. Nous avons décrit précédemment l'évolution de la vitesse d'une particule isolée avec le rayon de la particule dans la laponite comme dans le cas rhéofluidifiant ($V_p \sim a^{\frac{n+1}{n}}$).

$$disp = \frac{\Delta l_{front}}{l_{front_{min}}} \quad (4.2.5)$$

$$disp_{polydispersite} = \frac{V_{Stokes_{max}} - V_{Stokes_{min}}}{V_{Stokes_{min}}} = \frac{a_{max}^{(n+1)/n} - a_{min}^{(n+1)/n}}{a_{min}^{(n+1)/n}} \quad (4.2.6)$$

Dans le chapitre sur la laponite, nous avons mesuré l'indice de rhéofluidification n . Nous avons alors déterminé que l'indice n diminue avec le temps de vieillissement². Ainsi si l'effet de la polydispersité des

¹les particules utilisées étaient plus grosses que les particules de cette étude

²le vieillissement est différent ici car le fluide est sollicité par la présence des particules en sédimentation, l'indice n du fluide est donc différent. Mais nous allons garder cette estimation.

particules est plus important dans la laponite que dans le cas newtonien. Les valeurs expérimentales de $disp$ peuvent être évaluées à l'aide du profil vertical final (figure 4.II.11). Le profil final présente comme indiqué précédemment deux évolutions : la dispersion du front et le gradient final restant dans la colonne de sédimentation. Il n'est donc pas facile de discriminer les deux effets. Nous avons pour 2% fait une analyse entre les même iso-intensité que dans le cas newtonien qui nous donne $disp = 0,28$ qui est plus importante que dans le cas newtonien. Nous pouvons observer sur la figure 4.II.11 que la dispersion du front semble diminuer quand la fraction volumique augmente.

II.3.4 Agrégation

Nous avons réalisé des photos en fin de sédimentation pour observer la structuration finale (photos 4.II.6 à 4.II.9). Nous pouvons repérer que l'agrégation de quelques particules a eu lieu pour toutes les fractions volumiques étudiées. Il est également possible de quantifier l'agrégation à travers l'écart-type de l'intensité lumineuse. En effet, l'écart-type mesure l'écart à la moyenne de l'intensité lumineuse. Un écart-type important signifie la présence de zones significativement plus blanches et plus noires que la moyenne soit la présence d'agrégats. Nous avons alors mesuré l'écart-type de l'intensité lumineuse pour différentes hauteurs (présenté figure 4.II.15) pour la même expérience que pour les profils horizontaux. En haut de la cellule (à 18 et 16 cm du fond), l'écart-type diminue avec le temps de l'expérience car la fraction volumique en particules s'annule (l'écart-type restant vient de l'inhomogénéité de l'éclairage). À une hauteur intermédiaire (14 cm), l'écart-type augmente signe de la formation d'agrégat puis diminue lorsque la concentration en particules diminue. Plus près du fond, l'écart-type augmente pour atteindre une valeur finale identique pour toutes les hauteurs, signe que le nombre de particules agrégées est le même. La structuration dans la laponite se présente sous la forme d'agrégats de quelques particules en haut de la cellule au dessus d'agrégats plus gros.

II.4 Discussion

La cinétique du haut du front de sédimentation est correctement décrite de façon similaire à la dynamique de la sédimentation d'une particule isolée. Le temps caractéristique de cette cinétique diminue quand la fraction volumique en particules augmente. Ceci peut s'expliquer par la présence de nombreuses particules qui vont rajeunir le fluide. Toutefois, puisque la suspension s'arrête, le vieillissement reste prédominant face au cisaillement dû à la sédimentation des particules. Pour une particule isolée, on s'attend à un temps caractéristique de 20 min. Lorsque la fraction volumique en particules augmente le temps caractéristique de la suspension doit alors diminuer puisque l'on rajeunit le système. La vitesse initiale du front de sédimentation semble être déterminée par la contrainte exercée par une particule isolée puisqu'elle reste constante avec la fraction volumique en particules (dans la gamme de fractions volumiques étudiées). La présence de plusieurs particules ne modifie pas l'effet ressenti par le fluide.

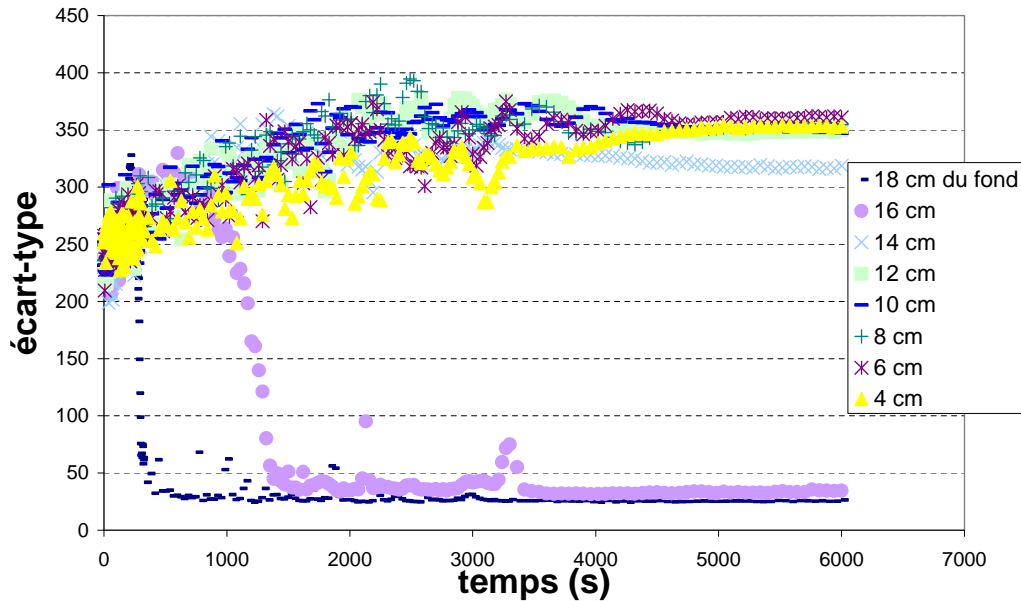


FIG. 4.II.15 – Évolution de l'écart-type de l'intensité lumineuse sur différentes horizontales avec le temps. Expérience à 1,5 %.

L'agrégation des particules a lieu dans la laponite comme nous l'avons sur les photos de près. Dans le cas rhéofluidifiant [57] l'agrégation est responsable de la formation de structures verticales dans les cellules de sédimentation. Ces structures se forment dès de très faibles fractions volumiques ($\phi = 0,2\%$). Dans la laponite les expériences ont été réalisées jusqu'à $\phi=3\%$ et n'ont pas montré de structuration globale dans la cellule de sédimentation. Dans le cas de la laponite les agrégats sont cependant présents et n'empêchent pas le vieillissement du fluide. La formation des agrégats peut également être trop tardive pour pouvoir former des structures globales. Ces agrégats sont aussi trop petits pour rajeunir suffisamment le fluide localement et ralentir voire empêcher le vieillissement.

