



**HAL**  
open science

# Rhéologie et microstructure des suspensions concentrées non browniennes

Frédéric Blanc

► **To cite this version:**

Frédéric Blanc. Rhéologie et microstructure des suspensions concentrées non browniennes. Matière Molle [cond-mat.soft]. Université Nice Sophia Antipolis, 2011. Français. NNT: . tel-00659207v1

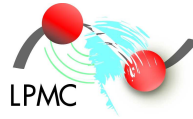
**HAL Id: tel-00659207**

**<https://theses.hal.science/tel-00659207v1>**

Submitted on 12 Jan 2012 (v1), last revised 12 Jan 2012 (v2)

**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**

Présentée à

**L'UNIVERSITÉ DE NICE - SOPHIA ANTIPOLIS**

École Doctorale : Sciences Fondamentales et Appliquées

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR EN SCIENCES**

dans la spécialité : **PHYSIQUE**

par

**Frédéric BLANC**

**Rhéologie et microstructure des  
suspensions concentrées  
non-browniennes**

Thèse dirigée par Elisabeth LEMAIRE et

co-dirigée par François PETERS

préparée au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée

soutenue le 1er décembre 2011

**Jury :**

*Rapporteurs :* Guillaume OVARLEZ - CNRS  
Olivier POULIQUEN - CNRS  
*Directeur :* Elisabeth LEMAIRE - CNRS  
*Co-directeur :* François PETERS - Université de Nice - Sophia Antipolis  
*Président :* Patrick SNABRE - CNRS  
*Examineur :* Jean-Pierre PROVOST - Université de Nice - Sophia Antipolis



« Le plus grand nombre considère, suivant le mot de Bacon, que la science et la puissance humaine se correspondent et vont au même but. Il admire surtout dans la science le merveilleux spectacle de ses applications si variées qui ont tant modifié les conditions d'existence des peuples civilisés : c'est un genre de valeur aisément appréciable. Il y a même un danger dans ces constatations trop faciles, car on n'a qu'une vue très incomplète si l'on ne se rend pas compte des rapports qui existent entre ces brillantes manifestations de l'activité humaine et la science théorique et désintéressée. Les idées théoriques ont été souvent le germe fécond d'où sont sortis d'importants progrès dans l'industrie, dans l'agriculture, dans la médecine. Les rêveurs scientifiques qui semblent perdus dans leurs spéculations sont à leur manière des hommes pratiques : l'application vient quelquefois par surcroît. La source tarirait bientôt si un esprit exclusivement utilitaire venait à dominer dans nos sociétés trop préoccupées de jouissances immédiates.»

PICARD Émile (1914). *La science moderne et son état actuel*. E. Flammarion.

« Il y a des bourre-pifs qui se perdent ! »

F. M. (2012)



Je tiens à remercier,

Ma génialissime directrice de thèse, Élisabeth, qui a su me faire confiance, stresser à ma place dans les moments difficiles, me stimuler aux moments opportuns et me supporter au quotidien. Je tiens de plus à la remercier tout particulièrement pour son expertise dans l'orientation de mes choix technologiques.

Mon extraordinaire co-directeur, François, avec qui ce travail a été mené de manière fusionnelle. Il a toujours répondu présent à mes innombrables sollicitations, même les plus inappropriées, et à toujours fait preuve d'une extrême patience. Je ne pouvais rêver meilleur encadrement. J'ai notamment apprécié son dévouement pour être aller présenter mes résultats dans cette chaleureuse cité de Cleveland.

Christine Boudard-Morteau, pour son incroyable efficacité (toujours avec le sourire) au milieu de la tourmente administrative qui a soufflée pendant ces trois ans. Sans elle ce travail n'aurait pas été possible.

Jean Pierre Provost, mon maître, qui m'a ouvert les yeux sur les sciences physiques.

André Audoly pour sa grande disponibilité et toute sa compétence pour la réalisation du dispositif expérimental dans une période difficile de sa vie. Mes pensées vont vers lui.

Gérard Monnom pour sa volonté en temps que directeur du laboratoire de mettre un terme à mon calvaire administratif. Je loue de plus sa gentillesse d'avoir accepté de manger avec moi presque tous les midis (ce qui ne doit pas toujours être de tout repos auditif).

Fabrice Mortessagne pour le soutien (et le calme) dont il a fait preuve à mon égard tout au long de mon supplice administratif. Après une période d'accalmie, je note cependant un retour dans sa volonté de distribuer des ...

Laurent Lobry pour m'avoir initié à la production d'électrons par moteur Steerling lors de nos discussions dans le patio. Entre ça et le transport de glaçons depuis Auron pour la réalisation de climatisations, mon cœur balance.

Talib, un compagnon de route avec qui j'ai passé de bons moments et à qui je souhaite toute la réussite qu'il mérite.

Guillaume, pour nous avoir supporté lors de nos réunions meetings dans le bureau et pour m'avoir appris à tracer des droites.

Mourad Benabdesellam, pour son soutien logistique de début de thèse.

Xavier Noblin, pour son soutien logistique de fin de thèse, et pour avoir remonté le moral de Guillaume après les meetings (et lorsqu'il n'arrivait pas à tracer ses droites).

Amélie Trichon pour la patience qu'elle a su mettre dans l'éprouvant tamisage des particules.

Arnaud Zenerino pour les images AFM de surfaces des particules.

Sébastien Tanzilli pour ses vannes à deux balles, sa grosse voix, la vuvuzella et ses convoiturages.

Marie-Gabrielle Médiçi, Olga Volkova, Alexandra Madeira et l'ensemble du laboratoire pour la bonne ambiance.

Mes collègues du lycée Apollinaire pour leur aide dans des moments de bourre : Daniel, Mika, Delphine, Jean-Pierre, David, Eric S-C, Eric D, Alain, Stéphane, Francine, Jean-François, Nicolas, Fabien, Laurence.

Catherine et Isabelle du lycée Apollinaire pour leur soutien, notamment ces derniers mois.

Mes partenaires de squash du mardi qui m'ont permis de me vider la tête régulièrement : Pierre-Max, Jean-Pierre, Alain, Pascal et Loÿs.

Tout mes amis de Nice, Toulon, Cluj Napoca et d'ailleurs.

Mes beaux-parents qui m'ont permis de me détendre en m'abreuvant de rhum le dimanche.

Et bien sur, le mouvement social contre les retraites de l'automne 2007 sans lequel ce travail de thèse n'aurait pas été possible.

Je chéris,

La femme de ma vie, Flo, qui m'a toujours soutenu et accompagné dans mes choix, nourrit ma confiance en moi, me permet de me surpasser. Je t'...

Mes enfants, Raphaël, qui tout comme son papa rêve d'être un chiantifique, et Dorian naît pendant la rédaction de ce manuscrit qui m'a offert des milliers de sourires en cadeau de thèse. Je vous aime tendrement.

Mes parents, qui m'ont supporté ces trente six dernières années et qui sont un socle inébranlable sur lequel je peux toujours compter. Merci d'être toujours là.

Je tiens à ne pas remercier,

Les innombrables autorisations de cumul qui n'avaient jamais la bonne année en entête, les petits chefs rendus à la mode depuis mai 2007, les lenteurs administratives rectorales, les réformes de l'enseignement supérieur, les audits de la RGPP.







# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Généralités</b>	<b>5</b>
1.1 Généralités . . . . .	5
1.1.1 Nombre de Péclet . . . . .	5
1.1.2 Tenseur des contraintes . . . . .	6
1.1.3 Viscosité . . . . .	6
1.2 Microstructure . . . . .	11
1.2.1 Résultats expérimentaux . . . . .	12
1.2.2 Simulations numériques . . . . .	17
1.3 Microstructure et rhéologie . . . . .	20
1.4 Régimes transitoires des suspensions concentrées . . . . .	22
<b>2 Rhéologie locale par PIV : dispositif expérimental</b>	<b>27</b>
2.1 Suspension concentrée isoindice et isodense . . . . .	27
2.1.1 Phase solide . . . . .	28
2.1.2 Marquage des particules . . . . .	28
2.1.3 Phase liquide . . . . .	29
2.1.4 Préparation des suspensions . . . . .	29
2.1.5 Adaptation de l'indice . . . . .	29
2.1.6 Stabilité chimique de la suspension . . . . .	30
2.1.7 Stabilité des propriétés physiques de la suspension . . . . .	30
2.2 Dispositif expérimental . . . . .	32
2.2.1 Cellule d'écoulement . . . . .	32
2.2.2 Dispositif optique . . . . .	33
2.2.3 Contrôle de la température . . . . .	36
2.3 Mesures locales . . . . .	36
2.3.1 Technique de PIV . . . . .	36
2.3.2 Résolutions spatiale et temporelle de l'expérience de PIV . . . . .	38
2.3.3 Profil de vitesse . . . . .	41
2.3.4 Taux de cisaillement . . . . .	43
2.3.5 Déformation . . . . .	43
2.3.6 Contrainte de cisaillement . . . . .	43
2.3.7 Viscosité . . . . .	44
2.3.8 Fraction volumique . . . . .	44

2.4	Validation du protocole sur un fluide newtonien . . . . .	46
2.4.1	Profil de vitesse . . . . .	46
2.4.2	Profil de viscosité . . . . .	46
<b>3</b>	<b>Réponse transitoire locale des suspensions concentrées</b>	<b>51</b>
3.1	Introduction . . . . .	51
3.2	Comportement rhéologique stationnaire des suspensions . . . . .	53
3.2.1	Conditions d'écoulement . . . . .	53
3.2.2	Mesure de la loi de comportement en entrefer étroit . . . . .	54
3.2.3	Caractérisation de l'influence du fond de la géométrie . . . . .	55
3.2.4	Influence de la rhéofluidification sur les profils de vitesse en entrefer large . . . . .	55
3.2.5	Dépendance de la viscosité avec la fraction volumique . . . . .	59
3.3	Réponse transitoire à grande déformation - Contrôle de la fraction volumique	61
3.3.1	Profil de vitesse . . . . .	62
3.3.2	Profil de viscosité et de concentration . . . . .	62
3.4	Réponse transitoire après inversion de cisaillement . . . . .	64
3.5	Discussion . . . . .	69
3.6	Conclusion . . . . .	73
<b>4</b>	<b>Mesure de la microstructure : dispositif expérimental</b>	<b>77</b>
4.1	Introduction . . . . .	77
4.2	Dispositif expérimental . . . . .	78
4.2.1	Fluide marqué . . . . .	78
4.2.2	Particules utilisées . . . . .	78
4.2.3	Géométrie d'écoulement . . . . .	79
4.2.4	Mesure de l'épaisseur de la nappe laser . . . . .	79
4.2.5	Réglage de la température . . . . .	82
4.2.6	Image type et hauteur de travail . . . . .	82
4.3	Procédure de détection des particules . . . . .	83
4.3.1	Principe général de la transformée de Hough circulaire . . . . .	83
4.3.2	Description de la procédure de détection . . . . .	85
4.3.3	Estimation des erreurs dans la détection . . . . .	87
4.4	Technique de PTV . . . . .	90
4.5	Construction de la fonction de distribution de paires . . . . .	91
4.5.1	Définitions . . . . .	91
4.5.2	Procédure numérique de construction de la fonction de distribution de paires . . . . .	91

4.5.3	Lien entre la PDF-2D et la PDF en volume . . . . .	93
4.5.4	Sélection des particules prises en compte dans le calcul . . . . .	93
4.5.5	Effet de la taille de l'échantillonnage radial . . . . .	95
4.5.6	Effets de bord et normalisation . . . . .	95
4.6	Conclusion . . . . .	97
<b>5</b>	<b>Mesures de la fonction de distribution de paires des suspensions non-</b>	
	<b>browniennes</b>	<b>99</b>
5.1	Introduction . . . . .	99
5.2	Mesure de l'asymétrie de la microstructure d'une suspension diluée induite par l'écoulement de sphères dures rugueuses . . . . .	100
5.2.1	Fonction de distribution de paires expérimentales . . . . .	101
5.2.2	Comparaison avec le modèle de <i>trajectoires de paires</i> . . . . .	103
5.2.3	Discussion . . . . .	106
5.3	Influence de la concentration sur l'asymétrie de la microstructure . . . . .	109
5.3.1	Résultats . . . . .	110
5.3.2	Étude des effets de bords sur la mesure des PDF . . . . .	111
5.3.3	Discussion . . . . .	118
5.4	Inversion de cisaillement . . . . .	129
5.4.1	Inversion de la microstructure . . . . .	129
5.4.2	Continuité des quantités rhéologiques locales au moment de l'inversion de cisaillement . . . . .	135
5.4.3	Discussion . . . . .	139
	<b>Conclusion</b>	<b>143</b>
<b>A</b>	<b>Correction du glissement par comparaison entre des transitoires en rhéo-</b>	
	<b>logie locale et macroscopique</b>	<b>147</b>
<b>B</b>	<b>Explication de la faible valeur de la fraction volumique d'empilement</b>	
	<b>maximum des suspensions de CA30 dans le Cargille</b>	<b>153</b>
<b>C</b>	<b>Procédure de contrôle des profils de fractions volumiques lors d'une</b>	
	<b>grande déformation</b>	<b>157</b>
<b>D</b>	<b>Particle Image Velocimetry in Concentrated Suspensions : Application to</b>	
	<b>Local Rheometry</b>	<b>159</b>
<b>E</b>	<b>Local transient rheological behavior</b>	
	<b>of concentrated suspensions</b>	<b>195</b>

<b>F</b>	<b>Experimental Signature of the Pair Trajectories of Rough Spheres in the Shear-Induced Microstructure in Noncolloidal Suspensions</b>	<b>243</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>249</b>

# Table des figures

1.1	Viscosité réduite en fonction de la contrainte de cisaillement adimensionnée $\tau_r \sim \eta_0 \dot{\gamma} a^3 / kT \sim Pe$ pour des suspensions de particules sphériques de tailles différentes (77 – 215 nm) dans les fluides indiqués en légende. $\Phi = 0.5$ . D’après [Papir & Krieger 1970]. . . . .	7
1.2	Viscosité réduite en fonction de $\Phi/\Phi^*$ pour des suspensions de sphères de tailles différentes (0.1–65 $\mu m$ ). La courbe en trait plein est la relation de Krieger et Dougherty (1959). D’après [Wildemuth & Williams 1984]. . . . .	8
1.3	Explication heuristique de la viscosité d’une suspension diluée. La ligne L coupe aléatoirement la suspension. La fraction de ligne DE est située dans le liquide suspendant de viscosité $\eta_0$ et la fraction de ligne EF est située dans une particule rigide. D’après [Guyon <i>et al.</i> 2001]. . . . .	9
1.4	Schéma illustrant la décomposition d’un cisaillement simple en un écoulement élongationnel et une rotation solide. . . . .	11
1.5	Trajectoires à $Re=0$ dans un écoulement de cisaillement simple, d’une seconde sphère par rapport à une première sphère de référence centrée sur le repère. Basée sur les résultats de Batchelor et Green (1972). D’après [Morris 2009]. . . . .	12
1.6	Fonction de distribution de paires d’une suspension de concentration 0.04. Le disque central représente la particule de référence. Seules les valeurs de $g > 1.30$ sont portées sur le graphe. $x_1$ : direction de la vitesse. $x_2$ : direction du gradient de vitesse. D’après [Husband & Gadala-Maria 1987]. . . . .	14
1.7	Fonctions de distribution de paires mesurées dans une suspension de fraction volumique 0.10. Mesures proches de la direction de la vitesse. D’après [Rampall <i>et al.</i> 1997]. . . . .	14
1.8	Schéma illustrant l’apparition d’une zone de déplétion dans le plan de cisaillement. a) Écoulement symétrique autour d’une sphère lisse. b) Asymétrie due aux rugosités de surface. Les lignes pleines représentent des trajectoires perturbées par la rugosité et les lignes brisées des trajectoires non perturbées. La zone grisée est la région déplétée en particules. . . . .	15
1.9	Mesures de la PDF d’une suspension isodense de sphères de polystyrène de diamètre 40 – 50 $\mu m$ ) de concentration 0.40. D’après [Parsi & Gadala-Maria 1987]. . . . .	16
1.10	PDF expérimentale (gauche) et numérique (droite) d’une suspension $\Phi = 0.319$ . $Pe = 1700$ . D’après [Gao <i>et al.</i> 2010]. . . . .	17

1.11	Fonctions de distribution de paires angulaires normalisées. $\theta = 0^\circ$ : direction de la vitesse moyenne de l'écoulement. Gauche : influence de $r_c$ pour $\Phi = 0.10$ . Intégration radiale : $2.0 < r/a < 2.1$ . Droite : influence de $\Phi$ pour $r_c = 10^{-4}$ . Intégration radiale : $2.0 < r/a < 2.01$ . Ligne continue : fonction théorique de Batchelor et Green (1972) pour la région en dehors des doublets permanents, zéro pour la région contenant les doublets. Résultats numériques d'après Drazer <i>et al.</i> (2002) et (2004). . . . .	19
1.12	Évolution de la fonction de distribution de paires au contact ( $2 < r/a < 2.0005$ ) en fonction de la fraction volumique. $Pe = 1000$ . Résultats en dynamique stokésienne d'après [Morris & Katyal 2002]. . . . .	20
1.13	Schéma illustrant qualitativement l'influence de la fraction volumique et de la portée des interactions répulsives entre particules sur l'évolution de la fonction de distribution de paire. (a) Influence de la portée des interactions $r_c$ pour $\Phi \ll \Phi^*$ . (b) Influence de $\Phi$ pour $r_c$ donnée. L'apparition d'un pic de probabilité dans la direction de la vitesse n'est pas représentée sur ce schéma. . . . .	21
1.14	$\Delta\eta$ normalisée par la quantité $\eta'_\infty \Phi^2 \int_2^{r^*} g(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ en fonction de la fraction volumique. D'après [Sierou & Brady 2002]. . . . .	22
1.15	a) Couple mesuré sur un viscosimètre de Couette après inversion du sens de cisaillement. b) Couple normalisé en fonction de la déformation. Suspension de fraction volumique 0.5 de sphères de polystyrène de diamètre $40 - 50 \mu m$ dans un mélange d'huile silicone. ( $\square$ ) $\dot{\gamma} = 0.15 s^{-1}$ . ( $\circ$ ) $\dot{\gamma} = 0.38 s^{-1}$ . ( $\nabla$ ) $\dot{\gamma} = 0.60 s^{-1}$ . ( $\triangle$ ) $\dot{\gamma} = 2.4 s^{-1}$ . D'après [Gadala-Maria & Acrivos 1980] . . . . .	23
1.16	Couple et force normale normalisés par leur valeur au plateau en fonction de la déformation moyenne. Mesures réalisées dans un anneau plan-plan sur une suspension de 40% de sphères de diamètres $38 - 75 \mu m$ dans du polyéthylène glycol. La ligne verticale correspond à la déformation pour laquelle le couple est minimal. D'après [Kolli <i>et al.</i> 2002]. . . . .	24
1.17	Gauche : contrainte de cisaillement en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Droite : première différence de contrainte normale après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Résultats numériques pour une monocouche de particules. $\bar{\Phi}$ : fraction surfacique. D'après [Bricker & Butler 2007]. . . . .	25
1.18	Fonction de distribution radiale ( $2.000 < r/a < 2.001$ ) d'une suspension de fraction surfacique 0.60 pour différentes déformations après une inversion de cisaillement. $\gamma_{total} = 0$ définit le moment de l'inversion. Quadrant de compression : $0^\circ < \theta < 90^\circ$ . $\gamma = 1$ correspond environ à la déformation pour laquelle la viscosité est minimale. D'après [Bricker & Butler 2007]. . . . .	26