II.5 Conclusion

La sédimentation de suspensions de particules non-browniennes dans la laponite a été étudiée à travers une première série d'expériences pour une seule série de paramètres. La sédimentation a lieu sur une longueur finie, la vitesse du front de sédimentation diminue jusqu'à l'arrêt de la sédimentation à cause du vieillissement du fluide. La dynamique du front de sédimentation est similaire à la dynamique de sédimentation d'une particule isolée en évoluant en exponentielle décroissante. Le temps caractéristique correspondant extrapolé à fraction volumique en particules nulle correspond au temps caractéristique estimé pour la sédimentation d'une particule isolée. Le temps caractéristique d'évolu-

tion du front des suspensions diminue avec la fraction volumique en particules ce qui semble venir d'un vieillissement modifié par la présence de nombreuses particules. L'agrégation des particules a lieu mais n'entraîne pas de structuration globale.

Conclusion

Dans ce manuscrit, nous avons étudié la sédimentation de particules dans la laponite. La sédimentation de particules dans des fluides de rhéologie complexe intervient dans différentes applications industrielles en particulier pétrolières. Une suspension de laponite possède des propriétés rhéologiques proches de la bentonite utilisée dans les boues de forage. Les suspensions de laponite ont par ailleurs fait l'objet de nombreuses études. La préparation des suspensions est jugée délicate pour obtenir un fluide reproductible, cependant, aucun consensus sur la méthode de préparation n'est clairement établi. La viscosité du fluide augmente fortement avec le temps lorsque le fluide est laissé au repos, on appelle cela "vieillessement". La cause du vieillissement est attribuée selon certaines équipes à un gel agrégatif dont les agrégats se réarrangent avec le temps de vieillissement, pour d'autres équipes la cause du vieillissement est attribuée à un verre colloïdal. La laponite est connue comme un fluide thixotrope à seuil mais les valeurs du seuil ne sont pas bien déterminées. La sédimentation d'une particule correspond à l'application d'une contrainte de cisaillement établie à partir des caractéristiques de la particule. La sédimentation a pour l'instant surtout été étudiée dans des solutions polymères : l'écoulement autour d'une particule isolée est plus étendu à l'aval de la particule dans les fluides élastiques (Boger) et présente une traînée négative (le fluide remonte à l'aval de la particule) dans certains fluides viscoélastiques.

Nous avons établi un protocole spécifique de préparation des suspensions de laponite. Une seule concentration en laponite a été étudiée, le paramètre qui a varié selon les expériences est le temps de vieillissement. Nous avons caractérisé la rhéologie du fluide en fonction du temps de vieillissement : thixotrope, à seuil, rhéofluidifiant et viscoélastique. Un comportement limite où la viscosité augmente en exponentielle avec un temps caractéristique autour de 20 min a été observé sous application d'une contrainte faible. Lorsqu'on augmente la contrainte appliquée, la viscosité augmente toujours mais avec un temps caractéristique plus long. Si on augmente encore la contrainte, la viscosité diminue avec le temps de vieillissement avant d'atteindre une valeur constante. Il est possible de définir deux limites en contrainte entre ces différents régimes d'écoulement. Ces deux contraintes augmentent avec le temps de vieillissement. Dans la laponite, nous n'avons pas défini de **contrainte seuil** entre écoulement et arrêt mais des **limites en contrainte** entre différents régimes d'écoulement. On s'attend donc dans un tel fluide qu'une "petite" particule sédimente avec une vitesse qui diminue avec le temps de vieillissement.

Les expériences de sédimentation d'une particule isolée ont montré que la vitesse de la particule évolue avec le temps de vieillissement en exponentielle décroissante avec un temps caractéristique de l'ordre de 20 min. Ce temps indique que la sédimentation d'une particule isolée n'empêche pas l'existence du régime limite de vieillissement du fluide car le temps caractéristique obtenu correspond à l'application d'une contrainte faible sur le fluide. La variation de la vitesse de la particule avec le rayon de la particule est identique au cas rhéofluifiant. La particule sédimente et tend vers une position d'arrêt; cette position peut être calculée initialement avec l'âge du fluide au moment du lâcher de la particule et du type de particule. L'écoulement du fluide autour d'une particule qui sédimente a montré deux régimes limites soit proche du cas newtonien, soit avec une traînée négative. Ceci peut s'expliquer par l'élasticité du fluide qui entraîne le fluide vers le haut après le passage de la particule. Pour la particule d'acier le passage d'un régime à l'autre est dû à l'augmentation de l'élasticité avec le temps de vieillissement. L'évolution de la biréfringence autour de la particule induite par la sédimentation de la particule a été étudiée. Le signal de biréfringence est très différent du champ de vitesse. La relaxation du signal de biréfringence après le passage de la particule est caractérisée par une exponentielle étirée avec un temps moyen qui augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement.

La sédimentation de deux particules a été étudiée dans le cas d'un écoulement autour d'une particule isolée qui ressemble au cas newtonien et en présence d'une traînée négative. Contrairement au cas newtonien, les particules s'agrègent si elles sont suffisamment proches dans les deux cas. Il est possible de définir un temps entre le lâcher des particules en deçà duquel celles-ci s'agrègent au delà de ce temps, le système a relaxé, la seconde particule "voit" du fluide "frais".

Une première étude de sédimentation de suspensions monodisperses de particules de petites tailles a été réalisée. À cause du vieillissement du fluide, la suspension s'arrête quelle que soit la fraction volumique en particules (dans la gamme étudiée : entre 0,5 et 3%). Bien que l'on observe également la formation d'agrégats de particules, contrairement au cas rhéofluifiant, il n'y a pas de formation de structure de colonnes de particules sur toute la cellule de sédimentation. Ceci peut venir du fait que les agrégats sont trop petits ou formés trop tard. La dynamique du front de sédimentation est correctement décrite par la dynamique de sédimentation d'une particule isolée (exponentielle décroissante) avec un temps caractéristique qui diminue avec la fraction volumique en particules. Si on extrapole ce temps à fraction volumique nulle, il est alors égal au temps caractéristique d'une particule isolée. La diminution de ce temps avec la fraction volumique peut être comprise comme le rajeunissement local du fluide par l'ajout de particules sans toutefois quitter le régime de vieillissement global.

La sédimentation de particules dans un fluide thixotrope "à seuil" est donc entièrement décrite par l'évolution temporelle de la viscosité du fluide.

Les expériences réalisées ont montré différents temps de relaxation avec le temps de vieillissement. La rhéologie et la sédimentation ont conduit à un comportement limite avec un temps caractéristique de 20 min si la contrainte dans le fluide est faible ou si la particule est isolée. Les expériences de biréfringence ont conduit à un temps de relaxation qui augmente exponentiellement avec le temps de vieillissement de quelques secondes pour les premiers temps de vieillissement étudiés à près de 20 min pour les temps de vieillissement longs. La sédimentation de deux particules a conduit à définir un temps de coupure de quelques secondes au delà duquel les particules ne forment pas d'agrégat. Le front de sédimentation des suspensions peut être décrit avec un temps caractéristique qui diminue avec la fraction volumique en particules ; si on extrapole la fraction volumique en particules à 0, ce temps est de l'ordre de 20 min. Ce qui signifie que si plusieurs particules sont présentes en même temps dans le fluide, celui-ci est "rajeuni" et le temps caractéristique correspondant diminue.