2.1	Gauche : Particule CA30 vierge. Droite : Particule CA30 vierge (détail) . . .	28
2.2	Transmittance d'une suspension de CA30 dans le Cargille n=1.49 de fraction volumique $\Phi = 50\%$ . Épaisseur de l'échantillon 10mm. $\lambda = 635nm$ . . . . .	30
2.3	Évolution des modules élastique $G'$ , de perte $G''$ et de l'angle de perte $\delta$ d'une suspension de fraction volumique $\Phi=0.5$ en fonction de l'amplitude de déformation du rotor (la fréquence est fixée à 1 Hz). Abscisse : amplitude de déformation. Les deux mesures sont réalisées à 45 jours d'intervalle. symboles pleins : mesure plus ancienne - symboles ouverts : mesure plus récente . . . .	31
2.4	Particule CA30 immergée pendant plus d'un an dans le fluide suspendant Cargille. . . . .	31
2.5	Haut : plan de la cellule d'écoulement. Bas : photographie de la géométrie disposée sur le plan de référence du rhéomètre entre les quatre mords de maintien. On aperçoit la bulle piégée sous le rotor et le laser au fond. . . . .	34
2.6	Haut : photographie du dispositif expérimental. Bas : schéma. L'échelle n'est pas respectée. La légende est identique sur les deux figures. . . . .	35
2.7	Image type (contraste inversé) obtenue 14 mm au dessus du fond du cylindre dans une suspension à $\Phi = 0.4$ . Les deux bords des cylindres sont ajustés par deux cercles. Rectangle : fenêtre d'interrogation. . . . .	36
2.8	Définition des paramètres dans DPIVsoft (d'après [DPIVsoft User Guide]). $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ est le déplacement moyen dans une fenêtre de corrélation. . . .	39
2.9	Fonction de corrélation type obtenue par DPIVsoft sur une image de suspension. Le décalage est mesuré par rapport au centre de la figure. . . . .	39
2.10	<b>a)</b> Déplacement des particules dans un gradient de vitesse. <b>b)</b> Fonction de corrélation associée à chacune des particules. <b>c)</b> Fonction de corrélation moyenne sur l'ensemble d'une fenêtre d'interrogation. Les corrélations interparticulaires faisant apparaître des pics secondaires n'ont pas été représentées. (D'après [Meunier & Leweke 2003]) . . . . .	40
2.11	Nomenclature des quantités nécessaires au calcul d'un profil de vitesse. $i, j$ : coordonnées d'un noeud. $r_{ij}, \theta_{ij}$ : coordonnées polaires. $r_n$ : position radiale d'une couronne d'intégration d'épaisseur $\Delta R$ . . . . .	42
2.12	Effet de l'échantillonnage temporel sur le rapport entre les déplacements radiaux et orthoradiaux dans l'écoulement de Couette cylindrique. . . . .	42
2.13	Couple total mesuré en fonction de la vitesse de rotation du rotor pour différentes hauteurs de fluide suspendant Cargille. La linéarité traduit le caractère newtonien du fluide suspendant. . . . .	45
2.14	Rapport du couple total exercé par le rotor et de sa vitesse de rotation en fonction de la hauteur de fluide suspendant Cargille cisailé. . . . .	45



2.15	Profils de vitesse orthoradiale adimensionnée dans un fluide newtonien. Chaque profil résulte de la moyenne de 80 profils instantanés ( $\sim 10$ s). Les différents profils sont déterminés à des hauteurs différentes par rapport au fond de la cellule de Couette. $\Omega \approx 0.4$ rpm. Symboles : données expérimentales. Lignes : données numériques (COMSOL). Ligne brisée : profil théorique newtonien. . . . .	47
2.16	Profil de vitesse orthoradiale adimensionnée dans le fluide suspendant newtonien. Hauteur de liquide $L=26.4$ mm. Altitude de mesure $z=14$ mm. Comparaison avec un ajustement numérique et un profil théorique newtonien. . .	48
2.17	Taux de cisaillement déduit du fit sur le profil de vitesse. Comparaison avec un profil théorique newtonien. . . . .	49
2.18	Profil de viscosité moyen dans le fluide suspendant newtonien. Les lignes brisées représentent l'écart-type sur 80 mesures. L'erreur est de l'ordre de 1%. . . . .	49
3.1	Courbe d'écoulement d'une suspension $\Phi = 0.47$ obtenue en entrefer étroit. $\blacklozenge$ : glissement non corrigé. $\bullet$ : glissement corrigé. Lignes : fit en loi de puissance. . . . .	54
3.2	Profils de vitesse normalisée dans une suspension $\Phi = 0.47$ . $L = 50$ mm. $\Omega = 0.5$ rpm. Les valeurs en légende indiquent les hauteurs de mesures par rapport au fond. Pour discussion sur le glissement apparent cf. §3.3.1. . . . .	56
3.3	Évolution temporelle de la vitesse en différents points du gap pour une suspension $\Phi = 0.47$ . $t=0$ : début de l'application du couple. Hauteur de suspension : 45 mm. vitesse de rotation du rotor au plateau : $\Omega = 4.4 \cdot 10^{-2}$ rad.s <sup>-1</sup> . Couple imposé : $\Gamma_{total} = 500$ $\mu$ Nm . . . . .	57
3.4	Profils de vitesse normalisée obtenus pour quatre couples. Les profils sont obtenus en moyennant 100 profils instantanés (environ 12 s) sur le plateau. L'écart relatif entre les profils est inférieur à 4%. $\Phi = 0.47$ . . . . .	58
3.5	Profils de vitesse normalisée expérimental, newtonien théorique et déduit de la relation (3.7). Ce dernier profil est calculé avec $m=0.9$ . L'écart relatif entre le profil expérimental et déduit de (3.7) est inférieur à 4%. $\Phi = 0.47$ . . . . .	58
3.6	Le profil de viscosité déduit des mesures de PIV comparé aux profils calculés à partir des lois de comportement avec glissement corrigé et non corrigé, ainsi que des relations (2.22) et (3.7). L'écart entre le profil PIV et calculé est de l'ordre de 5%. Lignes brisées : écart-type calculé sur 100 profils. $\Phi = 0.47$ . . .	59
3.7	Viscosité réduite en fonction de la fraction volumique. Les mesures macroscopiques sont réalisées en large gap à un taux de cisaillement moyen de $0.02$ s <sup>-1</sup> . Les mesures locales sont les valeurs moyennes aux plateaux des régimes transitoires de viscosités présentés sur la fig. 3.15. . . . .	60

3.8	Évolution du profil de vitesse normalisée sur des déformations importantes. $\Phi = 0.444$ . Vitesse angulaire imposée $\Omega = 1 \text{ rpm}$ . $R_e = 24 \text{ mm}$ . $R_i = 14 \text{ mm}$ . Sauf pour les deux premiers, l'écart entre chacun des profils est de 100 révolutions. Encart : vitesse en différentes positions dans le gap. . . . .	61
3.9	Évolution du profil de viscosité réduite sur une longue déformation. $\Phi_m = 0.444$ . Encerclé : zone de faible variation de la viscosité. . . . .	63
3.10	Évolution du profil de concentration sur une grande déformation. $\Phi_m = 0.444$ . Les concentrations sont calculées à partir des profils de $\eta_r$ et de la relation (3.11). . . . .	63
3.11	Haut à gauche : Inversion du sens du couple imposé à la suspension. Bas à gauche : Régime transitoire de la vitesse angulaire du rotor associé à l'inversion de cisaillement. Haut à droite : Couple imposé dans le même sens après une pause. Bas à droite : Absence de régime transitoire. $\Phi_{moyen} = 0.444$ . . .	64
3.12	Profils de vitesse normalisée transitoire après une inversion de cisaillement à différents instants (à $t=0$ le couple passe de $+250 \mu Nm$ à $-250 \mu Nm$ ). Ligne brisée : Profil newtonien. $\Phi_{moyen} = 0.444$ . . . . .	65
3.13	Réponse transitoire locale de la viscosité réduite après inversion de contrainte en $r_c/R_e = 0.77$ . $\Phi_{moyen} = 0.444$ . $ \Gamma_{total}  = 250 \mu Nm$ . . . . .	66
3.14	Réponse transitoire de la viscosité réduite après une inversion de contrainte. L'expérience est réalisée pour différentes contraintes calculées au rotor ( $\sigma = 0.85, 2.12, 4.25$ et $5.95 Pa$ ). $\Phi_{moyen} = 0.47$ . $r_c/R_e = 0.77$ . Encart : Zoom autour du minimum. . . . .	67
3.15	Réponse transitoire de la viscosité réduite pour différentes fractions volumiques après une inversion de contrainte. $\langle \dot{\gamma} \rangle_{plateau} \approx 0.1 \text{ s}^{-1}$ . Le couple imposé est choisi pour que la vitesse angulaire du rotor soit toujours d'environ 0.5 rpm au plateau quelle que soit la fraction volumique. $r_c/R_e = 0.77$ . . . . .	67
3.16	Déformation caractéristique déduite des transitoires de viscosité en fonction de la fraction volumique. Une extrapolation de la droite de régression donne $\Phi(\gamma_c = 0) \approx 0.566$ . . . . .	68
3.17	Loi d'échelle pour les mesures locales en $r_c/R_e = 0.77$ de la viscosité de plateau et de la viscosité minimum. Pour chacune des mesures, le couple imposé est choisi de sorte que la vitesse angulaire du rotor au plateau soit de l'ordre de 0.5 rpm. . . . .	69
3.18	Couple et force normale normalisés par leur valeur au plateau en fonction de la déformation moyenne. Mesures réalisées dans un anneau plan-plan sur une suspension de 40% de sphères de diamètres $38 - 75 \mu m$ dans du polyéthylène glycol. La ligne verticale correspond à la déformation pour laquelle le couple est minimal. D'après [Kolli <i>et al.</i> 2002]. . . . .	73

3.19	Inverse de la viscosité minimum en fonction de $\Phi/\Phi^*$ . (●) Mesures en PIV. (■) $\frac{\eta_0}{\eta_\infty}$ calculée en dynamique Stokésienne [Sierou & Brady 2001]. (☆) $\frac{\eta_0}{\eta'_\infty}$ . Données expérimentales. $a = 76 \text{ nm}$ [Van der Werff & De Kruif 1989]. . . . .	74
3.20	Viscosité structurale normalisée par la viscosité de plateau en fonction de $\Phi/\Phi^*$ . (■) Mesures en PIV – $\Phi^* = 0.534$ – $a = 15.5 \mu\text{m}$ . (◆) Mesures en PTV (cf. Chap.5) – $\Phi^* = 0.58$ – $a = 85 \mu\text{m}$ . (●) Mesures en Couette cylindrique entrefer étroit [Dbouk 2011]– $\Phi^* = 0.58$ – $a = 70 \mu\text{m}$ . (☆) Mesures en dynamique stokésienne [Sierou & Brady 2002] – Sans friction – $\Phi^* = 0.64$ . (★) Mesure en dynamique stokésienne [Sierou & Brady 2002] – Avec friction. Régression linéaire sur les données en PIV : $3.59 \times (\Phi - 0.25)$ . . . . .	74
3.21	Second coefficient de contrainte normale $\alpha_2$ en fonction de $\Phi$ . (■) : $a = 35 \pm 5 \mu\text{m}$ . (▲) : $a = 70 \pm 5 \mu\text{m}$ . D'après Couturier <i>et al.</i> (2011). Combinaison des coefficients de contrainte normale $-(\alpha_2 + \alpha_1/2)$ en fonction de $\Phi$ . (○) : $a = 70 \pm 5 \mu\text{m}$ . D'après Boyer <i>et al.</i> (2011). Ligne : fit linéaire de Boyer <i>et al.</i> (2011) : $1.4 \times (\Phi - \Phi_c)$ . $\Phi_c \approx 0.22$ . . . . .	75
4.1	Distribution en volume en fonction du diamètre d'un échantillon d'un millier de particule BS510 tamisées. Diamètre moyen : $\langle 2a \rangle \approx 170 \mu\text{m}$ . Polydispersité : 7.5%. . . . .	79
4.2	Image illustrant une mesure de rugosité de surface par AFM. La rugosité type est d'environ 20 nm avec des pics isolés autour de 200 nm. Champ : $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ . . . . .	80
4.3	Épaisseur de la nappe laser et profondeur de champ en fonction de la distance de projection définie comme la distance entre la sortie de la lentille et la zone d'observation. Pour une profondeur de champ de 5mm (largeur du gap) la distance de projection est choisie à 7cm. Données constructeur dans l'air. . . . .	80
4.4	Principe de la mesure de l'épaisseur du laser. La partie grisée de $-\infty$ à $z_m$ sous le profil d'épaisseur de la nappe $I(z)$ contribue à l'intensité $\mathfrak{I}(x)$ mesurée en un point d'observation de l'image . L'origine est définie au centre de la nappe. Angle du biseau : $\alpha = 60^\circ$ . . . . .	81
4.5	Photographie type enregistrée pour la mesure de l'épaisseur de la nappe laser. La variation d'intensité pertinente à lieu dans le rectangle. Axe x défini sur la fig. 4.4. . . . .	82
4.6	Mesure de l'épaisseur $e$ de la nappe laser en fonction de la distance $d$ définie par rapport au cylindre externe. $\langle e \rangle \approx 30 \mu\text{m}$ . Fit : Profil du faisceau de la forme $e = w \sqrt{1 + \left(\frac{d - d_0}{b}\right)^2}$ . . . . .	83
4.7	Image type obtenue dans une suspension $\Phi = 0.56$ . Altitude par rapport au fond de la géométrie : $z = 10 \text{ mm} \approx 120a$ . largeur du gap : $e = 5 \text{ mm} \approx 60a$ . . . . .	84

4.8	Contenu d'un accumulateur construit pour $R=5$ . a) Carrés noirs : pixel d'intensité 1 inscrit dans un cercle $\mathcal{C}$ de rayon 5 px. La direction du gradient n'est pas prise en compte. b) La direction du gradient est prise en compte. D'après [Kimme <i>et al.</i> 1975]. . . . .	84
4.9	Haut : Image en fausse couleur de particules d'une suspension $\Phi = 0.55$ . Les zones en rouge correspondent au fluide entre les particules et les zones en bleu aux particules. Croix rouges : centres détectés. Cercles bleus foncés : cercles détectés. Flèches : exemples de particules non détectées. Bas : image de l'accumulateur. Croix rouges : centres détectés. Flèches : exemples de fausses détections filtrées par l'étape (3) de la procédure. Axes en pixels. . .	86
4.10	Variation spatiale d'intensité sur une ligne, d'une image de suspension de fraction volumique $\Phi = 0.10$ . $I_0$ (bleu) : image non traitée. $I_b$ (vert) : image filtrée par un filtre Gaussien passe-bas de taille caractéristique 50 px. $I_f = \frac{I_0}{k \times I_b}$ (rouge) : image normalisée. . . . .	87
4.11	L'intersection d'un plan de coupe (ligne brisée) et d'une suspension de sphères de même rayon $R$ , est formée par un ensemble de cercles de rayon $r \leq R$ . Si la suspension est isotrope, la distance $z$ entre le plan et le centre d'une sphère est uniformément répartie entre 0 et $R$ . . . . .	88
4.12	Distribution de probabilité des rayons. (●) : Données issus du traitement de $2.7 \times 10^6$ rayons détectés sur 2420 images d'une suspension de fraction volumique 0.55. Chaque point correspond à la probabilité de trouver un rayon discret $r_k$ dans une image. (Ligne) : Distribution théorique monodisperse : $p(r) = \frac{r}{R\sqrt{R^2 - r^2}}$ avec $R = 13.2 \text{ px}$ . . . . .	89
4.13	a) La position relative d'une particule (2) par rapport à (1) est définie par rapport à la vitesse en (1) de l'écoulement moyen. $\rho$ et $\theta$ sont les paramètres intervenant dans la fonction de distribution de paire. b) Pour un rayon apparent $r_k$ , le centre de la particule de rayon $a$ est décalé de $\Delta z$ par rapport au centre de la nappe laser. c) Les centres des cercles de coupe de deux sphères rigides s'approchent à moins de $2a$ . . . . .	92
4.14	Définition des paramètres de la relation entre la PDF-2D mesurée et la PDF-3D. $z_1$ et $z_2$ sont les distances entre les centres des sphères et la nappe laser. Seules les sphères dont les centres sont compris entre $-\Delta z$ et $+\Delta z$ sont prises en compte dans le calcul de la PDF-2D. . . . .	93
4.15	Fonctions de distribution de paires 2D calculées pour différentes gammes de rayons sélectionnés dans le champ de l'image. Les valeurs indiquées en légende représentent la limite inférieure de la gamme. La limite supérieure est fixée à 13 px. Fraction volumique de la suspension étudiée : $\Phi = 0.10$ . . . . .	95