Pour conclure ce travail, nous pouvons définir les paramètres importants pour la description de la sédimentation de suspensions de particules dans un fluide thixotrope à seuil. Le paramètre le plus important est le temps caractéristique qui définit l'évolution de la vitesse et de la longueur parcourue avant l'arrêt même dans les suspensions de particules (selon les premières expériences réalisées). Pour l'application pétrolière, il est important de retenir que les particules sédimentent toutes sur une longueur finie. Pour connaître cette longueur, il faut connaître le temps caractéristique limite du fluide. Pour le mesurer il suffit d'appliquer une contrainte faible pendant un temps suffisamment long (par rapport au temps caractéristique du fluide utilisé) et de réaliser deux mesures une initialement et l'autre un peu plus tard pour obtenir ce temps.

L'étude va se poursuivre en étudiant la sédimentation de particules de différentes tailles, en analysant quantitativement les données de la sédimentation de suspensions, en étudiant la sédimentation de particules de tailles plus importantes qui peut-être quitteront le régime de vieillissement du fluide, formeront soit des agrégats plus gros, ou auront une cinétique d'agrégation suffisamment rapide pour changer la dynamique de sédimentation.

Annexes

Annexe A

Notations

Les notations de ce tableau ont été utilisées dans ce manuscript, les notations entre parenthèses ne seront pas utilisées dans cet ouvrage mais sont couramment utilisées en particulier dans certains ouvrages cités dans cette thèse.

$\overrightarrow{\cdot}$	tenseur ayant comme nom générique \cdot
$\overrightarrow{\gamma}$	tenseur déformation
$\overrightarrow{\dot{\gamma}}$	tenseur gradient de cisaillement
γ_{LV}	tension de surface entre un liquide et sa vapeur (habituellement notée γ cette notation est préférée pour garder γ pour la rhéologie)
$\Delta\rho$	différence de masse volumique entre les particules et le fluide suspendant (ici de l'eau 1 g/cm ³)
ε	élongation
η	viscosité de cisaillement (notée aussi μ)
$\bar{\eta}$	viscosité élongationnelle (notée aussi η_E)
λ	paramètre de structure qui caractérise l'évolution de la microstructure dans le cas d'un fluide thixotrope
λ_1	temps de relaxation du fluide
$\overrightarrow{\sigma}$	tenseur des contraintes (noté aussi $\overrightarrow{\tau}$, ici τ désignera toujours un temps caractéristique)
σ ou σ_{xy}	contrainte de cisaillement (noté aussi τ)
τ	temps caractéristique d'évolution de la laponite (rhéologie et sédimentation)
a	rayon des particules qui sédimentent
B	nombre de Bingham : compare la contrainte dans le fluide (due à l'écoulement) à la contrainte seuil.

De	nombre de Deborah : compare le temps de l'observation d'un phénomène à son temps caractéristique
G	module élastique
N_1	1 ^{ère} différence de contraintes normales
N_2	2 ^{nde} différence de contraintes normales
Pe	nombre de Peclet : compare le mouvement brownien au mouvement hydrodynamique (sédimentation, cisaillement).
PIV	Particle Image Velocimetry qui veut dire vélocimétrie par image de particules. Technique utilisée pour calculer le champ de vitesse
Ra	nombre de Rayleigh : compare la convection et la diffusion
Re	nombre de Reynolds : compare les effets inertiels et les effets visqueux
t_{exp}	temps de l'expérience de sédimentation
t_L	temps de lâché de la particule
t_w	temps de vieillissement du fluide
temps de Stokes	temps que met une particule pour se déplacer de son diamètre
V_o	vitesse de sédimentation extrapolée à $t_w=0$
V_p	vitesse des particules
We	nombre de Weissenberg : compare le temps de relaxation du fluide et l'inverse du gradient de cisaillement

Annexe B

Principe et vocabulaire de la rhéologie

La rhéologie existe depuis que les matériaux sont étudiés c'est-à-dire depuis les temps les plus anciens, elle est devenue une discipline explicitement au début du $XX^{\text{ème}}$ siècle. Le mot "rhéologie" a été créé à ce moment-là. Il vient du verbe grec $\rho\tilde{\epsilon}\iota\nu$ qui veut dire couler et du nom $\lambda\acute{o}\gamma\omicron\varsigma$ qui veut dire science. La définition du mot rhéologie est de E.C. Bingham :

"Rheology is the study of the deformation and flow of matter"

Dans le cas newtonien, on peut définir la viscosité d'un fluide (on considère toujours un fluide incompressible) comme un scalaire reliant le tenseur des contraintes et le tenseur des taux de déformation :

$$\overrightarrow{\sigma} = \eta \overrightarrow{\dot{\gamma}} \quad (\text{B.1})$$

Dans le cas d'un solide de Hooke, on a une relation scalaire entre le tenseur des contraintes et le tenseur des déformations :

$$\overrightarrow{\sigma} = G \overrightarrow{\gamma} \quad (\text{B.2})$$

Dans le cas d'un fluide non-newtonien, il n'y a plus de proportionnalité, la relation entre ces tenseurs peut devenir non-linéaire et/ou dépendre du temps.

Ainsi dans le cas des fluides non-newtoniens, il est possible d'observer des effets assez spectaculaires. Un jet de polymères en sortie d'un tube se gonfle, une tige en rotation dans certains polymères entraîne le fluide selon la verticale (effet Weissenberg présenté sur la photo figure B.4).

Pour caractériser les propriétés de ces fluides, on les soumet à des conditions d'écoulement connues (respectivement $\overrightarrow{\sigma}$, $\overrightarrow{\dot{\gamma}}$ ou $\overrightarrow{\gamma}$) et on mesure leur réponse (les autres paramètres). On considère généralement deux types d'écoulement de géométries simples : le cisaillement simple ou l'élongation uniaxe.

B.1 Cisaillement simple

Dans le cas de l'écoulement de cisaillement simple, le fluide est cisailé entre deux plaques parallèles ayant un mouvement opposé de translation dans la direction x , à la vitesse \bar{u} comme le montre la figure B.1. L'écoulement réalisé donne des gradients de cisaillement et une contrainte de la forme des équations B.3 et B.4.