4.16	Influence de la valeur de l'échantillonnage radiale sur la mesure de l'amplitude du pic de probabilité. Légende : valeur de $\Delta\rho$ . . . . .	96
4.17	Illustration de l'effet de taille finie d'une image (abcd) sur le calcul de la PDF. . . . .	96
4.18	La zone A correspond à la zone de sélection des particules tests (1). En pointillés, zone d'exclusion proche des cylindres (3a). Les limites de la zone A sont situées à $k.a$ des bords. $\Phi = 0.10$ . . . . .	97
4.19	Influence de la zone d'exclusion des particules tests (1) sur la PDF d'une suspension $\Phi = 0.10$ . Les valeurs en légende représentent la distance $k.a$ définie sur la fig. 4.18. . . . .	98
5.1	Schéma illustrant l'apparition d'une zone de déplétion dans le plan de cisaillement. a) Ecoulement symétrique autour d'une sphère lisse. b) Asymétrie due aux rugosités de surface. Les lignes pleines représentent des trajectoires perturbées par la rugosité et les lignes brisées des trajectoires non perturbées. La zone grisée est la région déplétée en particules. . . . .	102
5.2	Fonction de distribution de paires dans le plan $(\mathbf{v}, \nabla v)$ . $\Phi = 0.05$ . Les quadrants de compression sont définis par $xy < 0$ . Haut : zoom de la région centrale et de la <i>queue</i> de concentration. . . . .	104
5.3	PDF intégrée sur l'intervalle $\rho \in [1.97a, 2.04a]$ . L'amplitude de cet intervalle correspond à un échantillonnage radial $\Delta\rho = 1px$ . $\theta = 0^\circ$ est la direction de la vitesse. Le quadrant compressif est $\theta \in [90^\circ, 180^\circ]$ . Bas : Zoom de la zone déplétée. . . . .	105
5.4	Trajectoires depuis le point $x/a = -10$ , $y/a = 0.5$ , $z/a = 0$ pour différentes valeurs de rugosité $\epsilon a$ . . . . .	106
5.5	PDF calculée à partir des trajectoires de particules. La rugosité est $\epsilon = 3.10^{-3}$ . Ligne noire : trajectoire limite dans le plan de cisaillement pour laquelle le contact a lieu. . . . .	107
5.6	Données issues des PDF expérimentale (symboles) et numérique (lignes). (a) Moyenne radiale de $g(\rho, \theta)$ en fonction de $\theta$ pour différents domaines d'intégration de $\rho$ . (b) Moyenne angulaire de $g(\rho, \theta)$ en fonction de $\rho/a$ pour différents domaines d'intégration de $\theta$ . . . . .	108
5.7	PDF mesurées en fonction de la fraction volumique. $xy < 0$ définit la zone de compression. $\Phi \in [0.10, 0.35]$ . . . . .	112
5.8	PDF mesurées en fonction de la fraction volumique. $xy < 0$ définit la zone de compression. $\Phi \in [0.40, 0.56]$ . . . . .	113

5.9	Fonction de distribution de paires en fonction de $\theta$ (en $^\circ$ ) pour $\Phi \in [0.05, 0.20]$ . $g(\theta)$ est la moyenne radiale de $g(\rho, \theta)$ pour $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Zone de couleur sable : quadrant de compression. Zone de couleur bleue : quadrant de dilatation. $\theta = 0^\circ$ : direction de la vitesse. . . . .	114
5.10	Fonction de distribution de paires en fonction de $\theta$ (en $^\circ$ ) pour $\Phi \in [0.25, 0.56]$ . $g(\theta)$ est la moyenne radiale de $g(\rho, \theta)$ pour $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Les lignes pointillées sont des indications pour suivre l'évolution de l'angle de déplétion et du pic de sur-intensité proche de la direction de la vitesse. Zone de couleur sable : quadrant de compression. Zone de couleur bleue : quadrant de dilatation. $\theta = 0^\circ$ : direction de la vitesse. . . . .	115
5.11	Angle de déplétion $\theta^*$ en fonction de $\Phi$ . $\theta^*$ est mesuré en interpolant une parabole sur les différentes fonction $g(\theta)$ dans une zone centrée autour du minimum. . . . .	116
5.12	Définition des paramètres de tailles et positions des zones de sélection A et B des particules nécessaires aux calculs des PDF. Zone A : zone de sélection des particules 1. Zone B : zone de sélection des particules 2. $r_c$ : position centrale de la zone A. . . . .	116
5.13	Influence de la position de la zone A de sélection des particules de références 1 sur le calcul des PDF. $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B : $\kappa = 1$ , $\chi = \chi' = 0$ , $\xi = 1$ , $r_c = R_i + na$ avec $n \in [1, 2, 3, 4, 5, 10]$ . Largeur de l'entrefer : $\approx 58.6a$ . . . . .	119
5.14	Influence de la position de la zone A de sélection des particules références 1 sur le calcul des PDF. $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B : $\kappa = 1$ , $\chi = \chi' = 0$ , $\xi = 1$ , $r_c = R_i + na$ avec $n \in [20, 30, 40, 50, 54, 55]$ . Largeur de l'entrefer : $\approx 58.6a$ . . . . .	120
5.15	Influence de la position de la zone A de sélection des particules références 1 sur le calcul des PDF. $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B : $\kappa = 1$ , $\chi = \chi' = 0$ , $\xi = 1$ , $r_c = R_i + na$ avec $n \in [56, 57, 58]$ . Largeur de l'entrefer : $\approx 58.6a$ . . . . .	121
5.16	PDF angulaire. Moyenne radiale sur le domaine $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . $\Phi = 0.53$ . (■) : Zone A centrée en $r_c = R_i + 2a$ . (●) : Zone A centrée en $r_c = R_i + 56a$ . . .	122
5.17	Nombre de particules par unité de surface en une position dans l'entrefer normalisé par le nombre de particules moyen par unité de surface, en fonction de la position dans l'entrefer et de la fraction volumique. $r/a = 0$ correspond à la position du cylindre interne et $r/a \approx 58.6$ à celle du cylindre externe. . .	122

5.18	Influence de la taille de la zone de sélection des particules de références 1 sur une fonction de distribution de paires angulaire. $\Phi = 0.53$ . $g(\theta)$ est la moyenne radiale de $g(\rho, \theta)$ pour $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Le paramètre $\kappa$ est défini sur la fig. 5.12. . . . .	123
5.19	Fonctions de distribution de paires angulaires normalisées. Gauche : intégration radiale : $2.0 < \rho/a < 2.1$ . $\Phi = 0.10$ . Droite : $r_c = 10^{-4}$ . Intégration radiale : $2.0 < \rho/a < 2.01$ . Ligne continue : fonction théorique de Batchelor et Green (1972) pour la région en dehors des doublets permanents, zéro pour la région contenant les doublets. Résultats numériques d'après Drazer <i>et al.</i> (2002) et (2004). . . . .	124
5.20	Évolution de la fonction de distribution de paires au contact ( $2 < \rho/a < 2.0005$ ) en fonction de la fraction volumique. $Pe = 1000$ . Résultats en dynamique stokésienne d'après Morris et Katyal (2002). . . . .	125
5.21	Profils de concentration pour différentes fractions volumiques : 0.20 (continue), 0.30 (brisée), 0.40 (point/brisée et pointillés). Largeur de l'entrefer : $20a$ . . . . .	126
5.22	Fonction de distribution de paires d'une suspension de fraction volumique 0.40. Paramètres zone 1 (fig. 5.12) : $r_c = 5a$ et $\kappa = 0.5$ (gauche), $r_c = 10a$ et $\kappa = 2$ (droite). Les contours lumineux représentent les fortes probabilités. Résultats numériques d'après Yéo et Maxey (2010). . . . .	127
5.23	Gauche : fonction de distribution de paires angulaire calculée au centre de l'entrefer. $\Phi = 0.40$ . Largeur d'entrefer : $20a$ . Quadrant de compression : $\pi/2 < \theta < \pi$ . Résultats numériques d'après Yeo et Maxey (2010). Droite : comparaison entre $g(2 < \rho/a < 2.1)/3$ ( $\Phi = 0.40$ , entrefer : $20a$ ) [Yeo et Maxey (2010)] et $g(1.93 < \rho/a < 2.07)$ ( $\Phi = 0.53$ , entrefer : $\sim 60a$ ). . . . .	127
5.24	Coefficient de diffusion $\widehat{D}_{yy}$ en fonction de $\Phi$ . Résultats numériques et expérimentaux. D'après Sierou et Brady (2004). . . . .	128
5.25	Réponse transitoire de la viscosité réduite locale ( $r/R_e = 0.88$ ) après une inversion de contrainte de cisaillement ( $\gamma < 0 : M = +50 \mu Nm$ , $\gamma > 0 : M = -50 \mu Nm$ ). $\gamma = 0$ : instant de l'inversion. $\Phi = 0.35$ . . . . .	130
5.26	Régimes transitoires de la viscosité relative en fonction de la déformation et de $\Phi$ . Mesures en PTV après une inversion de cisaillement. . . . .	131
5.27	Viscosité structurale normalisée en fonction de la fraction volumique. . . . .	131
5.28	Fonctions de distribution de paires calculées sur les plateaux aller et retour après une inversion de cisaillement. $\gamma < 0 : M = +50 \mu Nm$ , $\gamma > 0 : M = -50 \mu Nm$ . $\Phi = 0.35$ . $\Delta z/a = 0.8$ . Ligne pointillée rouge : axe de compression. Ligne pointillée noire : axe de dilatation. . . . .	132

5.29	Fonctions de distribution de paires angulaires intégrée entre $\rho/a \approx 1.8$ et $\rho/a \approx 2.1$ . La PDF au minimum de viscosité est une moyenne de la PDF instantanée entre $\gamma_{moyen} \approx 0.5$ et $\gamma_{moyen} \approx 1.3$ (fig. 5.25). . . . .	132
5.30	Fonction de distribution de paires autour du minimum de viscosité. Moyenne calculée entre $\gamma_{moyen} \approx 0.5$ et $\gamma_{moyen} \approx 1.3$ (fig. 5.25). $\phi = 0.35$ . Quadrant de dilatation $-90^\circ < \theta < 0^\circ$ . Quadrant de compression $0^\circ < \theta < +90^\circ$ . Cette PDF n'est pas isotrope mais symétrique par rapport au gradient de vitesse. . . . .	133
5.31	Fonctions de distribution de paires calculées aux plateaux des deux sens de cisaillement pour différentes fraction volumiques. $\dot{\gamma} > 0$ – quadrant de compression : $[-\pi/2, 0]$ ; $\dot{\gamma} < 0$ – quadrant de compression : $[0, \pi/2]$ . . . . .	134
5.32	Taux de cisaillement moyen en fonction de la déformation moyenne après inversion de la contrainte de cisaillement pour différentes fractions volumiques. $\gamma = 0$ : instant de l'inversion. . . . .	136
5.33	Taux de cisaillement moyen en fonction de la déformation moyenne après inversion de la contrainte de cisaillement pour différentes fractions volumiques. $\gamma = 0$ : instant de l'inversion. Ordonnées : échelle log. . . . .	137
5.34	Fonction de distribution radiale au contact entre particules calculée au centre de l'entrefer en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement. $\gamma_{total} = 0$ définit le moment de l'inversion. Quadrant de compression : $0^\circ < \theta < 90^\circ$ . $\gamma = 1$ correspond environ à la déformation pour laquelle la viscosité est minimum. $\Phi = 0.60$ . D'après Bricker et Butler (2007). . . . .	140
5.35	Gauche : contrainte de cisaillement en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Largeur de l'entrefer : $30a$ . Droite : première différence de contrainte normale après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Largeur de l'entrefer : $30a$ . Résultats numériques d'une monocouche de particules d'après Bricker et Butler (2007). . . . .	141
A.1	a) Glissement aux parois. Les vitesses de glissement aux parois $v_i$ et $v_e$ , induisent un taux de cisaillement apparent (ligne brisée) plus grand que le taux de cisaillement réel (ligne pleine). b) $h_i$ et $h_e$ sont les longueurs de glissement non prises en compte dans le modèle de Jana <i>et al.</i> . Le gap effectif $e_{eff}$ est plus petit que le gap réel. . . . .	148
A.2	Réponse de la viscosité d'une suspension $\Phi = 0.47$ à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large : $\sigma = 4.25 Pa$ ( $\nabla$ ) - $\sigma = 5.95 Pa$ ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit : $\sigma = 4.25 Pa$ (ligne pleine) - $\sigma = 5.95 Pa$ (ligne brisée). . . . .	148



A.3	Réponse de la viscosité d'une suspension $\Phi = 0.47$ à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large : $\sigma = 4.25 Pa$ ( $\nabla$ ) - $\sigma = 5.95 Pa$ ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit corrigées en glissement : $\sigma = 4.25 Pa$ (ligne pleine) - $\sigma = 5.95 Pa$ (ligne brisée). . . . .	151
A.4	Réponse de la viscosité d'une suspension $\Phi = 0.47$ à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large : $\sigma = 4.25 Pa$ ( $\nabla$ ) - $\sigma = 5.95 Pa$ ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit corrigées en glissement : $\sigma = 4.25 Pa$ (ligne pleine) - $\sigma = 5.95 Pa$ (ligne brisée). La correction est effectuée en utilisant la viscosité de plateau $\eta_r(\gamma \rightarrow \infty)$ . . . . .	151
B.1	Transitoire de recouvrance après annulation du couple. $\Phi = 0.444$ . . . . .	154
B.2	Étude de la réponse élastique d'une suspension. a) Créneaux de couple imposé séparés par des périodes de repos de durées croissantes. b) Vitesse angulaire du rotor. L'amplitude de la survitesse croît avec la durée de la pause. $\Phi = 0.444$ .	155
C.1	Évolution de la moyenne de la fraction volumique calculée à partir des profils expérimentaux. Ligne brisée : moyenne temporelle de $\bar{\Phi}(t)$ . $\Phi_{moyen} = 0.444$ . .	158

# Liste des tableaux

4.1	Détails des résultats de $g(\rho)$ présenté sur la fig. 4.15. Les quantités étoilées font référence aux pics des différentes distributions de paires. . . . .	94
4.2	Détails des résultats de $g(\rho)$ présenté sur la fig. 4.19 . . . . .	97
5.1	Nomenclature des différents protocoles de mesures de PDF. Les suspensions de différentes concentrations sont cisillées à une vitesse imposée du rotor $\Omega$ . $N_{image}$ correspond au nombre d'images prises en compte dans le calcul. $\Delta z/a$ dépend de la gamme de rayons sélectionnés dans l'image. $f$ est la fréquence des flashes d'enregistrements. . . . .	110
5.2	Détails des protocoles expérimentaux permettant les mesures de taux de cisaillement locaux au cours des régimes transitoires. $+ M $ est le couple imposé au rotor avant l'inversion $- M $ . Chacun des signaux présentés sur les fig. 5.32 et 5.33 est moyenné entre $r_{min}/R_e - r_{max}/R_e$ . $\Delta\gamma$ est l'écart quadratique moyen calculé au plateau de chacune des courbes présentées sur les fig. 5.32 et 5.33 divisé par la fréquence d'échantillonnage $f = 8 Hz$ des flashes laser. $ \dot{\gamma}_{plateau} /f$ indique la déformation caractéristique entre deux points de mesures au plateau. . . . .	138



# Introduction

Les suspensions de particules solides dans des matrices fluides sont des systèmes qui apparaissent dans des domaines aussi différents que la biologie (sang), la géologie (boue, lave) ou l'industrie (ciment, peinture). La multitude de paramètres physiques et chimiques (taille et forme des particules, polydispersité, propriétés rhéologiques du fluide, ...) dessine une gamme de comportements mécaniques différents pour l'ensemble de ces matériaux complexes (thixotropie, rhéofluidification, rhéoépaississement, contrainte seuil, ...) [Assinck 1995]. Même en se limitant aux suspensions modèles de sphères non-browniennes en écoulement lent, on est confronté à une physique très riche. Depuis les travaux fondateurs d'Einstein en 1906 [Einstein 1906], les descriptions théoriques aussi bien que les études expérimentales ont permis une meilleure compréhension de cette rhéologie. Parmi les démonstrations expérimentales, on peut naturellement retenir l'existence d'une fraction volumique maximale au voisinage de laquelle la viscosité diverge, ce qui se manifeste par le blocage de la suspension. Cependant, d'autres propriétés importantes ont été mises en évidence, telles le glissement aux parois, la migration induite par le cisaillement, qui semble elle-même liée au développement de différences de contraintes normales au sein de la suspension. Ces dernières propriétés, si elles constituent des domaines d'étude en soi, compliquent également les mesures expérimentales de la viscosité. En effet, la rhéométrie classique, macroscopique, est fondée sur un certain nombre d'hypothèses, comme l'homogénéité du liquide étudié, la continuité de la vitesse aux parois, qui, si elles font défaut, rendent l'interprétation des expériences parfois inextricable. En conséquence, dans les systèmes comme celui qui nous occupe, les expériences de rhéométrie locale, qui permettent une visualisation directe de l'écoulement, sont d'un intérêt majeur.

Du point de vue théorique, deux facteurs, liés, sont apparus extrêmement importants. Il s'agit en premier lieu des interactions non-hydrodynamiques entre particules. Dans le cas des suspensions granulaires qui nous occupent, il s'agit essentiellement d'interactions de contact, qui semblent liées à la rugosité de la surface des particules. Si de telles interactions sont de toute évidence impliquées dans les propriétés rhéologiques des suspensions, leurs effets sont difficiles à mesurer d'un point de vue théorique. Les simulations numériques sont naturellement très utilisées pour pallier à cette difficulté, mais malgré des ordinateurs toujours plus puissants et les progrès très importants réalisés dans le domaine des techniques numériques, ces simulations restent lourdes à mettre en oeuvre, et leur mise au point, en tout cas pour les plus hautes fractions volumiques, subtile. Ceci explique que les effets précis de l'état de surface, et même de la nature des interactions, sur les propriétés rhéologiques de suspensions modèles, restent un champ d'investigation encore assez largement ouvert.

D'autre part, les modèles théoriques disponibles, de même que les simulations numé-

riques, ont mis en évidence une caractéristique primordiale des suspensions cisillées, à laquelle semble étroitement lié le comportement mécanique du matériau. Il s'agit de l'arrangement relatif moyen des particules plus proches voisines, que l'on appelle communément la microstructure. En effet, la distribution des forces interparticulaires et des interactions hydrodynamiques, qui détermine l'état de contrainte dans la suspension, dépend étroitement de la distribution spatiale relative des particules. Même dans le cas le plus simple, lorsque la fraction volumique est faible et les interactions non-hydrodynamiques négligeables, Batchelor et Green (1972) ont montré que la viscosité d'une suspension cisillée était étroitement liée à la microstructure induite par l'écoulement. Naturellement, interactions et microstructure jouent un rôle d'autant plus prononcé que la fraction volumique est importante.