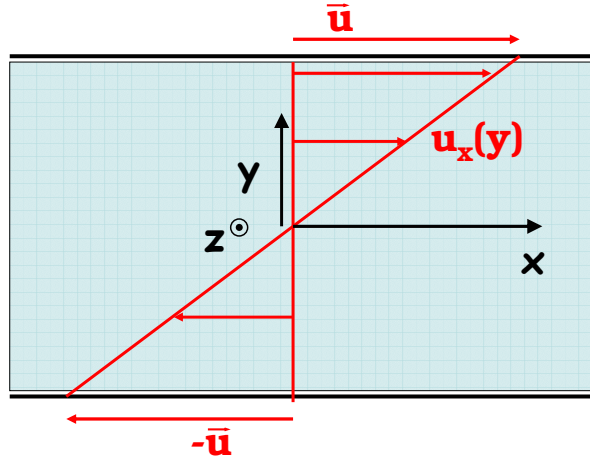


FIG. B.1 – Écoulement de cisaillement simple.

$$\overrightarrow{\dot{\gamma}} = \begin{pmatrix} 0 & \dot{\gamma}_{xy} & 0 \\ \dot{\gamma}_{yx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{B.3})$$

$$\overrightarrow{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0 \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (\text{B.4})$$

Par définition de $\overrightarrow{\dot{\gamma}}$ (partie symétrique du gradient de vitesse), on a $\dot{\gamma}_{yx} = \dot{\gamma}_{xy}$ ce qui permet de définir le gradient de cisaillement comme un scalaire $\dot{\gamma}$. Par ailleurs, on a par symétrie $\sigma_{yx} = \sigma_{xy}$ que l'on appelle alors simplement contrainte de cisaillement noté σ . L'analyse des composantes se fait alors sous forme scalaire, on définit $\eta(\dot{\gamma})$ comme la viscosité de cisaillement à l'aide de l'équation :

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

On définit également des grandeurs qui décrivent la différence de contraintes normales : $N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$ différence du 1^{er} ordre et $N_2 = \sigma_{yy} - \sigma_{zz}$ différence du 2nd ordre (en général $N_1 > N_2$). En pratique l'écoulement de cisaillement simple peut être réalisé facilement pour un liquide à l'aide de cylindres coaxiaux ou de système cône/plan. Le fluide est alors cisailé entre le cône mobile et le plan fixe. La rotation du mobile permet d'atteindre facilement un régime permanent et de solliciter le milieu en régime

stationnaire (en régime oscillatoire ou permanent). La connaissance de la géométrie du système, de la vitesse de rotation du mobile et des forces pour réaliser la rotation et maintenir verticalement le mobile permettent de contrôler et/ou déterminer les paramètres $\eta(\dot{\gamma})$, N_1 et N_2 . De ce fait cet écoulement a été beaucoup étudié, ainsi les paramètres rhéologiques sont souvent déterminés pour ce type d'écoulement uniquement. La viscosité de cisaillement est par abus de langage souvent appelée simplement viscosité (ce sera parfois le cas dans cette étude).

B.2 Élongation uniaxe

Dans le cas de l'élongation uniaxe, on soumet un élément de longueur l du fluide à tester à une traction ou compression (selon un axe que l'on définit comme l'axe x) à déformation, vitesse de déformation ou contrainte imposée et on mesure les autres paramètres comme le présente la figure B.2. On définit pour ce type d'écoulement, une grandeur que l'on appelle taux d'élongation ($\dot{\epsilon}$) qui permet de relier par la relation (B.5) la longueur l de l'éprouvette à sa longueur initiale. Le tenseur des taux de déformation dans le fluide prend alors la forme de l'équation (B.6) et la contrainte l'équation (B.7).

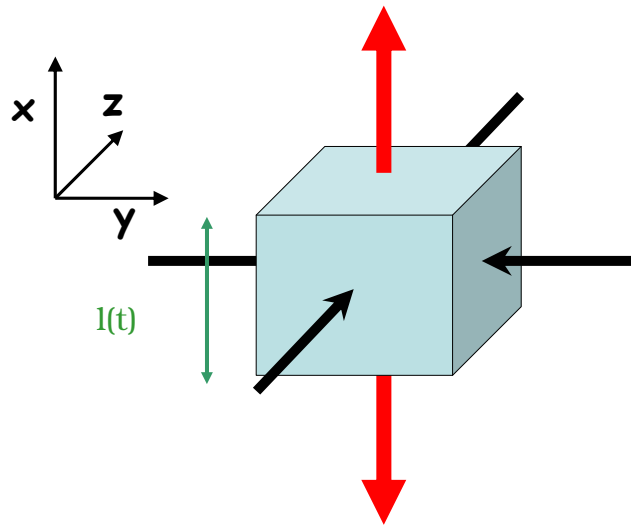


FIG. B.2 – Écoulement d'élongation uniaxe.

$$\dot{\epsilon} = \frac{1}{l} \frac{dl}{dt} \quad (\text{B.5})$$

$$\vec{\dot{\gamma}} = \begin{pmatrix} 2\dot{\epsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -\dot{\epsilon} & 0 \\ 0 & 0 & -\dot{\epsilon} \end{pmatrix} \quad (\text{B.6})$$

$$\overrightarrow{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (\text{B.7})$$

De la même manière que pour le cas du cisaillement simple il est possible de définir et de mesurer une viscosité élongationnelle $\bar{\eta}(\dot{\epsilon})$:

$$\sigma_{xx} - \sigma_{yy} = \bar{\eta}(\dot{\epsilon}) \dot{\epsilon}$$

et par symétrie on a $\sigma_{zz} = \sigma_{yy}$. Il existe une relation entre la viscosité élongationnelle et la viscosité de cisaillement pour les fluides newtoniens $\bar{\eta}(\dot{\epsilon}) = 3\eta(\dot{\gamma})$. Pour décrire le caractère élongationnel d'un fluide, les rhéologues ont défini le rapport de Trouton :

$$T_R = \frac{\bar{\eta}(\dot{\epsilon})}{\eta(\dot{\gamma})}$$

Ainsi un fluide élastique présentera un important nombre de Trouton. La valeur de ce nombre peut varier de plusieurs ordre de grandeurs pour les polymères flexibles.

Un écoulement de type élongation simple est réalisable avec une machine de force par exemple (il s'agit de tests très bien connus et utilisés en mécanique des matériaux solides) ; il est cependant difficile à réaliser en régime permanent et pour les matériaux liquides.

B.3 Différents types de comportement des fluides

Les fluides sont généralement décrits selon plusieurs catégories comme indiqué ci-après (la plupart appartiennent à plusieurs catégories comme la laponite fluide rhéofluidifiant, à seuil et fortement thixotrope).