Du point de vue expérimental, cette microstructure a d'abord été mise en évidence indirectement en rhéométrie classique au travers d'expériences d'inversion de cisaillement [Gadala-Maria & Acrivos 1980]. Les auteurs ont pu montrer un régime transitoire à partir de l'inversion de cisaillement, constitué d'une diminution rapide de la viscosité avant un retour vers la viscosité stationnaire. Ces expériences les ont amenés à envisager une structure microscopique induite par l'écoulement, non invariante par inversion du taux de cisaillement. Le même type de régime transitoire, cette fois pour les contraintes normales, a été également mis en évidence par la suite [Narumi *et al.* 2002] [Kolli *et al.* 2002].

Finalement, les tentatives de visualisation directe de la microstructure sont restées jusqu'à récemment très peu nombreuses [Parsi & Gadala-Maria 1987] [Rampall *et al.* 1997], tout au moins dans le domaine des suspensions non-browniennes concentrées, surtout du fait des difficultés expérimentales liées à la nécessité de voir à l'intérieur de la suspension.

J'ai consacré cette thèse à l'étude expérimentale par des méthodes locales de la relation entre la microstructure et la rhéologie des suspensions concentrées non-browniennes. J'ai ainsi mis au point deux expériences, l'une en vélocimétrie par image de particules (PIV), l'autre en suivi de particules, qui seront successivement abordées dans ce manuscrit, et en définiront les deux grandes parties. Après un court chapitre d'introduction, je décrirai en détail le dispositif expérimental de PIV, ainsi que les moyens mis en œuvre pour valider la méthode de mesure des profils de vitesse dans une géométrie de Couette cylindrique. Le troisième chapitre sera consacré à l'étude des suspensions concentrées par PIV, avec un accent tout particulier mis sur des expériences d'inversion de cisaillement. Nous essaierons, en revisitant ces expériences historiques, d'approfondir la compréhension de chacune des phases du régime transitoire observé, en particulier du point de vue de la microstructure induite par le cisaillement. Nous comparerons notamment la viscosité mesurée avec des simulations en Dynamique Stokésienne de la littérature [Sierou & Brady 2001]. Cela nous permettra également de dégager la contribution de la microstructure à la viscosité, dont nous montrerons qu'elle est étroitement liée aux différences de contraintes normales.

Je décrirai ensuite comment, ayant modifié le précédent dispositif, pour des particules

---

plus grosses notamment, j'ai pu suivre chaque particule de la suspension dans un plan de cisaillement. Cela m'a permis de mesurer des profils de vitesse, comme en PIV, mais m'a également donné accès à la distribution relative des particules dans le plan de cisaillement, c'est à dire à la microstructure dans ce plan. Le dernier chapitre sera consacré à la première étude publiée de la microstructure d'une suspension granulaire cisillée sur une plage de fraction volumique allant de 5% à 56%, en cisaillement continu et dans des expériences d'inversion de cisaillement. Nous mettrons notamment en évidence la signature quantitative de la rugosité sur les fonctions de distribution de paires à basse fraction volumique, rugosité qui brise la symétrie amont-aval de la microstructure. Nous verrons comment la distribution de paires est modifiée pour des fractions volumiques croissantes. Nous nous intéresserons également à l'influence de la taille finie de l'entrefer de la géométrie d'écoulement et à la structuration qu'elle induit au voisinage des parois. Nous comparerons ces résultats à des simulations numériques de la littérature [Yeo & Maxey 2010].



# Généralités

---

Dans ce chapitre, nous présentons, d'une manière qui n'est sans doute pas exhaustive, les liens forts qui existent entre les propriétés rhéologiques des suspensions et leur microstructure. Après avoir identifié les types de suspensions et d'écoulements qui nous intéressent, nous passons en revue les principaux travaux expérimentaux et numériques portant sur la description de la microstructure des suspensions non colloïdales cisillées. Nous montrons brièvement comment la connaissance de la microstructure permet d'expliquer ou de prédire certaines propriétés rhéologiques comme la viscosité ou les différences de contraintes normales. Enfin, nous rapportons des études expérimentales et numériques qui tendent à montrer toute l'influence de la microstructure sur la rhéologie en s'intéressant au comportement rhéologique transitoire d'une suspension lors d'une inversion de cisaillement.

## 1.1 Généralités

### 1.1.1 Nombre de Péclet

On distingue deux types d'écoulement de suspensions suivant la taille des particules utilisées : les suspensions browniennes, où le mouvement brownien des particules est important, et les autres, où il peut être négligé devant les effets hydrodynamiques. Le nombre de Péclet ( $Pe$ ), défini comme le rapport entre la convection hydrodynamique et la diffusion brownienne, mesure l'importance relative de ces deux effets, et joue un rôle essentiel en rhéologie des suspensions. Il s'exprime de manière générale par la relation :

$$Pe = \frac{\text{effets hydrodynamiques}}{\text{effets thermiques}} = \frac{UL}{D} \quad (1.1)$$

où  $U$  est la vitesse caractéristique de l'écoulement,  $L$  la taille des particules et  $D$  leur coefficient de diffusion. Pour des sphères de rayon  $a$  dans un écoulement de cisaillement simple de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , et avec le coefficient de diffusion  $D = \frac{kT}{6\pi\eta_0 a}$ , la relation (1.1) s'écrit :

$$Pe = \frac{6\pi\eta_0\dot{\gamma}a^3}{kT} \quad (1.2)$$

où  $\eta_0$  est la viscosité du fluide suspendant.



Cette expression montre que le passage entre un comportement brownien ( $Pe \ll 1$ ) et non brownien ( $Pe \gg 1$ ) dépend à la fois du taux de cisaillement et de la taille des particules. Ainsi, pour un taux de cisaillement typique de  $1 s^{-1}$  dans de l'eau ( $\eta_0 = 10^{-3} Pa.s$ ), la transition entre les deux régimes ( $Pe \sim 1$ ) a lieu pour des particules microniques. Soulignons que lorsque les particules sont browniennes, elles sont généralement soumises à des forces colloïdales (forces électrostatiques, de Van der Waals ou stériques) qui peuvent influencer considérablement la rhéologie. Les travaux rapportés dans ce manuscrit concernent exclusivement les écoulements de suspensions à grand nombre de Péclet.

### 1.1.2 Tenseur des contraintes

La rhéologie d'une suspension est caractérisée par son tenseur des contraintes effectives  $\boldsymbol{\sigma}$  et par une loi de comportement  $\boldsymbol{\sigma} = f(\dot{\gamma}, \Phi)$ , où  $\Phi$  est la fraction volumique de particules. Les modèles théoriques définissent  $\boldsymbol{\sigma}$  comme la moyenne d'ensemble du tenseur des contraintes pour toutes les réalisations de la suspension. Dans un cisaillement simple il est mis sous la forme [Batchelor 1970] :

$$\boldsymbol{\sigma} = -p_0 \mathbf{I} + 2\eta_0 \dot{\gamma} + \boldsymbol{\sigma}_p \quad (1.3)$$

où  $p_0$  est la pression dans le fluide suspendant,  $\mathbf{I}$  le tenseur identité et  $\boldsymbol{\sigma}_p$  la contribution des particules aux contraintes dans la suspension. Le caractère non newtonien d'une suspension apparaît formellement dans les termes diagonaux de  $\boldsymbol{\sigma}_p$ , à travers les différences de contraintes normales particulières :

$$N_1 = \sigma_{11} - \sigma_{22} = \sigma_{p,11} - \sigma_{p,22} \quad (1.4)$$

$$N_2 = \sigma_{22} - \sigma_{33} = \sigma_{p,22} - \sigma_{p,33} \quad (1.5)$$

où les indices 1,2 et 3 font respectivement référence à la direction de la vitesse, du gradient de vitesse et de la vortacité de l'écoulement moyen. Alors que dans les solutions de polymères il apparaît clairement  $N_1 > 0$  et  $N_2 \sim -N_1/10$  [Tanner 1970], les mesures de différences de contraintes normales dans les suspensions concentrées restent encore un sujet ouvert [Boyer *et al.* 2011] [Couturier *et al.* 2011] [Dbouk 2011].

### 1.1.3 Viscosité

Une analyse dimensionnelle [Krieger 1963] permet d'écrire que pour des régimes où  $Re = 0$ , la viscosité ne dépend que du nombre de Péclet et de la fraction volumique  $\Phi$  de particules dispersées dans le fluide suspendant :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_0} = f(\Phi, Pe) \quad (1.6)$$

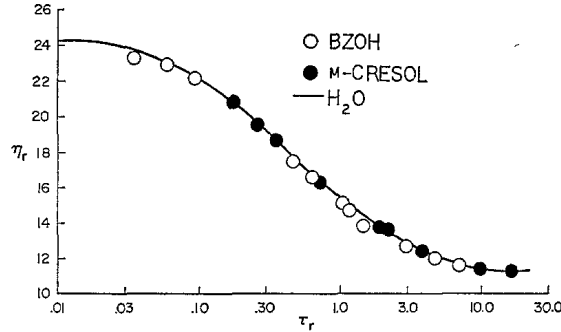


FIG. 1.1 – Viscosité réduite en fonction de la contrainte de cisaillement adimensionnée  $\tau_r \sim \eta_0 \dot{\gamma} a^3 / kT \sim Pe$  pour des suspensions de particules sphériques de tailles différentes (77 – 215 nm) dans les fluides indiqués en légende.  $\Phi = 0.5$ . D'après [Papir & Krieger 1970].

où  $\eta_r$  est la viscosité réduite.

**Influence du nombre de Péclet** La fig. 1.1 représente la courbe maîtresse de la viscosité réduite  $\eta_r$  en fonction de la contrainte de cisaillement adimensionnée,  $\tau_r = \frac{\tau a^3}{kT} \sim Pe$ , pour des suspensions de particules sphériques de tailles différentes (77 – 215 nm) et de fraction volumique  $\Phi = 0.5$  dans divers fluides suspendants. Ce graphe montre bien que toutes les courbes se superposent si la viscosité, normalisée par la viscosité du fluide suspendant, est tracée en fonction du nombre de Péclet. Ainsi, la viscosité d'une suspension est une fonction décroissante du nombre de Péclet. Pour les grands nombres de Péclet, elle atteint un palier, et selon certains auteurs, elle peut même croître à nouveau [Foss & Brady 2000].

**Influence de la fraction volumique** La fig. 1.2 représente la variation de la viscosité relative de suspensions de sphères de tailles différentes (0.1–65  $\mu m$ ) en fonction de  $\Phi/\Phi^*$ . Ces résultats montrent que, pour un type de suspension, il existe une fraction volumique maximum  $\Phi^*$  pour laquelle la viscosité diverge. Cette fraction volumique est souvent utilisée comme paramètre ajustable dans les modèles de viscosité [Stickel & Powell 2005]. La valeur de  $\Phi^*$  varie sensiblement dans la littérature entre 0.53 et 0.70 et traduit une mesure scalaire de la microstructure de la suspension [Wildemuth & Williams 1984]. Une valeur communément admise est  $\Phi^* \approx 0.64$  qui est la concentration correspondant à un empilement compact aléatoire.

De nombreuses formulations empiriques de  $\eta_r(\Phi)$  existent dans la littérature, mais nous retiendrons [Wiederseiner 2010] :

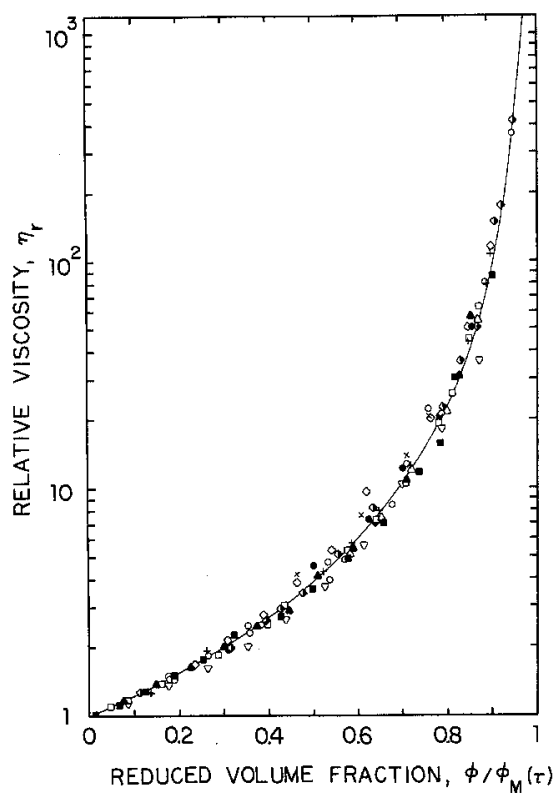


FIG. 1.2 – Viscosité réduite en fonction de  $\Phi/\Phi^*$  pour des suspensions de sphères de tailles différentes (0.1–65  $\mu\text{m}$ ). La courbe en trait plein est la relation de Krieger et Dougherty (1959). D'après [Wildemuth & Williams 1984].

$$\eta_r = \left(1 - \frac{\Phi}{\Phi^*}\right)^{-2} \quad [\text{Maron \& Pierce 1956}]$$

$$\eta_r = \left(1 - \frac{\Phi}{\Phi^*}\right)^{-2.5\Phi^*} \quad [\text{Krieger \& Dougherty 1959}]$$
(1.7)

La première expression, très souvent proposée, formulée par Maron et Pierce (1956), sera utilisée dans la suite de ce manuscrit. Notons que, contrairement à l'expression proposée par Krieger et Dougherty (1959), la loi de Maron et Pierce ne permet pas de retrouver la viscosité d'une suspension diluée [Einstein 1906] quand  $\Phi \rightarrow 0$ .

**Suspensions diluées** En 1906, Einstein propose, pour l'appliquer dans son étude du mouvement brownien, une relation pour la viscosité relative d'une suspension diluée :

$$\eta_r = 1 + 2.5\Phi \quad (1.8)$$

Cette relation montre que les suspensions diluées se comportent comme des fluides homogènes newtoniens de viscosité supérieure à celle du fluide suspendant. Ce résultat simple et général ne dépend pas du caractère brownien ou non brownien des particules, ni des éventuelles interactions qu'elles pourraient avoir entre elles ou de la géométrie de l'écoulement. Guyon *et al.* (2011) proposent un raisonnement simple pour le comprendre qualitativement. Considérons le transport de quantité de mouvement le long d'une ligne L tracée au hasard dans une suspension de fraction volumique  $\Phi \ll 1$  (fig. 1.3).

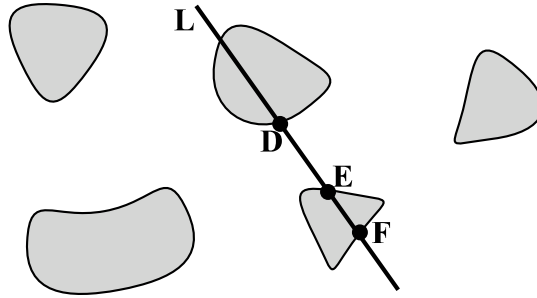


FIG. 1.3 – *Explication heuristique de la viscosité d'une suspension diluée. La ligne L coupe aléatoirement la suspension. La fraction de ligne DE est située dans le liquide suspendant de viscosité  $\eta_0$  et la fraction de ligne EF est située dans une particule rigide. D'après [Guyon et al. 2001].*

Ce transport est diffusif sur la fraction de ligne DE entre deux particules dans le fluide de viscosité  $\eta_0$  et instantanée sur le segment EF dans une particule solide qui joue le rôle de court-circuit. Le temps de diffusion dans la suspension entre D et F est donc identique

au temps de diffusion dans le fluide entre D et E. On peut donc écrire :

$$t_D = \frac{DF^2}{\eta/\rho} = \frac{DE^2}{\eta_0/\rho} \quad (1.9)$$

Dans le premier terme, c'est la viscosité effective qui intervient, alors que dans le second est prise en compte la viscosité du fluide uniquement. D'après un théorème de stéréologie, la fraction de longueur située dans les particules sur une droite traversant aléatoirement la suspension est égale à  $\Phi$ . Le rapport des longueurs DE et DF est donc en moyenne :

$$\frac{DE}{DF} = 1 - \frac{EF}{DF} = 1 - \Phi \quad (1.10)$$

ce qui permet d'écrire (1.9) sous la forme

$$t_D = \frac{[DF(1 - \Phi)]^2}{\eta_0/\rho} \quad (1.11)$$

Un développement au premier ordre en  $\Phi$  donne :

$$\eta_r = 1 + 2\Phi \quad (1.12)$$

en bon accord avec l'expression (1.8).

L'expression d'Einstein est valable jusqu'à des concentrations de quelques pour cent. Pour des fractions volumiques plus grandes, les interactions hydrodynamiques entre particules interviennent et il faut apporter à l'expression de la viscosité des corrections d'ordre supérieur en  $\Phi$ . La correction à l'ordre 2 provient des interactions de paires dans l'écoulement et dépend donc de l'organisation spatiale de celles-ci qui, elle-même, varie en fonction du type d'écoulement. En 1972, Batchelor et Green calculent la correction en  $O(\Phi^2)$  pour un écoulement de cisaillement pur [Batchelor & Green 1972a]

$$\eta_r = 1 + 2.5\Phi + 7.6\Phi^2 \quad (1.13)$$

Cette relation s'applique le plus souvent pour des concentrations inférieures à 0.10. Au-delà, les interactions à plus de deux particules interviennent et les termes d'ordre supérieur sont difficiles à calculer. On a alors recours, la plupart du temps, à des modèles phénoménologiques comme ceux de Maron-Pierce ou de Krieger-Dougherty.

On voit d'ores et déjà que microstructure et rhéologie sont fortement liées. En effet, pour mener à bien leur calcul de correction de viscosité, Batchelor et Green (1972) ont eu besoin de connaître la distribution spatiale des particules dans un écoulement de cisaillement pur.

## 1.2 Microstructure

Ainsi, dès qu'il est nécessaire de considérer les interactions entre particules pour calculer la viscosité, il faut connaître leur répartition spatiale. En outre, l'organisation de la suspension dépend, du type d'écoulement considéré, des caractéristiques des particules et de leur concentration. Dans cette section, nous traiterons de la microstructure dans les suspensions diluées, qui peut être déduite d'un calcul quasi-analytique, et dans les suspensions concentrées, où seules des données numériques et expérimentales sont disponibles.

Avant de poursuivre, tentons de plaquer une image de ce que pourrait être la microstructure induite par un écoulement de cisaillement simple. Pour cela, rappelons-nous qu'un tel écoulement peut être vu comme la superposition d'une rotation solide et d'un écoulement élongationnel (fig. 1.4).

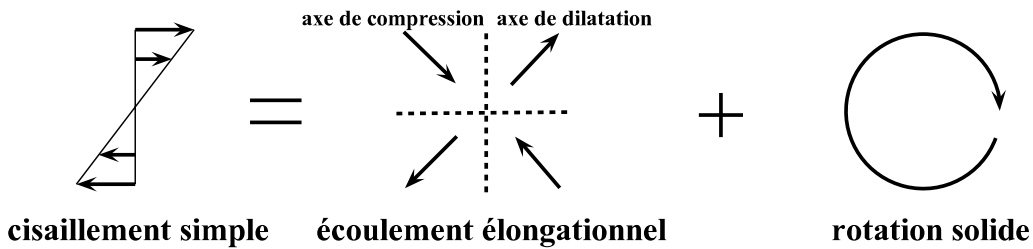


FIG. 1.4 – Schéma illustrant la décomposition d'un cisaillement simple en un écoulement élongationnel et une rotation solide.

Notre intuition nous dit que la rotation solide n'a pas tendance à faire varier les distances entre particules. En revanche, on s'attend à ce que l'écoulement élongationnel *pousse* les particules les unes contre les autres dans la direction de l'axe de compression et les *éloigne* les unes des autres dans la direction de l'axe de dilatation. Si les seules forces sont des forces hydrodynamiques, on s'attend à ce que l'écoulement soit réversible et que l'organisation relative des particules soit donc symétrique par rapport à l'axe du gradient de vitesse. En revanche, dès lors que des interactions non hydrodynamiques (indépendantes de la vitesse) sont présentes, cette symétrie est brisée, ce qui rend possible l'apparition d'une microstructure asymétrique par rapport à la direction du gradient de vitesse. Nous verrons que généralement (sauf pour les plus grandes fractions volumiques), cette microstructure correspond à un excès de paires de particules orientées dans le quadrant de compression et à un défaut de paires dans le quadrant de dilatation.

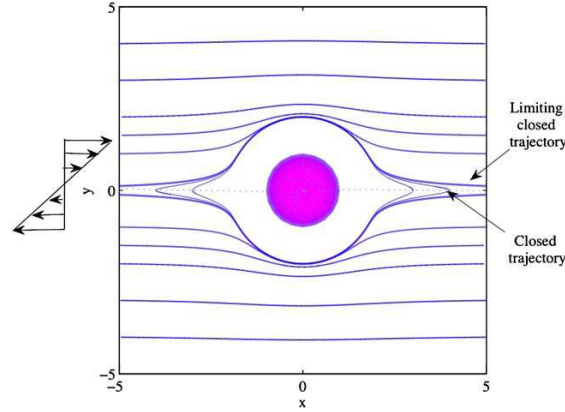


FIG. 1.5 – Trajectoires à  $Re=0$  dans un écoulement de cisaillement simple, d'une seconde sphère par rapport à une première sphère de référence centrée sur le repère. Basée sur les résultats de Batchelor et Green (1972). D'après [Morris 2009].

### 1.2.1 Résultats expérimentaux

#### Suspensions diluées

**Fonction de distribution de paires** Dans leur travaux, Batchelor et Green (1972), calculent la correction de viscosité induite par les interactions hydrodynamiques entre paires de particules. Pour évaluer le tenseur effectif des contraintes dans la suspension, les auteurs introduisent la densité de probabilité conditionnelle de trouver une particule en  $\mathbf{r}$  sachant qu'une particule de référence se situe en  $\mathbf{r}_0$ , notée  $P(\mathbf{r}|\mathbf{r}_0 = 0)$  et définissent :

$$P(\mathbf{r}|\mathbf{r}_0 = 0) = np(\mathbf{r}) \quad (1.14)$$

où  $n$  représente la densité de particules et  $p(\mathbf{r})$  est la fonction de distribution de paires (PDF). Lorsque  $r \rightarrow \infty$ , les particules sont décorréélées, et les positions indépendantes de chacune des particules imposent  $p(r \rightarrow \infty) = 1$ . En résolvant l'équation du mouvement de deux particules sphériques dans un cisaillement pur à  $Re = 0$ , Batchelor et Green montrent que la PDF est isotrope et dépend seulement de la distance entre les deux centres des particules,  $p(\mathbf{r}) = g_{BG}(r)$ , avec

$$g_{BG} = \frac{1}{1 - A(r)} \exp \left\{ \int_r^\infty \frac{3}{\xi} \frac{B(\xi) - A(\xi)}{1 - A(\xi)} d\xi \right\} \quad (1.15)$$

où  $A$  et  $B$  sont les mobilités d'une particule sphérique [Kim & Karrila 1991]. Cette expression diverge lorsque  $r \rightarrow 2$  signifiant que les paires passent substantiellement plus de temps en contact dans une suspension cisillée que dans une suspension distribuée aléatoirement.

**Anisotropie de la fonction de distribution de paires en écoulement de cisaillement simple** La fonction de distribution de paires calculée par Batchelor et Green dans le cas d'un cisaillement pur est aussi valable dans le cas d'un cisaillement simple pour des positions appartenant à des trajectoires de paires ouvertes, c'est à dire provenant de l'infini (fig. 1.5). En effet, il existe des trajectoires fermées, caractérisées par une distance minimale d'approche inférieure à une valeur critique, pour lesquelles il n'est pas possible de connaître la valeur de la PDF. Arp et Mason (1977) ont montré que cette distance critique était égale à  $4.10^{-5} \times a$ . Or, Rampall *et al.* (1997), puis Drazer *et al.* (2002), montrent que s'il existe une force répulsive de portée suffisante entre les particules, elle conduit à l'élimination d'éventuels doublets permanents. L'absence de ces doublets a pour conséquence d'annuler la fonction de distribution de paires dans la région des orbites fermées. Cette déplétion dans la direction de la vitesse rend donc anisotrope la PDF d'une suspension de sphères diluée dans un écoulement de cisaillement simple. Notons qu'en dehors de la zone déplétée, la PDF prend les valeurs calculées par Batchelor et Green dans le cas d'un cisaillement pur (1.15).

**Mesures expérimentales** La première mesure de la fonction de distribution de paires d'une suspension non-brownienne ( $2a = 40 - 50 \mu m$ ) isodense a été réalisée par Husband et Gadala-Maria (1987) pour des concentrations comprises entre 0.01 et 0.05 (fig. 1.6). Malgré sa mauvaise résolution, cette mesure de PDF met bien en évidence une anisotropie. Cependant, contrairement à ce qu'on attendait, cette anisotropie ne se manifeste pas par une déplétion de particules, mais par une surintensité dans la direction de la vitesse. Cette surintensité est interprétée comme un probable résidu de force colloïdale attractive entre les particules [Rampall *et al.* 1997] qui donne lieu à la formation de doublets permanents. Ceux-ci tournent dans l'écoulement de cisaillement simple et, lors d'une période de rotation, passent un long moment alignés dans la direction de la vitesse [Arp & Mason 1977].

Ce sont Rampall *et al.* (1997) qui, pour la première fois, mesurent une PDF présentant une déplétion dans la direction de la vitesse dans des suspensions non-browniennes ( $2a = 3.18 mm$ ) isodenses, de fractions volumiques 0.05 à 0.15. En plus de cette anisotropie, ils mettent en évidence une asymétrie *amont-aval* de la fonction de distribution de paires par rapport au gradient de vitesse (*fore-aft asymetry*) qui traduit l'apparition d'une irréversibilité dans les *collisions* des particules sphériques. Cette asymétrie se manifeste par une déplétion de la PDF suivant un axe incliné par rapport à la direction de la vitesse. Les résultats de Rampall *et al.* pour  $\Phi = 0.10$  sont présentés sur la fig. 1.7, où  $\Psi$  est la densité de particules normalisée cumulée, moyennée sur des secteurs angulaires centrés en



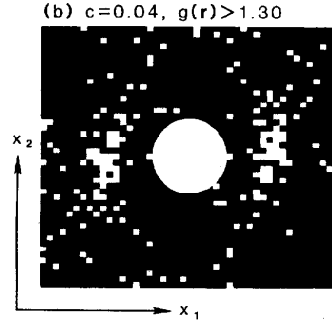


FIG. 1.6 – Fonction de distribution de paires d'une suspension de concentration 0.04. Le disque central représente la particule de référence. Seules les valeurs de  $g > 1.30$  sont portées sur le graphe.  $x_1$  : direction de la vitesse.  $x_2$  : direction du gradient de vitesse. D'après [Husband & Gadala-Maria 1987].

$\theta = 9^\circ, 27^\circ, 153^\circ, 171^\circ$  et de largeur  $\Delta\theta = 18^\circ$  :

$$\Psi(r, \theta) = \frac{2}{r^2 \Delta\theta} \int_{\theta-\Delta\theta/2}^{\theta+\Delta\theta/2} \int_0^r g(r', \theta') r' dr' d\theta' \quad (1.16)$$

L'asymétrie se manifeste sur les valeurs de la courbe en  $\theta = 9^\circ$  (proche de la direction aval de l'écoulement) qui sont systématiquement inférieures à celle de la courbe en  $\theta = 171^\circ$  (proche de la direction amont de l'écoulement).

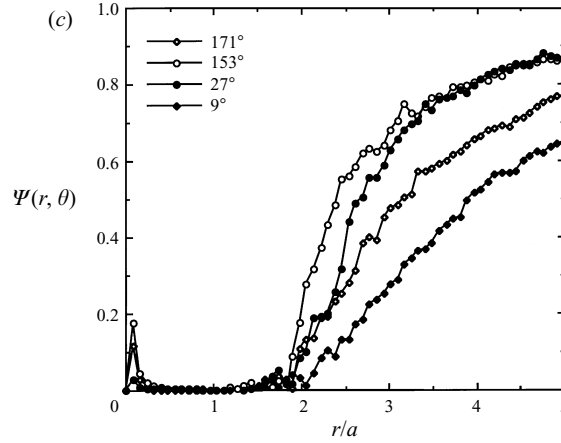


FIG. 1.7 – Fonctions de distribution de paires mesurées dans une suspension de fraction volumique 0.10. Mesures proches de la direction de la vitesse. D'après [Rampall et al. 1997].

S'appuyant sur le modèle d'interaction de sphères dures rugueuses de Da Cunha et Hinch (1996), Rampall *et al.* interprètent cette inclinaison de l'axe de déplétion comme un

1. Pour limiter le bruit statistique, les auteurs présentent la quantité  $\Psi$  à la place de  $g$ .

effet de la rugosité de surface des particules sur leur trajectoire. En effet, alors que deux sphères lisses ne peuvent jamais entrer en contact à cause des forces de lubrification, les rugosités de surface introduisent des contacts irréversibles entre les particules. Le modèle de Da Cunha et Hinch, qui annule la vitesse radiale ( $A = 1$ ) et garde la vitesse tangentielle des particules inchangée ( $B$ ) pendant une collision, a pour conséquence que toutes les particules situées dans le quadrant de compression, dont la distance d'approche est inférieure à la taille typique des rugosités ( $\epsilon a$ ), se retrouvent distribuées dans le quadrant de dilatation sur une trajectoire limite située en dehors de l'axe de la vitesse (fig. 1.8). Cette modélisation permet à Rampall *et al.* de retrouver un ordre de grandeur de la rugosité typique de leurs particules.

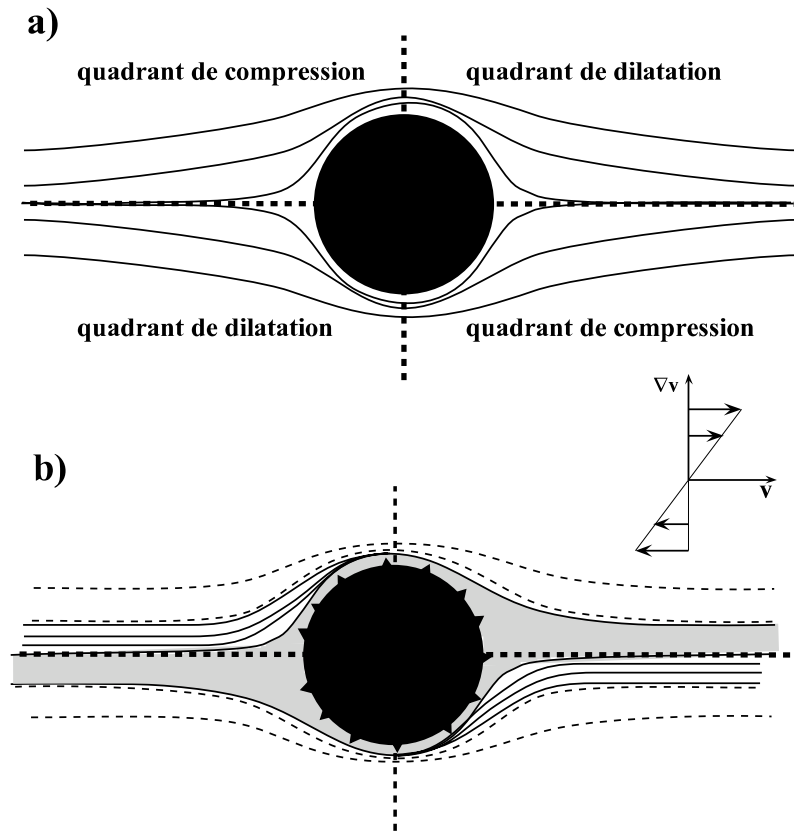


FIG. 1.8 – Schéma illustrant l'apparition d'une zone de déplétion dans le plan de cisaillement. a) Écoulement symétrique autour d'une sphère lisse. b) Asymétrie due aux rugosités de surface. Les lignes pleines représentent des trajectoires perturbées par la rugosité et les lignes brisées des trajectoires non perturbées. La zone grisée est la région déplétée en particules.

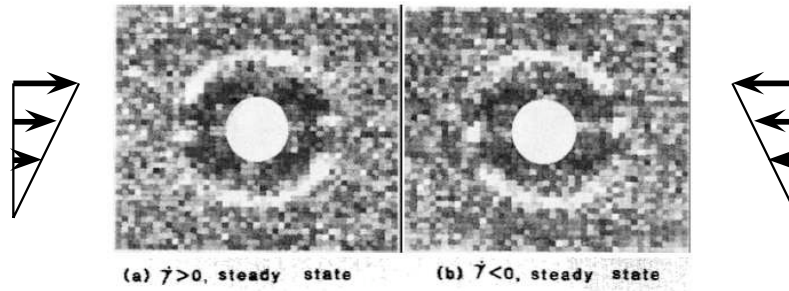


FIG. 1.9 – Mesures de la PDF d’une suspension isodense de sphères de polystyrène de diamètre  $40 - 50 \mu\text{m}$  de concentration  $0.40$ . D’après [Parsi & Gadala-Maria 1987].

### Suspensions concentrées

En 1980, Acrivos et Gadala-Maria montrent qu’après une inversion de cisaillement, la viscosité des suspensions concentrées ( $0.30 < \Phi < 0.50$ ) présente un régime transitoire caractérisé par une baisse rapide de  $\eta$  qui, après être passé par un minimum, croît à nouveau pour retrouver à nouveau la valeur qu’elle avait avant l’inversion de cisaillement. Ils interprètent ce régime transitoire par la destruction puis la reformation d’une microstructure induite par l’écoulement.

En 1987, Parsi et Gadala-Maria vérifient cette conjecture en mesurant la PDF à la surface d’une suspension concentrée à 40% cisailée dans un sens puis dans l’autre (fig. 1.9). Outre l’anisotropie et l’asymétrie de la PDF, la fig. 1.9 fait apparaître une surintensité dans la direction de la vitesse qui indique qu’un nombre important de paires sont alignées dans cette direction.

A ma connaissance, seules les trois publications citées ci-dessus présentent des mesures de PDF dans des suspensions non-browniennes et non-colloïdales. Ce nombre réduit de résultats provient de la difficulté expérimentale d’obtenir à la fois des suspensions transparentes et isodenses [Wiederseiner *et al.* 2010].

En 2010, Gao *et al.* réalisent des mesures de  $g(r, \theta)$  dans une suspension colloïdale ( $2a = 1 \mu\text{m}$ ). A l’aide d’une technique de microscopie confocale, ils parviennent à déterminer les PDF à la fois dans le plan de cisaillement  $(v, \nabla v)$  et dans le plan  $(\nabla v, \nabla \times v)$ . Les auteurs précisent avoir limité les interactions électrostatiques entre particules en contrôlant le pH de la suspension qui s’approche ainsi d’une suspension de sphères dures. Les mesures, obtenues pour un grand nombre de Péclet ( $Pe = 1700$ ), sont présentées sur la fig. 1.10 en parallèle avec des résultats numériques en dynamique stokésienne. Comme dans les suspensions non-browniennes et non-colloïdales, nous notons une anisotropie et une asymétrie de  $g(r, \theta)$  dans le plan de cisaillement, avec, comme dans le résultat de Parsi *et al.*, une surintensité dans une zone proche de l’axe de la vitesse qui n’apparaît pas dans la simulation. Cette

mesure 3D indique en plus que, dans le plan  $(\nabla v, \nabla \times v)$ , il n'existe pas de structuration de la suspension, i.e.  $g(r, \theta)$  présente un caractère isotrope<sup>2</sup>.

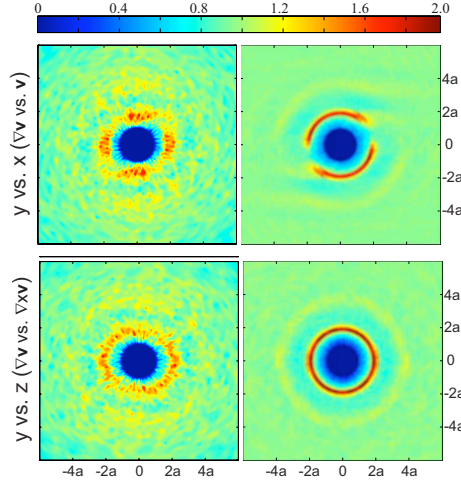


FIG. 1.10 – *PDF expérimentale (gauche) et numérique (droite) d'une suspension  $\Phi = 0.319$ .  $Pe = 1700$ . D'après [Gao et al. 2010].*

### 1.2.2 Simulations numériques

La plupart des études sur la microstructure des suspensions concentrées non-browniennes présentes dans la littérature sont numériques. Outre le fait d'éviter les difficultés expérimentales, l'intérêt majeur des méthodes numériques comme la dynamique stokésienne [Bossis & Brady 1984] [Sierou & Brady 2001], ou la *Force Coupling Method* [Yeo & Maxey 2010], est d'offrir la possibilité de mesurer des quantités microscopiques, mais aussi, de contrôler facilement les différents paramètres de l'écoulement ( $Pe$  et  $Re$ ), et de modifier les interactions non hydrodynamiques entre particules au moyen de potentiels dont on peut régler l'intensité et la portée.