Tout d'abord il est possible de définir deux grandes familles, les fluides indépendants du temps et les fluides dépendants du temps. Voyons dans un premier temps les **fluides indépendants du temps** :

fluide rhéofluidifiant fluide dont la viscosité diminue avec le gradient de cisaillement (assez fréquent)
par exemple un polymère comme le xanthane

fluide rhéoépaississant fluide dont la viscosité augmente avec le gradient de cisaillement (assez rare)
par exemple la maïzena utilisée en cuisine

fluide à seuil fluide qui ne s'écoule que si une contrainte suffisamment importante est exercée sur le fluide ($\sigma > \sigma_0$ contrainte seuil) par exemple le dentifrice dans son tube

fluide élastique fluide présentant une forte différence de contraintes normales (N_1 et/ou N_2)

fluide de Boger fluide à viscosité de cisaillement constante avec le gradient de cisaillement présentant une forte différence de contraintes normales

Fluides dépendants du temps :

fluide viscoélastique fluide dont l'écoulement met un certain temps à s'établir

fluide thixotrope fluide dont la structure microscopique évolue avec le gradient de cisaillement de manière fortement irréversible (le temps de restructuration est beaucoup plus long que le temps de déstructuration)

Les différents termes utilisés ici ne recouvrent pas toujours les mêmes réalités selon les auteurs. Ces notations seront utilisées dans l'ensemble de ce travail.

B.4 Description microscopique

Ces comportements peuvent être compris en considérant la structure microscopique des fluides. Par exemple une solution de polymères présente souvent un rhéogramme (courbe représentant deux grandeurs rhéologiques comme par exemple la contrainte en fonction du gradient de cisaillement) de la forme présentée sur la figure (B.3). Il est possible d'expliquer ce comportement : aux faibles gradients le polymère est sous forme de pelote isotrope, la contrainte est donc issue du frottement entre les pelotes et le fluide et entre pelotes ; à plus fort gradient, les pelotes se "débobinent", la résistance à l'écoulement est donc plus faible, la viscosité finit par être aux très forts gradients de cisaillement du même ordre de grandeur que le fluide suspendant (les polymères désormais complètement alignés n'influençant plus que très faiblement l'écoulement).

On peut également expliquer l'effet Weissenberg (photo de la figure B.4) par l'existence de différences de contraintes normales pour une solution de polymère soumise à un cisaillement simple. À cause de l'écoulement le gradient de cisaillement rend anisotropes les pelotes et en moyenne les oriente dans une direction privilégiée, la force dans la direction de l'écoulement est donc plus forte que dans les directions orthogonales. Ainsi un mouvement se crée vers la tige en rotation et dans la direction verticale vers le haut. Un polymère rigide ne pourra pas être beaucoup déformé par l'écoulement, il présentera ainsi de faibles différences de contraintes normales et un effet Weissenberg négligeable.

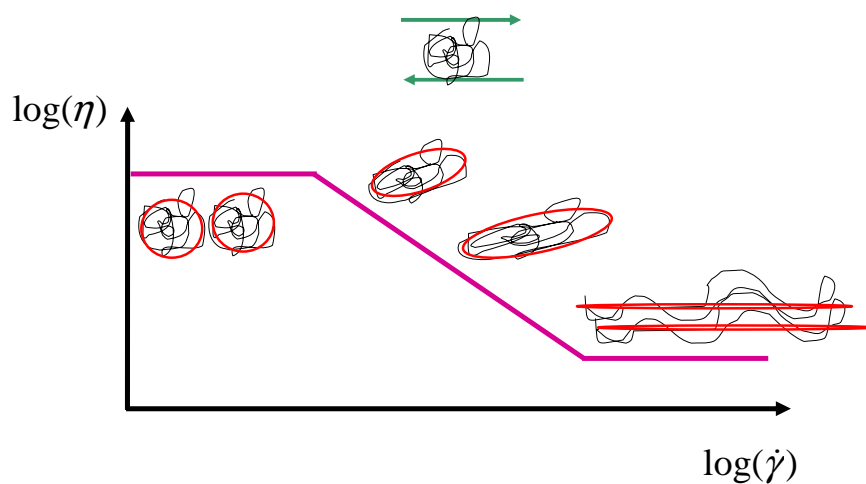


FIG. B.3 – Rhéogramme typique d'une solution de polymère et description microscopique de l'écoulement.

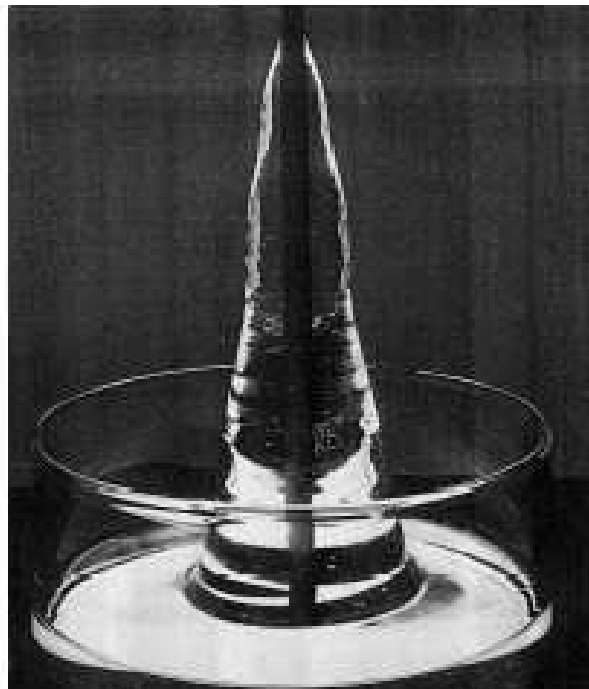


FIG. B.4 – Effet Weissenberg (photo issue de [23]). La tige centrale est en rotation ; le cristallisateur est fixe. Le fluide est une solution de polyisobutylène de haut poids moléculaire dans un solvant de même nature et de bas poids moléculaire.

Annexe C

Calcul du déplacement d'un paquet de fluide à la verticale de la particule pendant son déplacement

Les expériences de PIV sont réalisées avec un déplacement de la particule conséquent (de l'ordre du diamètre de la particule). Nous ne mesurons donc pas le champ de vitesse instantané du fluide mais le déplacement de paquets de fluide pendant que la particule se déplace. Nous avons voulu regarder l'effet de cette approximation sur ce qui se passe à la verticale de la particule dans le cas newtonien. Cette annexe présente donc complètement toutes les étapes du calcul que nous avons effectué pour calculer le déplacement de paquets de fluide.

La vitesse verticale du fluide à la verticale de la particule s'écrit dans le référentiel du laboratoire :

$$V_z = V_p \left(\frac{3a}{2r} - \frac{a^3}{2r^3} \right) \quad (\text{C.1})$$

Avec V_p vitesse de la particule

a le rayon de la particule

r la distance entre le paquet de fluide considéré et le centre de la particule

La vitesse à la verticale de la particule peut s'écrire $V_z = \frac{dr}{dt}$ et donner l'équation C.2. Il est possible de séparer les variables r et t de cette équation (équation C.3), de décomposer en éléments simples (équation C.4) et de l'intégrer en fonction du temps (équation C.5 simplifiable en C.6).