Bossis et Brady (1984) présentent, à l'aide d'un algorithme de dynamique stokésienne, une première preuve numérique de l'asymétrie de la PDF d'une suspension concentrée monocouche. Ils mettent en évidence que cette asymétrie dépend directement de la portée des forces répulsives entre particules.

De manière plus précise, Drazer *et al.* (2002, 2004), étudient le lien entre asymétrie et interaction non hydrodynamique. Leurs travaux consistent, entre autre, à mesurer numériquement l'impact de la portée des interactions non hydrodynamiques et de la fraction volumique sur la microstructure. De manière classique en dynamique stokésienne

2. Pour des concentrations proches du blocage cette isotropie est moins évidente [Gao et al. 2010].

[Bossis & Brady 1984], ils introduisent une force interparticulaire non hydrodynamique normalisée par la force hydrodynamique  $6\pi\eta a^2\dot{\gamma}$  de la forme :

$$\mathbf{F}_{\alpha\beta} = \frac{F_0}{r_c} \frac{e^{-\epsilon/r_c}}{1 - e^{-\epsilon/r_c}} \mathbf{e}_{\alpha\beta} \quad (1.17)$$

où  $\mathbf{F}_{\alpha\beta}$  est la force adimensionnée exercée par la sphère  $\alpha$  sur la sphère  $\beta$ ,  $F_0$  un coefficient adimensionné reflétant l'intensité de l'interaction,  $r_c a$  une longueur de portée caractéristique de la force,  $\epsilon a$  la distance d'approche entre les surfaces des deux sphères et  $\mathbf{e}_{\alpha\beta}$  le vecteur unitaire pointant de  $\beta$  vers  $\alpha$ . La fig. 1.11 présente les fonctions de distribution de paires angulaire  $g_R(\theta)$  pour différentes valeurs de  $r_c$  et  $\Phi$ , où

$$g_R(\theta) = \frac{1}{r^2 \Delta r} \int_{r-\Delta r/2}^{r+\Delta r/2} r'^2 g(r', \theta) dr' \quad (1.18)$$

Ces résultats montrent que, pour une fraction volumique donnée, si la portée de  $\mathbf{F}_{\alpha\beta}$  est limitée ( $r_c \sim 10^{-4}a$  pour  $\Phi = 0.10$ ), la PDF est anisotrope et symétrique. Par contre, pour  $\Phi$  donnée, si la portée des interactions non hydrodynamiques est suffisante, il existe une asymétrie *amont-aval*, d'autant plus prononcée que cette portée augmente (fig. 1.11-gauche). Pour  $r_c$  donnée, l'asymétrie augmente avec  $\Phi$  et les paires ont tendance à s'orienter dans une zone située dans le quadrant de compression (fig. 1.11-droite). Dans le quadrant de dilatation, on remarque que la direction de la déplétion s'incline de plus en plus vers la direction de l'axe de dilatation.

Pour des fractions volumiques supérieures à 0.40, en plus des propriétés précédentes, Morris et Katyal (2002) observent numériquement l'apparition d'un pic de probabilité très prononcé dans la direction de la vitesse en  $r = 2a$ , indiquant la présence de doublets parallèles aux lignes du champ de vitesse (fig. 5.20). Parallèlement à l'apparition de ce pic, lorsque  $\Phi$  augmente, les paires s'orientent préférentiellement dans une direction,  $\theta \approx 110^\circ$ , proche du gradient de vitesse ( $\theta = 90^\circ$ ). Pour des fractions volumiques supérieures à 0.45, Morris et Katyal observent aussi l'émergence d'une deuxième zone de déplétion dans le quadrant de compression proche de la direction  $\theta = 145^\circ$ .

**Résumé** Expériences et simulations numériques montrent qu'il existe une microstructure qui se développe dans l'écoulement d'une suspension de sphères non-browniennes. Cette microstructure apparaît essentiellement dans le plan de cisaillement, l'organisation spatiale des particules étant presque isotrope dans le plan  $(\nabla v, \nabla \times v)$  (fig. 1.10-bas). En régime dilué, et en absence de forces répulsives entre particules, la distribution spatiale des particules dans le plan de cisaillement est symétrique par rapport au gradient de vitesse. Cette symétrie est la conséquence de la réversibilité des équations de Stokes. Quand la portée des interactions augmentent, les trajectoires fermées dans le plan  $(v, \nabla v)$  qui correspondent à des distances

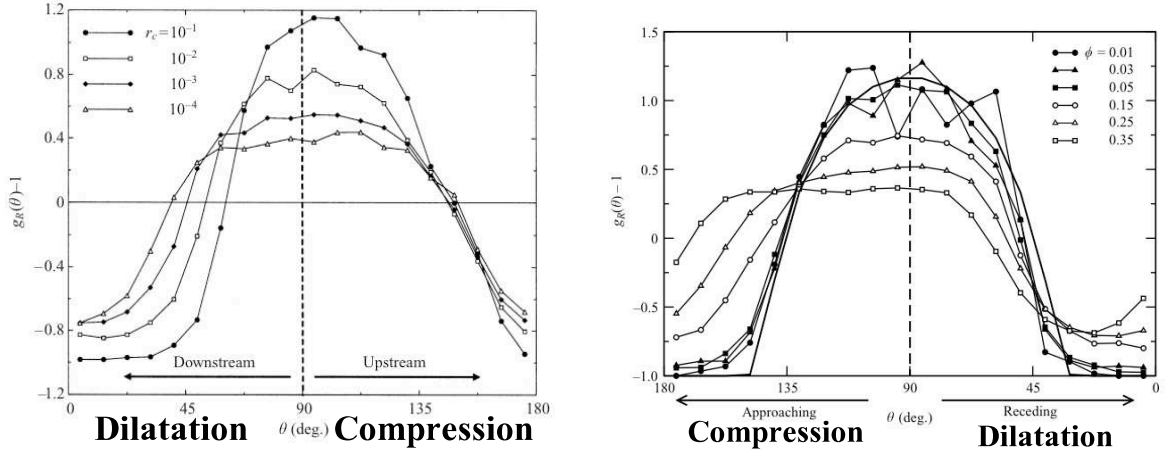


FIG. 1.11 – Fonctions de distribution de paires angulaires normalisées.  $\theta = 0^\circ$  : direction de la vitesse moyenne de l'écoulement. Gauche : influence de  $r_c$  pour  $\Phi = 0.10$ . Intégration radiale :  $2.0 < r/a < 2.1$ . Droite : influence de  $\Phi$  pour  $r_c = 10^{-4}$ . Intégration radiale :  $2.0 < r/a < 2.01$ . Ligne continue : fonction théorique de Batchelor et Green (1972) pour la région en dehors des doublets permanents, zéro pour la région contenant les doublets. Résultats numériques d'après Drazer et al. (2002) et (2004).

interparticulaires trop faibles sont éliminées. Lorsque la portée devient égale à la distance minimale d'approche qui conduit à la formation d'un doublet permanent ( $4.10^{-5} \times a$ ), toutes les trajectoires fermées du plan  $(v, \nabla v)$  sont éliminées. Une zone déplétée allongée dans la direction de la vitesse apparaît alors (fig. 1.8). Quand la portée des interactions croît encore, la PDF devient asymétrique par rapport à la direction du gradient de vitesse : la zone de déplétion s'élargit dans le quadrant de récession du plan de cisaillement, et ce, d'autant plus que la portée des interactions est grande (fig. 1.13-a).

Dans les suspensions concentrées, pour une portée d'interactions répulsives donnée, l'axe de déplétion semble s'incliner vers l'axe de dilatation quand la fraction volumique de particules augmente (fig. 1.13-b). Au-delà de  $\Phi \approx 0.40$ , quelques études numériques ont montré que des pics de probabilité apparaissaient dans la direction de la vitesse.

Pour terminer cet état de l'art, si les études numériques ont permis de mesurer l'influence des interactions non hydrodynamiques entre particules et de la fraction volumique sur la microstructure des suspensions cisillées, les études expérimentales, peu nombreuses, n'ont pu donner jusqu'ici qu'une description très qualitative de cette microstructure.

Enfin, notons que dans toutes ces études numériques et expérimentales, au-delà des deuxièmes voisins, la suspension retrouve un aspect quasi-isotrope. L'analyse des phénomènes physiques mis en œuvre lorsque les particules sont proches du contact (i.e.  $r \approx 2a$ ) est donc d'une grande importance pour comprendre les propriétés rhéologiques complexes

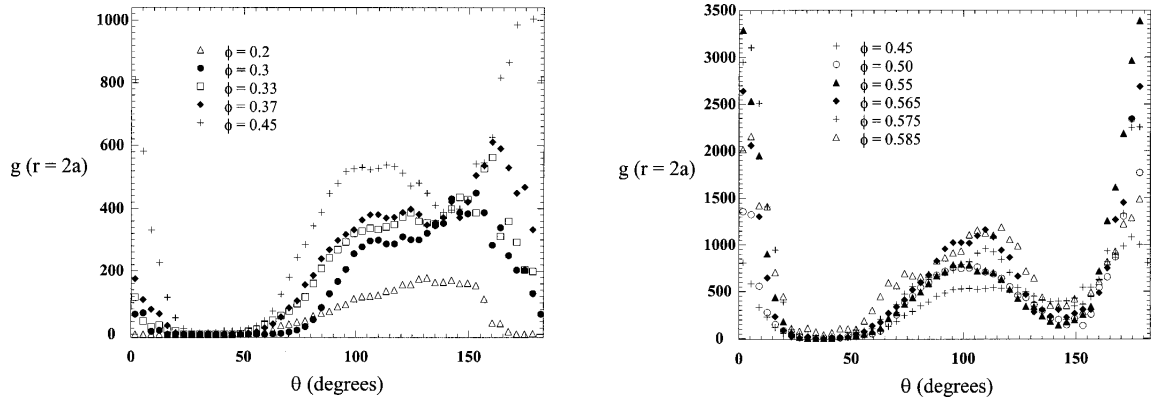


FIG. 1.12 – Évolution de la fonction de distribution de paires au contact ( $2 < r/a < 2.0005$ ) en fonction de la fraction volumique.  $Pe = 1000$ . Résultats en dynamique stokesienne d'après [Morris & Katyal 2002].

des suspensions concentrées.

### 1.3 Microstructure et rhéologie

Le lien entre la distribution spatiale des particules et la rhéologie est notamment mis en évidence par Phung *et al.* (1996) et par Foss et Brady (2000), qui, à travers des simulations numériques sur des suspensions colloïdales cisailées à  $Pe \gg 1$ , montrent que les différences de contraintes normales sont corrélées à une asymétrie de  $g(\theta)$ . L'impact de la microstructure sur les propriétés rhéologiques a aussi été étudié analytiquement par Brady et Morris (1997) pour des suspensions colloïdales à  $Pe \gg 1$  et  $\Phi \ll \Phi^*$ . Prenant en compte des interactions hydrodynamiques et des forces de contact de type sphères dures, ils ont montré que le caractère non-newtonien des suspensions trouve son origine dans une couche limite, proche de la surface des particules, de taille caractéristique  $\frac{a}{Pe}$  [Brady & Morris 1997]. Dans le cas de sphères lisses, l'asymétrie de  $g$  est la conséquence d'un mouvement brownien résiduel dans cette couche limite, et les effets non-newtoniens varient suivant une loi d'échelle du type  $Pe^{-0.22}$  lorsque  $Pe \rightarrow \infty$ . Ces effets s'annulent donc lorsque  $Pe^{-1} = 0$  et on retrouve le caractère réversible des collisions de sphères à  $Re = 0$ . Toutefois, dans le cas d'interactions de contact entre sphères dures, les auteurs montrent que l'asymétrie perdure quelle que soit la valeur de  $Pe$ , et qu'elle conduit à une correction de la viscosité, ainsi qu'à l'émergence d'une pression particulaire et de différences de contraintes normales, variant en  $\eta\dot{\gamma}$  comme les contraintes tangentielles.

Sierou et Brady (2002) proposent d'étendre les résultats de Brady et Morris à des suspensions concentrées non-colloïdales. Ils introduisent notamment une loi d'échelle pour la

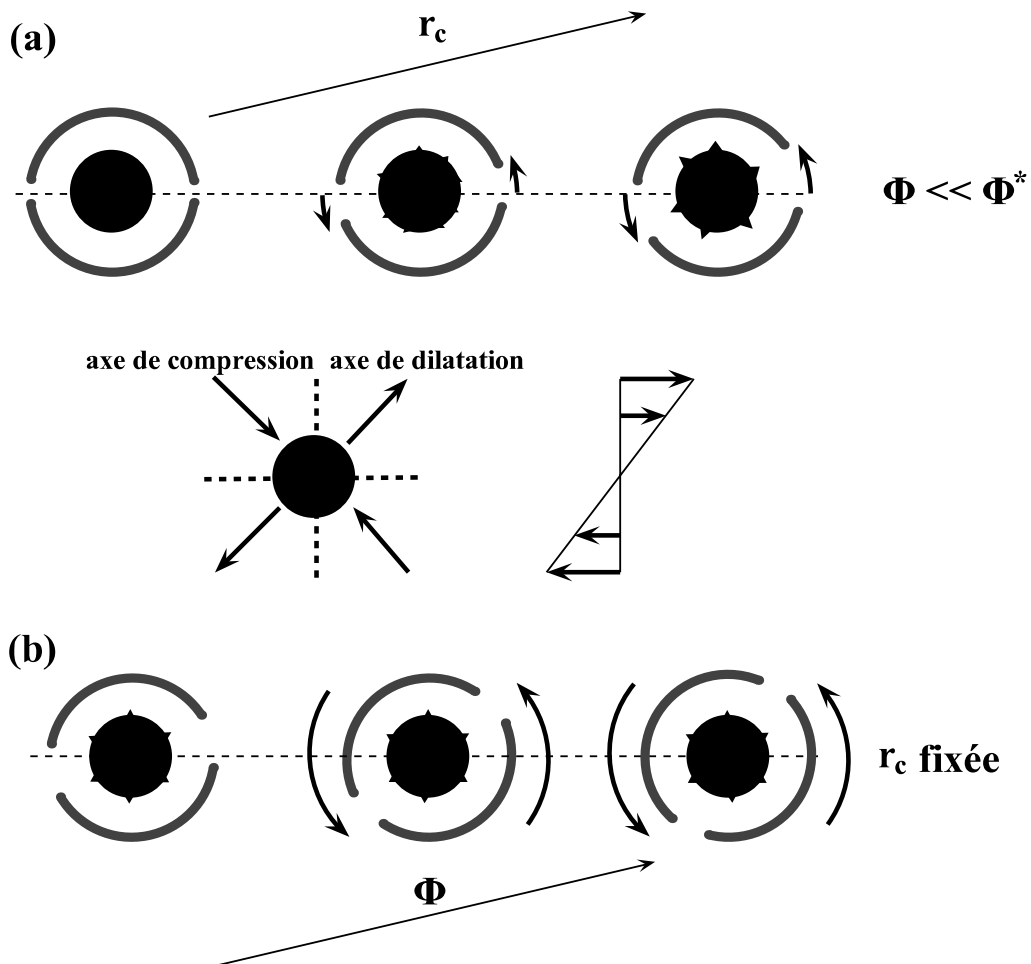


FIG. 1.13 – Schéma illustrant qualitativement l'influence de la fraction volumique et de la portée des interactions répulsives entre particules sur l'évolution de la fonction de distribution de paire. (a) Influence de la portée des interactions  $r_c$  pour  $\Phi \ll \Phi^*$ . (b) Influence de  $\Phi$  pour  $r_c$  donnée. L'apparition d'un pic de probabilité dans la direction de la vitesse n'est pas représentée sur ce schéma.



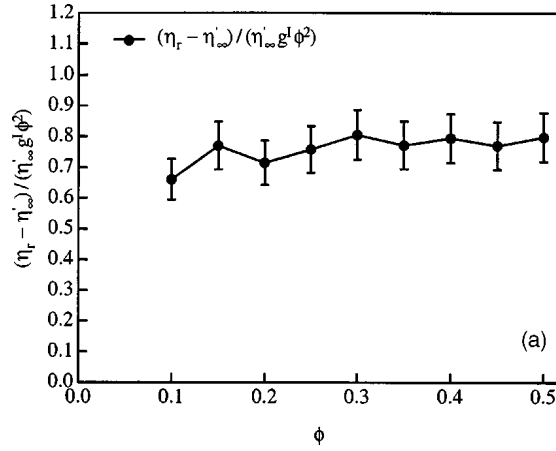


FIG. 1.14 –  $\Delta\eta$  normalisée par la quantité  $\eta'_\infty \Phi^2 \int_2^{r^*} g(\mathbf{r})d\mathbf{r}$  en fonction de la fraction volumique. D'après [Sierou & Brady 2002].

contribution particulière aux contraintes (1.3)

$$\sigma_p \sim \eta_0 \eta'_\infty \dot{\gamma} \Phi^2 \int_2^{r^*} g(\mathbf{r})d\mathbf{r} \quad (1.19)$$

où  $r^*$  est une coupure arbitraire qui sélectionne le pic de probabilité correspondant aux particules en contact. Le terme  $\Phi^2 \int_2^{r^*} g(\mathbf{r})d\mathbf{r}$  est une estimation du nombre de paires au contact, et  $\eta_0 \eta'_\infty \dot{\gamma}$  est la contribution d'une paire à la contrainte. Le terme  $\eta_0 \eta'_\infty$  est la viscosité de la suspension dont les particules sont distribuées de manière aléatoire. Cette viscosité *dynamique à haute fréquence*, obtenue numériquement ou expérimentalement [Sierou & Brady 2001] [Foss & Brady 2000] [Shikata & Pearson 1994] [Van der Werff & De Kruif 1989], est d'origine purement hydrodynamique et correspond à la viscosité d'une suspension de sphères dures distribuées aléatoirement (sans que l'écoulement ait affecté sa structure) [Sierou & Brady 2002].

Cette viscosité  $\eta'_\infty$  permet aux auteurs de définir l'*excess viscosity*  $\Delta\eta = \eta_r - \eta'_\infty$  qui mesure l'impact de la microstructure sur la viscosité d'une suspension. Ils montrent que  $\Delta\eta$  suit la même loi d'échelle que  $\sigma_p$  définie ci-dessus (fig. 1.14), ce qui leur permet de conclure que la contribution principale aux contraintes dans la suspension semble bien provenir des paires au contact.

## 1.4 Régimes transitoires des suspensions concentrées

La première manifestation de l'asymétrie *amont-aval* de la microstructure d'une suspension concentrée a été observée à travers un régime transitoire se développant après une

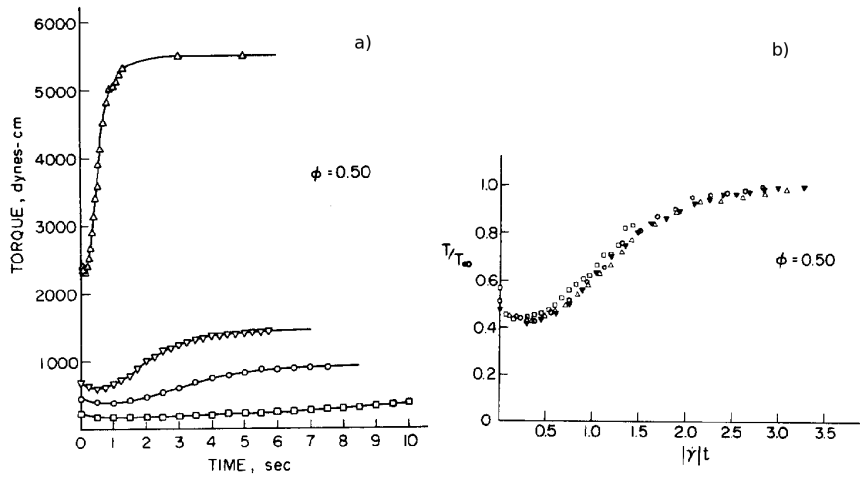


FIG. 1.15 – a) Couple mesuré sur un viscosimètre de Couette après inversion du sens de cisaillement. b) Couple normalisé en fonction de la déformation. Suspension de fraction volumique 0.5 de sphères de polystyrène de diamètre 40 – 50  $\mu\text{m}$  dans un mélange d’huile silicone. ( $\square$ )  $\dot{\gamma} = 0.15 \text{ s}^{-1}$ . ( $\circ$ )  $\dot{\gamma} = 0.38 \text{ s}^{-1}$ . ( $\nabla$ )  $\dot{\gamma} = 0.60 \text{ s}^{-1}$ . ( $\triangle$ )  $\dot{\gamma} = 2.4 \text{ s}^{-1}$ . D’après [Gadala-Maria & Acrivos 1980]

inversion de sens de cisaillement [Gadala-Maria & Acrivos 1980]. Après avoir appliqué un cisaillement à une suspension concentrée de sphères dures non-browniennes, Gadala-Maria et Acrivos inversent le sens de l’écoulement et observent une réponse transitoire correspondant à une baisse rapide de la viscosité, suivie d’une augmentation vers la même valeur de plateau que dans le sens initial (fig. 1.15-a). Ils observent que ce régime transitoire dépend du taux de cisaillement appliqué, mais qu’en traçant les courbes en fonction de la déformation du milieu, on obtient une courbe maîtresse dépendant de la fraction volumique uniquement (fig. 1.15-b). Les auteurs interprètent cette observation comme la manifestation d’une organisation spatiale des particules induite par l’écoulement. Au moment de l’inversion de sens de cisaillement, ces axes s’inversent *instantanément*, et les particules transitent vers la microstructure miroir pendant une déformation qui dépend de la fraction volumique.

Narumi *et al.* (2002) observent le même type de régime transitoire dépendant de la déformation, à la fois pour la viscosité mais aussi pour la force normale exercée par la suspension sur le plateau supérieur d’une géométrie plan-plan. Ils observent notamment une annulation de cette force normale au moment de l’inversion. À l’aide d’une géométrie de type annulaire dans laquelle le taux de cisaillement est à peu près constant, Kolli *et al.* (2002) mesurent que peu après l’inversion, la force normale prend en fait une valeur faiblement négative avant de croître vers la valeur de plateau (fig. 1.16). L’annulation de la force normale se produit pour une déformation à peu près identique à celle pour laquelle

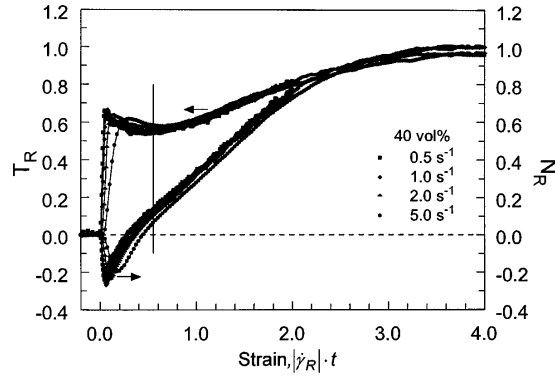


FIG. 1.16 – Couple et force normale normalisés par leur valeur au plateau en fonction de la déformation moyenne. Mesures réalisées dans un anneau plan-plan sur une suspension de 40% de sphères de diamètres  $38 - 75 \mu\text{m}$  dans du polyéthylène glycol. La ligne verticale correspond à la déformation pour laquelle le couple est minimal. D’après [Kolli et al. 2002].

la viscosité atteint sa valeur minimale. Pour les auteurs, la valeur de la force normale au moment de l’inversion est d’origine purement hydrodynamique, et la différence avec la valeur de plateau leur permet de conclure que la contribution principale aux contraintes normales, dans une suspension de fraction volumique 0.40, provient des interactions de contact entre particules [Kolli et al. 2002]. Notons, que l’ensemble des résultats expérimentaux présents dans la littérature semblent montrer une discontinuité de la viscosité de cisaillement au moment de l’inversion.

Ces régimes transitoires ont aussi été observés numériquement par Bricker et Butler (2007) sur une monocouche de particules. Leurs résultats sont qualitativement identiques à ceux observés expérimentalement (fig. 1.17). Les contraintes normales et tangentielles varient sur des déformations caractéristiques identiques. Enfin, à la différence de ce qui est rapporté dans les études expérimentales citées plus haut, la contrainte de cisaillement semble varier continument.

La fig. 1.18 présente les fonctions de distribution de paires radiales pour différentes déformations après l’inversion de cisaillement pour une suspension de fraction surfacique 0.60 [Bricker & Butler 2007]. Ce résultat confirme l’hypothèse de Gadala-Maria et Acrivos (1980). Les microstructures pleinement développées dans un sens et dans l’autre ( $\gamma = 0.0$  et  $\gamma = 6.0$ ) sont bien symétriques l’une de l’autre par rapport à la direction du gradient de vitesse. Une microstructure au plateau de viscosité correspond à un excès de particules dans le quadrant de compression et un défaut de particules dans le quadrant de dilatation.

Pendant le régime transitoire, pour une déformation correspondant à celle pour laquelle la viscosité est minimale ( $\gamma = 1$ ), la fonction de distribution de paires radiale au contact (i.e. calculée pour  $2.000 < r/a < 2.001$ ) est pratiquement nulle quelque-soit  $\theta$ . Cette mesure

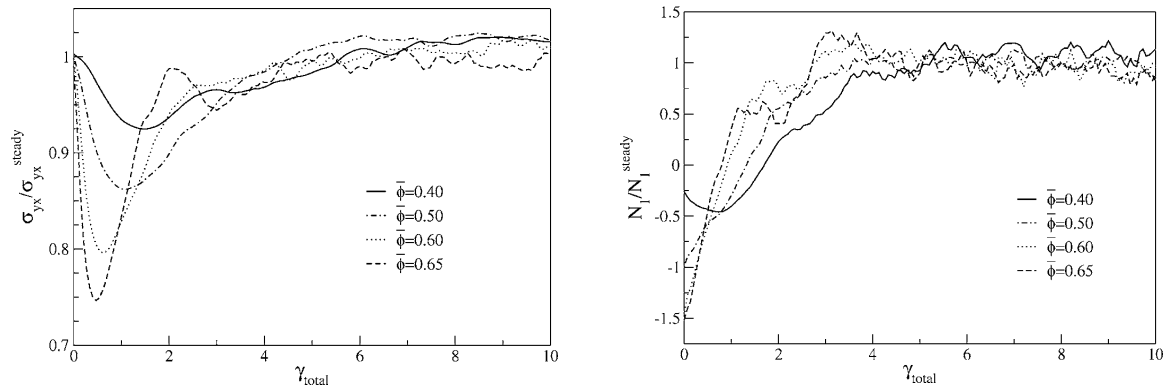


FIG. 1.17 – *Gauche* : contrainte de cisaillement en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. *Droite* : première différence de contrainte normale après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Résultats numériques pour une monocouche de particules.  $\bar{\Phi}$  : fraction surfacique. D'après [Bricker & Butler 2007].

confirme, qu'à cette déformation, les particules se sont éloignées les unes des autres, *relâchant* alors les contraintes de contact entre elles. Dans cette configuration, où les particules sont loin les unes des autres, la dissipation visqueuse est plus faible, et la viscosité passe par son minimum.

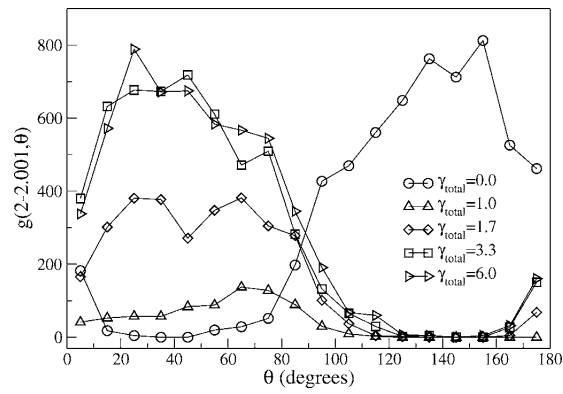


FIG. 1.18 – Fonction de distribution radiale ( $2.000 < r/a < 2.001$ ) d'une suspension de fraction surfacique 0.60 pour différentes déformations après une inversion de cisaillement.  $\gamma_{total} = 0$  définit le moment de l'inversion. Quadrant de compression :  $0^\circ < \theta < 90^\circ$ .  $\gamma = 1$  correspond environ à la déformation pour laquelle la viscosité est minimale. D'après [Bricker & Butler 2007].

# Rhéologie locale par PIV : dispositif expérimental

---

Ce chapitre<sup>1</sup> décrit l'ensemble des protocoles nécessaires à la mesure des champs de vitesse dans des suspensions concentrées. Les expériences sont faites dans l'entrefer large d'une géométrie de Couette cylindrique mise en rotation par un rhéomètre à couple imposé. Les mesures rhéologiques, couple  $\Gamma$  et vitesse de rotation  $\Omega$ , sont réalisées simultanément à des mesures microscopiques de vitesse des particules solides de la suspension obtenues par une technique de vélocimétrie par imagerie de particules (PIV).

La détermination du champ de vitesse par PIV impose que la suspension soit transparente. Ceci est réalisé en adaptant les indices optiques des phases liquide et solide du matériau. Une nappe laser plane peut ainsi éclairer la suspension en volume. Une faible concentration de particules solides marquées par un fluorochrome joue le rôle de traceurs et est alors suivie par une caméra placée sous la cellule d'écoulement elle-même transparente.

La mesure des positions successives des traceurs permet de déduire le profil de vitesse locale des particules solides dans l'entrefer  $V(r)$  ainsi que le taux de cisaillement local  $\dot{\gamma}(r)$ .

La connaissance simultanée de  $\dot{\gamma}(r)$  et de  $\Gamma$  permet de déduire la viscosité locale de la suspension  $\eta(r)$ .

La section §2.1 décrit la caractérisation et la préparation des suspensions concentrées dont les particules et le liquide ont la même densité et le même indice de réfraction. Le dispositif expérimental permettant la visualisation des particules en volume est décrit en §2.2. L'analyse des images et le traitement numérique nécessaires à l'obtention des mesures locales par PIV sont abordés dans la partie §2.3. La validation de l'ensemble du protocole sur un fluide newtonien est détaillée en §2.4.

## 2.1 Suspension concentrée isoindice et isodense

Les suspensions étudiées sont composées de sphères de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) monodisperses immergées dans une huile minérale newtonienne.

---

1. L'ensemble des points abordés dans cette partie a fait l'objet d'une publication [Blanc *et al.* 2011c].

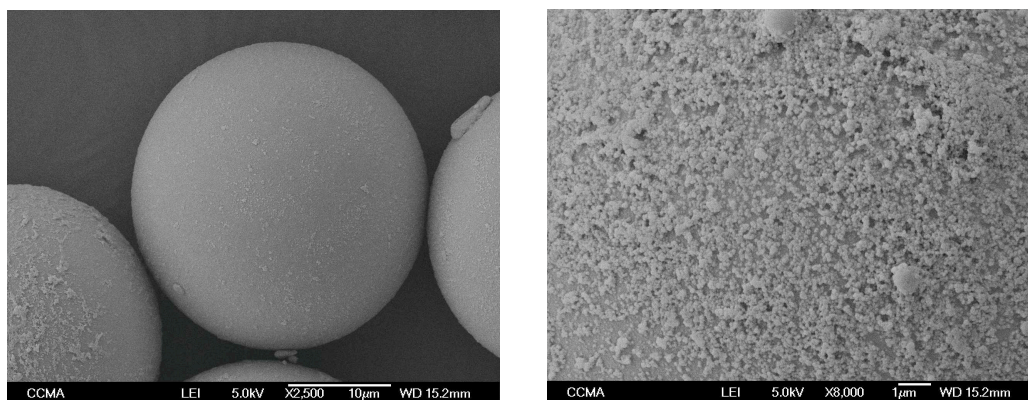


FIG. 2.1 – Gauche : Particule CA30 vierge. Droite : Particule CA30 vierge (détail)

### 2.1.1 Phase solide

Les sphères de PMMA (notées CA30) sont issues d'un lot distribué par la société Microbeads. Une analyse granulométrique du lot (Mastersizer 2000, Malvern) permet de mesurer le diamètre moyen des sphères et leur polydispersité,  $2a = 31\mu\text{m} \pm 4\mu\text{m}$ .

Leur densité est estimée par sédimentation. Une masse donnée de CA30 est dispersée dans différents mélanges eau-glycérine de densité croissante. Par approximation successive on obtient une densité de 1.178 pour laquelle on n'observe pas de sédimentation ni de crémage sur une durée de plusieurs jours.

En microscopie électronique, les particules présentent une surface rugueuse dont la rugosité peut être grossièrement estimée autour de  $1\mu\text{m}$  comme le montre la figure 2.1.

En microscopie optique en transmission, aucune inclusion d'air n'est décelable dans les particules. L'indice optique est ainsi quasiment homogène dans les billes. Aucune mesure directe de l'indice n'ayant été réalisée nous supposons  $n_{CA30} = n_{PMMA} = 1.49$  [Cariou *et al.* 1986].

### 2.1.2 Marquage des particules

Les marqueurs nécessaires aux mesures de PIV sont des particules de CA30 marquées avec un fluorochrome (Nile Blue A) de longueur d'onde d'absorption 635 nm et dont le spectre de fluorescence est centré en 665 nm. Le protocole de marquage est inspiré de la référence [Lenoble *et al.* 2005]. Une quantité de CA30 est introduite dans une solution d'éthanol saturée en Nile Blue A. Le mélange est mis sous agitation et chauffé entre 40°C et 50°C pendant deux heures. Les particules sont récupérées par filtration, rincées abondamment à l'éthanol, séchées à l'étuve puis tamisées à  $40\mu\text{m}$  pour dissocier les agglomérats. On obtient alors une poudre homogène de couleur mauve. Des photos en microscopie électronique ne montrent pas de changement significatif de l'état de surface des particules pendant

l'opération.

### 2.1.3 Phase liquide

Le fluide suspendant est un mélange de plusieurs huiles minérales développé par la société Cargille (liquide d'immersion de référence 11295101160) élaboré pour avoir un indice et une densité proches de ceux du PMMA. Le fournisseur donne à 25°C et  $\lambda = 633nm$ ,  $n_f = 1.4900 \pm 5.10^{-4}$  et  $d_f = 1.19$ . Une étude rhéométrique en Couette cylindrique à entrefer étroit permet de contrôler son caractère newtonien et de mesurer sa viscosité à 34°C, qui sera la température de travail au cours des mesures de PIV,  $\eta_f = 1.03 \pm 0.01$  Pa.s.

### 2.1.4 Préparation des suspensions

Une masse de particules de PMMA, dont une partie est marquée avec un fluorochrome<sup>2</sup> est pesée sur une balance de sensibilité  $10^{-5}g$  (PRECISA 180A) directement dans le cylindre externe de la géométrie d'écoulement (cf. §2.2.1). Une masse d'huile minérale Cargille est ensuite versée sur la phase solide. Une fine spatule permet le mélange des deux phases jusqu'à obtention d'une pâte homogène. Le calcul des fractions volumiques est fait en supposant l'égalité des densités des deux phases,  $\Phi = \frac{m_{CA30}}{m_{CA30} + m_{Cargille}}$ .

Pendant le mélange, des bulles d'air sont piégées dans la pâte lui donnant un aspect blanchâtre. Pour les extraire de la suspension, on place celle-ci dans une étuve à vide pendant le temps nécessaire à son dégazage complet (entre 30 minutes et plusieurs heures en fonction de la fraction volumique).

Une fois l'opération de dégazage terminée, la géométrie est fixée sur le plan de référence du rhéomètre à l'aide de quatre mords (cf. §2.2.1). Le cylindre interne est alors descendu dans la suspension.

### 2.1.5 Adaptation de l'indice

Une fois le dégazage de la suspension terminé, l'indice des deux phases étant proche, la suspension présente une faible turbidité. Cependant la diffusion encore trop importante rend impossible une mesure de PIV en volume. Une plus grande transparence est obtenue par un contrôle de la température de la suspension. En effet pour une longueur d'onde donnée, l'indice des deux phases peut être accordé par un ajustement précis de la température [Christiansen 1884].