$$\frac{dr}{dt} = V_p \left(\frac{3a}{2r} - \frac{a^3}{2r^3} \right) \quad (\text{C.2})$$

$$\frac{1}{V_p} \frac{2r^3 dr}{3ar^2 - a^3} = dt \quad (\text{C.3})$$

$$\frac{dr}{V_p} \left\{ \frac{2r}{3a} + \frac{a}{9(r + \frac{a}{\sqrt{3}})} + \frac{a}{9(r - \frac{a}{\sqrt{3}})} \right\} = dt \quad (\text{C.4})$$

$$\frac{1}{V_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{r^2}{a} + \frac{a}{9} \ln \left| r + \frac{a}{\sqrt{3}} \right| + \frac{a}{9} \ln \left| r - \frac{a}{\sqrt{3}} \right| \right\} + cste = t \quad (\text{C.5})$$

$$\frac{1}{V_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{r^2}{a} + \frac{a}{9} \ln(3r^2 - a^2) \right\} + cste' = t \quad (\text{C.6})$$

L'équation obtenue dépend des conditions initiales. Nous définissons alors : r_0 la position initiale du paquet de fluide concerné. La constante d'intégration $cste'$ vaut alors :

$$cste' = -\frac{1}{3} \frac{r_0^2}{aV_p} - \frac{1}{9} \frac{a \ln(3r_0^2 - a^2)}{V_p} \quad (\text{C.7})$$

Nous obtenons alors l'équation implicite suivante à résoudre pour obtenir $r(r_0)$ évolution de la position du paquet de fluide avec sa position initiale pour un déplacement $V_p t$:

$$\frac{1}{V_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{r^2}{a} + \frac{a}{9} \ln(3r^2 - a^2) \right\} - \frac{1}{3} \frac{r_0^2}{aV_p} - \frac{1}{9} \frac{a \ln(3r_0^2 - a^2)}{V_p} = t \quad (\text{C.8})$$

Nous avons résolu cette équation avec le logiciel *Maple*. Elle fait appel à une série de fonction appelée *LambertW* définie par l'équation C.9 dont nous ne prenons que l'ordre 0. Nous simplifierons l'écriture en écrivant : $LambertW = W$. Nous avons alors l'équation C.10.

$$LambertW(x) + \exp(LambertW(x)) = x \quad (\text{C.9})$$

$$r(r_0) = \frac{1}{3} \left(3 \exp \left\{ \frac{-W \left(\frac{\exp(-a^2 + 9taV_p + 3r_0^2 + a^2 \ln(3r_0^2 - a^2))}{a^2} \right)}{a^2} \right\} a^2 + \frac{-a^2 + 9taV_p + 3r_0^2 + a^2 \ln(3r_0^2 - a^2)}{a^2} \right)^{1/2} + 3a^2 \quad (\text{C.10})$$

Pour nos expériences de PIV entre deux images, nous avons mesuré le *déplacement* de paquets de fluide normé par le déplacement de la particule soit

$$\Delta r = \frac{r(r_0) - r_0}{V_p t}$$

Or les résultats sont obtenus dans le repère du laboratoire le changement de repère se fait simplement : $\Delta z = \Delta r$ et $r_0 = z_{t0} - z_0$ avec z_{t0} la position initiale du paquet de fluide et z_0 la position initiale de la particule dans le repère du laboratoire.

Nous avons réalisé ce calcul de déplacement en utilisant le logiciel *Maple* pour des valeurs déterminées de z_{t0} dans des conditions similaires aux conditions expérimentales.

Bibliographie

- [1] Sandrine Daugan. *Sédimentation de particules isolées et en suspensions en milieu rhéofluidifiant*. PhD thesis, Université Paris XI, 2002.
- [2] F. Evans and H. Wennerström. *The Colloidal Domain*. Wiley-vch, 1999.
- [3] P. Coussot and C. Ancey. *Rhéophysique des pâtes et des suspensions*. EDP Sciences, 1999.
- [4] P. Levitz, E. Lecolier, A. Mourchid, A. Delville, and S. Lyonnard. Liquid-solid transition of laponite suspensions at very low ionic strength : Long-range electrostatic stabilisation of anisotropic colloids. *Europhys. Lett.*, 49 :672–677, 2000.
- [5] Éric Lécolier. *Suspensions aqueuses de particules colloïdales anisotropes et chargées : structure et dynamique*. PhD thesis, Université d'Orléans, 1998.
- [6] C. Martin, F. Pignon, J.-M. Piau, A. Magnin, P. Lindner, and B. Cabane. Dissociation of thixotropic clay gels. *Phys. Rev. E*, 66 :021401, 2002.
- [7] F. Pignon, J.M. Piau, and A. Magnin. Structure and pertinent length scale of a discotic clay gel. *Phys. Rev. Lett.*, 76 :4857, 1996.
- [8] B. Abou, D. Bonn, and J. Meunier. Aging dynamics in a colloidal glass. *Phys. Rev. E*, 64 :021510, 2001.
- [9] B. Abou, D. Bonn, and J. Meunier. Nonlinear rheology of laponite suspensions under an external drive. *J. Rheol.*, 47(4) :979–987, 2003.
- [10] D. Bonn, H. Kellay, H. Tanaka, G. Wegdam, and J. Meunier. Laponite : What Is the Difference between a Gel and a Glass? *Langmuir*, 15 :7534–7536, 1999.
- [11] D. Bonn, S. Tanase, B. Abou, H. Tanaka, and J. Meunier. Laponite : Aging and Shear Rejuvenation of a Colloidal Glass. *Phys. Rev. Lett.*, 89(1) :015701, 2002.
- [12] D. Bonn, H. Tanaka, G. Wegdam, H. Kellay, and J. Meunier. Aging of a colloidal "Wigner" glass. *Europhys. Lett.*, 45 :52–57, 1998.

- [13] D. Bonn, P. Coussot, H.T. Huynh, and F. Bertrand. Rheology of soft glassy materials. *Europhys. Lett.*, 59(5) :786–792, 2002.
- [14] Philippe Mongondry. *Structure et comportement rhéologique des suspensions aqueuses de Laponite en présence de plusieurs additifs*. PhD thesis, Université du Maine-Le Mans, 2003.
- [15] S. Cocard, J.F. Tassin, and T. Nicolai. Dynamical mechanical properties of gelling colloidal disks. *J. Rheol.*, 44(3) :585–594, 2000.
- [16] C. Wilhelm, F. Elias, J. Browaeys, A. Ponton, and J.-C. Bacri. Local rheological probes for complex fluids : Application to Laponite suspensions. *Phys. Rev. E*, 66(021502), 2002.
- [17] T. Ferroir, H.T. Huynh, X. Chateau, and P. Coussot. Motion of a solid object through a pasty (thixotropic) fluid. *Phys. of Fluids*, 16 :594–601, 2004.
- [18] D. W. Thompson and J. T. Butterworth. The Nature of Laponite and Its Aqueous Dispersions. *J. Colloid Interface Sci.*, 151(1) :236–243, 1992.
- [19] M. Bellour, A. Knaebel, J.L. Harden, F. Lequeux, and J.-P. Munch. Aging processes and scale dependence in soft glassy colloidal suspensions. *Phys. rev. E*, 67(031405), 2003.
- [20] S. Jabbari-Farouji, E. Eiser, G.H. Wegdam, and D. Bonn. Ageing dynamics of translational and rotational diffusion in a colloidal glass. *J. Phys. : Condens. Matter*, 16 :L471–L477, 2004.
- [21] H.A. Barnes, J.F. Huton, and K. Walters. *An introduction to Rheology*. Elsevier, 1989.
- [22] R.B. Bird, R.C. Armstrong, and O. Hassager. *Dynamics of polymeric liquids*. John Wiley & Sons, 2nd edition, 1987.
- [23] D.V. Boger and K. Walters. *Rheological phenomena in focus*. Elsevier, 1993.
- [24] R.I. Tanner. *Engineering Rheology*. Oxford Engineering Science, 1985.
- [25] K.S. Avramidis and R.M. Turian. Yield Stress of Laterite Suspensions. *J. Colloid Interface Sci.*, 143 :54–68, 1990.
- [26] *livre des Judges, Bible de Jérusalem*, chapter 5-5. Desclée de Brouwer, traduction française du cerf edition.
- [27] H.A. Barnes. Thixotropy-a review. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 70 :1–33, 1997.
- [28] A. Mujumdar, A.N. Beris, and A.B. Metzner. Transient phenomena in thixotropic systems. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 102 :157–178, 2002.
- [29] H. Usui. A thixotropy model for coal-water mixtures. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 60 :259–275, 1995.

- [30] P. Coussot, Q.D. Nguyen, H.T. Huynh, and D. Bonn. Viscosity bifurcation in thixotropic, yielding fluids. *J. Rheol.*, 46(3) :573–589, 2002.
- [31] P. Coussot, Q.D. Nguyen, H.T. Huynh, and D. Bonn. Avalanche behavior in yield stress fluids. *Phys. Rev. Lett.*, 88(175501), 2002.
- [32] C.J.S. Petrie. Extensional viscosity : A critical discussion. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 2006.
- [33] G.H. McKinley and A. Tripathi. How to extract newtonian viscosity from capillary breakup measurements in a filament rheometer. *J. Rheol.*, 44(3) :653, 2000.
- [34] L. Jossic and A. Magnin. Drag and Stability of Objects in a Yield Stress Fluid. *AIChE J.*, 47(12) :2666–2672, 2001.
- [35] A. Magnin and J.M. Piau. Shear rheometry of fluids with a yield stress. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 23 :91–106, 1987.
- [36] A. Magnin and J.M. Piau. cone-and-plate rheometry of yield stress fluids. Study of an aqueous gel. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 36 :85–108, 1990.
- [37] J. Happel and H. Brenner. *Low Reynolds Number Hydrodynamics*. Martinus Nijhoff Publisher, 2 edition, 1973.
- [38] G.K. Batchelor. Sedimentation in a dilute dispersion of spheres. *J. Fluid Mech.*, 52 :245–268, 1972.
- [39] W.B. Russel, D.A. Saville, and W.R. Schowalter. *Colloidal Dispersions*. Cambridge University Press, 1989.
- [40] J.F. Richardson and W.N. Zaki. The sedimentation of a suspension of uniform spheres under conditions of viscous flow. *Chem. Eng. Sc.*, 3(2) :65–73, 1954.
- [41] B. Mena, O. Manero, and L.G. Leal. The influence of rheological properties on the slow flow past spheres. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 26 :247–275, 1987.
- [42] B. Yang and B. Khomami. Simulations of sedimentation of a sphere in a viscoelastic fluid using molecular based constitutive models. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 82 :429–452, 1999.
- [43] M.J. Solomon and S.J. Muller. Flow past a sphere in polystyrene-based boger fluids : the effect on the drag coefficient of finite extensibility, solvent quality and polymer molecular weight. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 62 :91–94, 1996.
- [44] E.T.J. Bot, M.A. Hulsen, and B.H.A.A. Van den Brule. The motion of two spheres falling along their line of centres in a boger fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 79 :191–212, 198.

- [45] Y.B. He, J.S. Laskowski, and B. Klein. Particle movement in non-Newtonian slurries : the effect of yield stress on dense separation. *Chem. Engineering Sci.*, pages 2991–2998, 2001.
- [46] D.D. Atapattu, R.P. Chhabra, and P.H.T. Uhlherr. Creeping sphere motion in Herschel-Buckley fluids : flow field and drag. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 59 :245–265, 1995.
- [47] M. Hariharaputhiran, R.S. Subramanian, G.A. Campbell, and R.P. Chhabra. The settling of spheres in a viscoplastic fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 79 :87–97, 1998.
- [48] G. Gheissary and B.H.A.A. Van den Brule. Unexpected phenomena observed in particle settling in non-newtonian media. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 67 :1–18, 1996.
- [49] N.P. Chafe and J.R. de Bruyn. Drag and relaxation in a bentonite clay suspension. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 131 :44–52, 2005.
- [50] M.J. Riddle, C. Narvaez, and R.B. Bird. Interaction between two spheres falling along their line of centers in a viscoelastic fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 2 :23–35, 1977.
- [51] D.D. Joseph, Y.J. Liu, M. Poletto, and J. Feng. Aggregation and dispersion of spheres falling in viscoelastic liquids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 54 :45–86, 1994.
- [52] S. Daugan, L. Talini, B. Herzhaft, and C. Allain. Aggregation of particles settling in shear-thinning fluids- three particles aggregation. *Eur. Phys. J. E*, 9 :55–62, 2002.
- [53] S. Daugan, L. Talini, B. Herzhaft, and C. Allain. Aggregation of particles settling in shear-thinning fluids- two particles aggregation. *Eur. Phys. J. E*, 7 :73–81, 2002.
- [54] O. Merkak, L. Jossic, and A. Magnin. Spheres and interactions between spheres moving at very low velocities in a yield stress fluid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 133 :99–108, 2006.
- [55] S. Bobroff and R.J. Phillips. Nuclear magnetic resonance imaging investigation of sedimentation of concentrated suspensions in non-Newtonian fluids. *J. Rheol.*, 42 :1419–1436, 1998.
- [56] S. Daugan, L. Talini, B. Herzhaft, Y. Peysson, and C. Allain. Sedimentation of suspensions in shear-thinning fluids. *Oil and Gas Science and Technology*, 59(1) :71–80, 2004.
- [57] S. Mora, L. Talini, and C. Allain. Structuring sedimentation in a shear-thinning fluid. *Phys. Rev. Lett.*, 95(088301), 2005.
- [58] E. Guyon, J.P. Hulin, and L. Petit. *Hydrodynamique physique*. CNRS edition, 1991.
- [59] O. G. Hassager. Negative wake behind bubbles in non-newtonian liquids. *Nature*, 279 :402–403, 1979.

- [60] M.T. Arigo, D. Rajagopalan, N. Shapley, and G.H. McKinley. The sedimentation of a sphere through an elastic fluid Part 1. Steady motion. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 60 :225–257, 1995.
- [61] M.T. Arigo and G.H. McKinley. An experimental investigation of negative wakes behind spheres settling in a shear-thinning viscoelastic fluid. *Rheol. Acta*, 37 :307–327, 1998.
- [62] M.B. Bush. The stagnation flow behind a sphere. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 49 :103–122, 1993.
- [63] M.B. Bush. On the stagnation flow behind a sphere in a shear-thinning viscoelastic liquid. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 55 :229–247, 1994.
- [64] O.G. Harlen. The negative wake behind a sphere sedimenting through a viscoelastic fluid. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 108 :411–430, 2002.
- [65] H.Z. Li, X. Frank, D. Funfschilling, and Y. Mouline. Towards the understanding of bubble interactions and coalescence in non-Newtonian fluids : a cognitive approach. *Chem. Engineering Sci.*, 56 :6419–6425, 2001.
- [66] D. Funfschilling and H.Z. Li. Flow of non-Newtonian fluids around bubbles : PIV measurements and birefringence visualisation. *Chem. Engineering Sci.*, 56 :1137–1141, 2001.
- [67] X. Frank, H. Z. Li, D. Funfschilling, F. Burdin, and Y. Ma. Bubble motion in non-newtonian fluids and suspensions. *Canadian J. of Chem. Engineering*, 81 :483–490, 2003.
- [68] S. Chen and J.P. Rothstein. Flow of a wormlike micelle solution past a falling sphere. *J. of Non-Newtonian Fluid Mech.*, 116(2-3) :205–234, 2004.
- [69] A.N. Beris, J. A. Tsamopoulos, and R.C. Armonstrong. Creeping motion of a sphere through a Bingham plastic. *J. of Fluid Mech.*, 158 :219–244, 1985.
- [70] J. Blackery and E. Mitsoulis. Creeping motion of a sphere in tubes filled with a Bingham plastic material. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 70 :59–77, 1997.
- [71] M. Beaulne and E. Mitsoulis. Creeping motion of a sphere in tubes filled with Herschel-Bulkley fluids. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 72 :55–71, 1997.
- [72] A.W. Chow and G.G. Fuller. Response of Moderately Cconcentrated Xanthan Gum Solutions to Time-Dependent Flows Using Two-Color Flow Birefringence. *J. Rheol.*, 28(1) :23–43, 1984.
- [73] G. Schmidt, A.I. Nakatani, P.D. Butler, A. Karim, and C.C. Han. Shear Orientation of Viscoelastic Polymer-Clay Solutions Probed by Flow Birefringence and SANS. *Macromolecules*, 33(20) :7219–7222, 2000.

- [74] G. Schmidt, A.I. Nakatani, and C.C. Han. Rheology and flow-birefringence from viscoelastic polymer-clay solutions. *Rheol Acta*, 41 :45–54, 2002.
- [75] A.B.D. Brown, S.M. Clarke, P. Convert, and A.R. Rennie. Orientational order in concentrated dispersions of plate-like kaolinite particles under shear. *J. Rheol.*, 44(2) :221–233, 2000.
- [76] J.P. Decruppe and A. Ponton. Flow birefringence, stress optical rule and rheology of four micellar solutions with the same low shear viscosity. *Eur. Phys. J. E*, 10 :201–207, 2003.
- [77] J.P. Rothstein and G.H. McKinley. A comparison of the stress and birefringence growth of dilute, semi-dilute and concentrated polymer in uniaxial extensional flows. *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 108(275-290), 2002.
- [78] H.Z. Li, Y. Mouline, D. Funfschilling, P. Marchal, L. Choplin, and N. Midoux. Evidence for in-line bubble interactions in non-newtonian fluids. *Chem. Engineering Sci.*, 53(12) :2219–2230, 1998.
- [79] B. Gueslin, L. Talini, B. Herzhaft, Y. Peysson, and C. Allain. Flow induced by a sphere settling in an aging yield-stress fluid. *Phys. Fluids*, 18(103101), 2006.
- [80] A. Bejan. *Convection Heat Transfer*. John Wiley and Sons Inc., 2 edition, 1995.
- [81] B. Gueslin, L. Talini, B. Herzhaft, Y. Peysson, and C. Allain. Aggregation behavior of two spheres falling through an aging fluid. *Phys. Rev. E*, 74(042501), 2006.
- [82] L. Bergognoux, S. Ghicini, E. Guazzelli, and J. Hinch. Spreading fronts and fluctuations in sedimentation. *Phys. Fluids*, 15(7) :1875–1887, 2003.

Résumé

La sédimentation de particules non-browniennes dans une suspension de laponite a été étudiée expérimentalement. Un protocole de préparation spécifique a été mis en place, la caractérisation rhéologique du fluide a été réalisée : la laponite constitue un fluide thixotrope, à seuil, rhéofluidifiant et viscoélastique. La caractéristique principale est l'augmentation exponentielle de la viscosité du fluide avec le temps de vieillissement. La sédimentation de particules isolées a été étudiée sous différents aspects : vitesse de la particule, champs de vitesse autour de la particule, biréfringence induite par la sédimentation. La vitesse de la particule évolue en exponentielle décroissante avec le temps de vieillissement. Deux régimes d'écoulement suivant la contrainte exercée par la particule ont été repérés : un écoulement avec une traînée négative (remontée du fluide après le passage de la particule) ou avec une évolution spatiale quasi-similaire entre l'amont et l'aval. La biréfringence induite par la sédimentation de la particule relaxe très lentement après le passage de la particule. Le temps de relaxation correspondant augmente avec le temps de vieillissement du fluide. La sédimentation de deux particules a été observée dans deux cas : en présence et en absence d'une traînée négative. L'agrégation des particules peut être observée dans chaque cas. De plus, la sédimentation de suspensions a été entreprise : on observe une sédimentation sur une longueur finie conduisant à l'arrêt de la sédimentation contrairement au cas newtonien. La dynamique de cet arrêt est en exponentielle décroissante.

Mots-clés : Laponite, sédimentation, fluide thixotrope, fluide à seuil, traînée négative, biréfringence induite, suspensions.

Abstract

The settling of non-Brownian spheres in a laponite suspension has been studied experimentally. A specific preparation has been set up. The rheology of the fluid has been characterized : a suspension of laponite constitutes a thixotropic, yield stress, shear thinning, viscoelastic fluid. The main characteristic is that the viscosity increases exponentially with the aging time. The settling of single spheres has been studied under different aspects : the velocity of the sphere, the flow field around the sphere and the birefringence induced by the settling sphere. The velocity of the sphere slows down exponentially with aging time. Two flow field patterns have been observed : with a negative wake (an upward motion in the wake of the sphere) or with a near fore-and-aft symmetry. The settling-induced birefringence relaxes slowly in the wake of the sphere. The characteristic relaxation time increases with the aging time exponentially. The settling of a couple of spheres has been observed in two cases : with and without a negative wake. Spheres may cluster in each case. A first experiment of a settling suspension has been made (a single size of small spheres). A settling on finite length has been observed with a kinetic described with an exponential.

Keywords : laponite, sedimentation, thixotropy, yield stress fluid, negative wake, settling-induced birefringence, suspensions.