La figure 2.2 montre la transmittance à travers 10 mm d'une suspension contenant 50% de particules CA30 non colorées dans de l'huile Cargille obtenue avec un spectrophotomètre Varian Cary 500. Pour la longueur d'onde  $\lambda = 635nm$ , la température optimale est 34°C.

<sup>2</sup> La quantité de particules marquées étant un paramètre important pour la qualité de la mesure en PIV, ce point est étudié au §2.3.2



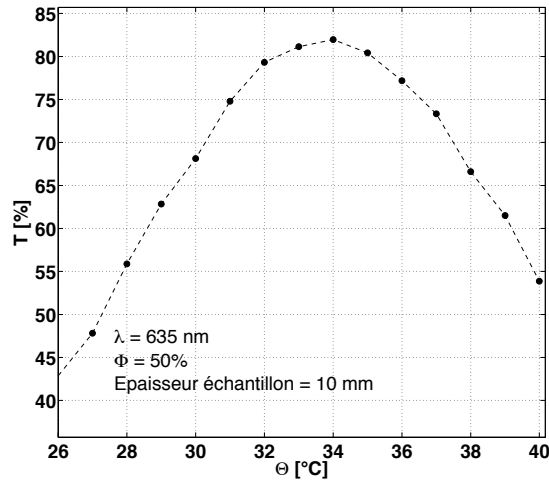


FIG. 2.2 – Transmittance d'une suspension de CA30 dans le Cargille  $n=1.49$  de fraction volumique  $\Phi = 50\%$ . Épaisseur de l'échantillon 10mm.  $\lambda = 635\text{nm}$

Pour bien contrôler cette température, l'ensemble du dispositif expérimental est placé dans une enceinte thermostatée (cf. §2.2.3). Il est alors possible de réaliser des mesures de PIV jusqu'à une profondeur de 25 mm dans la suspension. Au delà, la baisse du contraste ne permet plus le suivi des marqueurs.

### 2.1.6 Stabilité chimique de la suspension

Pour vérifier si une interaction chimique existe entre les phases liquide et solide, qui aurait pour conséquence de détériorer les particules, les propriétés viscoélastiques d'une suspension de fraction volumique  $\Phi=0.50$  sont étudiées à 45 jours d'intervalle. Les mesures sont réalisées à l'aide d'une géométrie torsionnelle plan-plan. La figure 2.3 montre l'évolution du module de perte  $G''$ , du module élastique  $G'$  et de l'angle de perte  $\delta$  de la suspension à deux dates différentes. On remarque un comportement sensiblement identique entre ces deux dates, ce qui semble indiquer qu'aucune évolution chimique entre les deux phases n'a eu lieu. De plus comme le montre la figure 2.4, la surface d'une particule de CA30 immergée pendant plus d'un an dans l'huile suspendante Cargille ne semble pas avoir été altérée.

### 2.1.7 Stabilité des propriétés physiques de la suspension

Des mesures de masse de suspensions à plusieurs semaines d'intervalles dans un environnement confiné à 34°C (cf. section 2.2.2) montre une variation relative de masse inférieure à 0.1 %. Le fluide suspendant peut ainsi être considéré comme non-volatile sur des durées d'expérience de plusieurs jours. Ainsi, la proportion du mélange des huiles minérales le

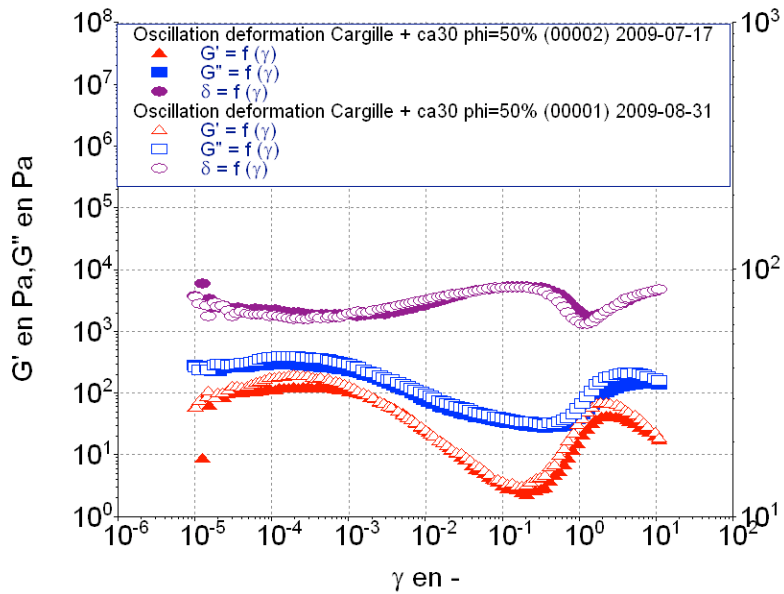


FIG. 2.3 – Évolution des modules élastique  $G'$ , de perte  $G''$  et de l'angle de perte  $\delta$  d'une suspension de fraction volumique  $\Phi=0.5$  en fonction de l'amplitude de déformation du rotor (la fréquence est fixée à 1 Hz). Abscisse : amplitude de déformation. Les deux mesures sont réalisées à 45 jours d'intervalle. symboles pleins : mesure plus ancienne - symboles ouverts : mesure plus récente

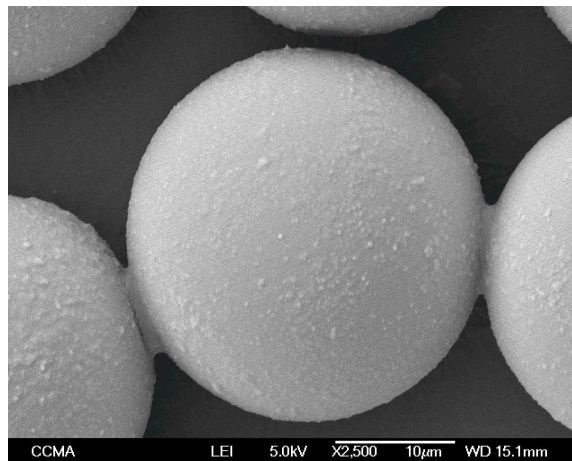


FIG. 2.4 – Particule CA30 immergée pendant plus d'un an dans le fluide suspensif Cargille.

composant ne variant pas, on peut supposer que sa densité et son indice optique restent inchangés. Cette propriété est fondamentale pour la reproductibilité des mesures, car elle assure une excellente stabilité de la transparence de la suspension.

## 2.2 Dispositif expérimental

### 2.2.1 Cellule d'écoulement

L'écoulement des suspensions est réalisé dans une géométrie de Couette cylindrique (figure 2.5) montée sur un rhéomètre à contrainte imposée MARS II (Thermo Fisher). Le rotor a un diamètre  $2R_i = 28mm$  et le stator un diamètre  $2R_e = 48mm$ . L'entrefer  $e$  est de 10 mm ( $\sim 300a$ ). La hauteur des cylindres est 60 mm. La partie externe du stator est polie et redressée de manière à former une fenêtre d'entrée plane et rectangulaire pour la nappe laser. L'ensemble de la géométrie est réalisé en PMMA pour limiter la réfraction à la surface de séparation cylindre/suspension.

La suspension est préparée directement dans le cylindre externe qui est fixé sur le plan de référence du rhéomètre à l'aide de quatre mords. L'axe de rotation du rotor n'étant pas parfaitement confondu avec son axe de symétrie, on mesure par palpeur un faux rond de l'ordre de  $50\mu m$  sur un tour.

Une fois la suspension préparée et dégazée, le cylindre interne est descendu lentement à 1 mm du fond du cylindre externe. Cette configuration, pour laquelle le taux de cisaillement au fond est important, permet de limiter la migration sous le rotor observée dans les écoulements de Couette cylindrique [Leighton & Acrivos 1987].

En contrepartie, on s'attend à ce que le couple exercé par la suspension cisailée sous le rotor contribue fortement au couple total. Pour s'en convaincre calculons un ordre de grandeur du couple exercé par un fluide newtonien de viscosité  $\eta$  dans la cellule d'écoulement. Notons  $L$  la hauteur de liquide cisailé dans le Couette cylindrique et  $h$  la distance entre le fond des deux cylindres. Dans notre configuration  $L \simeq 50mm$  et  $h = 1mm$ . Soient  $\Gamma_{lateral}$  le couple exercé par le liquide sur la partie latérale du cylindre interne,  $\Gamma_{fond}$  le couple exercé par le liquide dans l'entrefer  $h$  et  $\Omega$  la vitesse de rotation du rotor. En faisant l'hypothèse que le couple latéral est identique au couple exercé par un fluide entre des cylindres infinis et que le couple exercé par le fond est identique au couple d'une géométrie plan-plan<sup>3</sup>, on

---

3. Une étude expérimentale détaillée prenant en compte l'aspect fini de la géométrie est menée dans la section 2.3.6.

peut écrire [Guyon *et al.* 2001] [Couarraze & Grossiord 1983] :

$$\Gamma_{lateral} = 4\pi\eta\Omega L \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \quad (2.1)$$

$$\Gamma_{fond} = \frac{\pi}{2}\eta\Omega \frac{R_i^4}{h} \quad (2.2)$$

et calculer la contribution du fond sur le couple total,

$$\frac{\Gamma_{fond}}{\Gamma_{lateral} + \Gamma_{fond}} = \frac{1}{1 + \frac{\Gamma_{lateral}}{\Gamma_{fond}}} = \frac{1}{1 + \frac{8R_e^2 L h}{R_i^2 (R_e^2 - R_i^2)}} \simeq 0.25 \quad (2.3)$$

Pour diminuer l'impact de ce cisaillement entre le fond des deux cylindres sur le couple imposé, on favorise le glissement à la fois sur le fond du stator par polissage, et sur le fond du rotor en creusant une cavité de 3 mm de profondeur pour retenir une bulle d'air sous le cylindre. A l'inverse, la partie latérale des deux cylindres est rendue rugueuse en la frottant avec du papier de verre pour limiter le glissement sur ces parois.

### 2.2.2 Dispositif optique

Le dispositif expérimental permet d'enregistrer des images successives des positions des marqueurs de la suspension dans un plan de coupe perpendiculaire à l'axe de rotation du rotor. La figure 2.6 offre une vue schématique de l'ensemble.

Une nappe laser plane (Lasiris TEC Laser, Stockeryale, 635 nm, 35mW) d'environ 100  $\mu m$  d'épaisseur et orthogonale à l'axe des cylindres, éclaire la suspension transparente dans l'entrefer de la géométrie disposée sur le rhéomètre. Une caméra (PLB 741 U, Pixelink, 1280x1024  $pix^2$ ) enregistre les positions successives des traceurs fluorescents. La caméra et le laser sont déclenchés simultanément par un générateur externe (33120A, Hewlett-Packard). Le laser et la caméra sont solidaires d'un arceau libre de se déplacer verticalement. Il est donc possible d'explorer le déplacement des particules à n'importe quelle hauteur dans la suspension.

Le laser excite la fluorescence des traceurs qui émettent de la lumière de manière isotrope à une longueur d'onde centrée en 650 nm. Un filtre passe-haut (FEL0650, Thorlabs) placé devant l'objectif de la caméra (MC3-03X, Opto-Engineering) sélectionne la lumière émise par fluorescence. L'éventuelle lumière diffusée ou réfractée étant filtrée, seuls les traceurs apparaissent sur l'image. Des microcontrôles (Newport) en rotation et translation permettent le réglage de l'horizontalité de la nappe laser ainsi que le positionnement fin de la caméra.

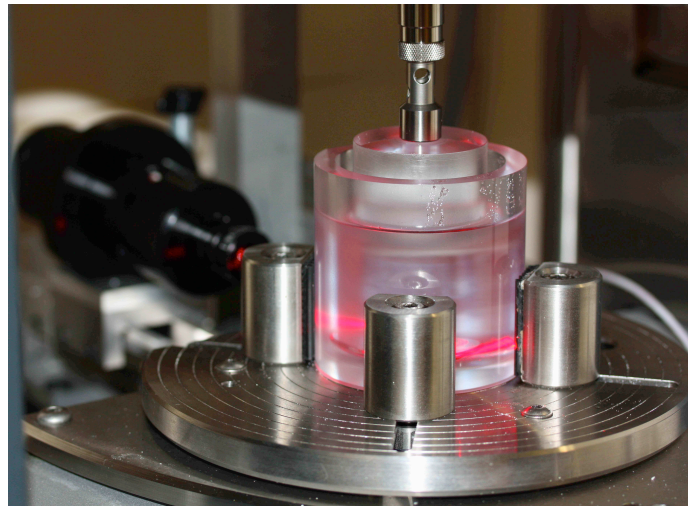
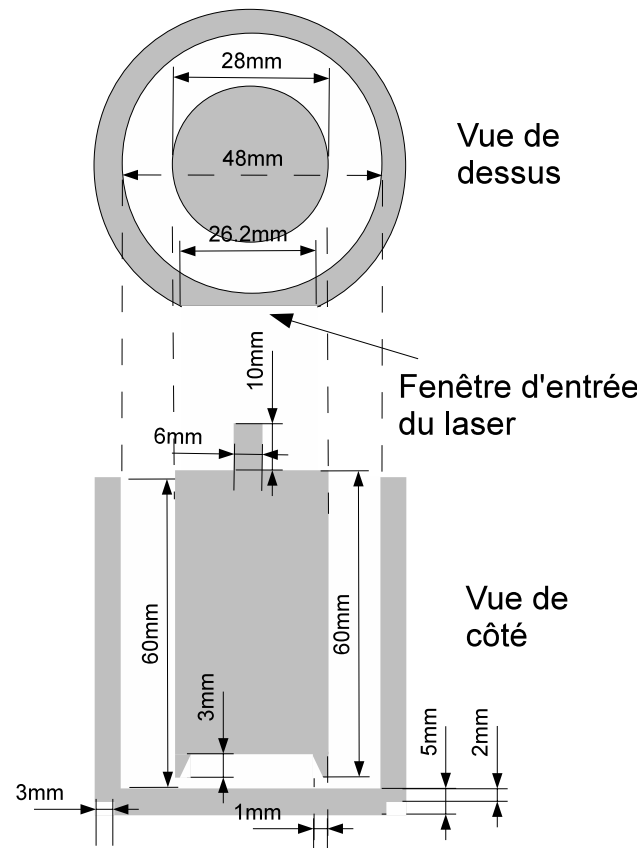
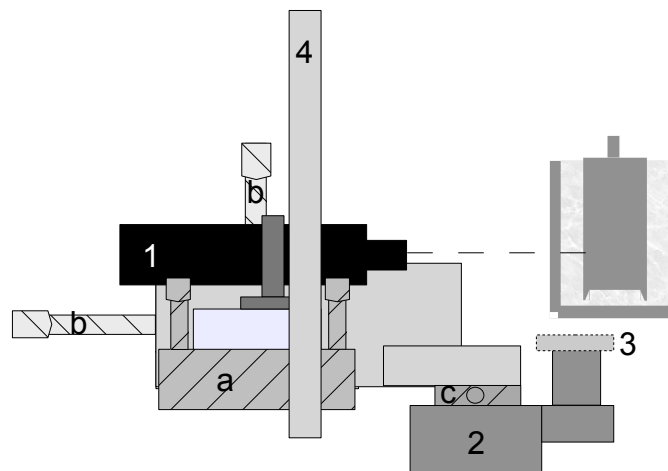
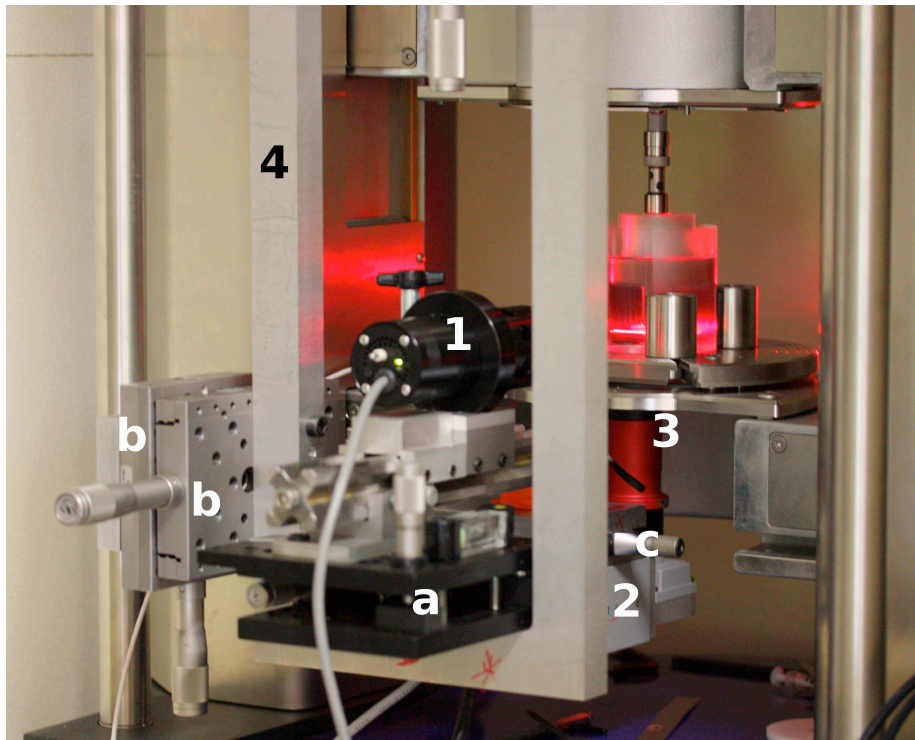


FIG. 2.5 – Haut : plan de la cellule d'écoulement. Bas : photographie de la géométrie disposée sur le plan de référence du rhéomètre entre les quatre mors de maintien. On aperçoit la bulle piégée sous le rotor et le laser au fond.



- |   |  |
|---|--|
| <b>1</b> – Laser plan                       | <b>a</b> – Microcontrôle en rotation et inclinaison permettant le réglage de l'horizontalité du plan laser |
| <b>2</b> – Caméra                           | <b>b &amp; c</b> – Microcontrôles linéaires pilotant la position de la caméra                              |
| <b>3</b> – Filtre passe haut                |  |
| <b>4</b> – Monture de translation verticale |  |

FIG. 2.6 – Haut : photographie du dispositif expérimental. Bas : schéma. L'échelle n'est pas respectée. La légende est identique sur les deux figures.

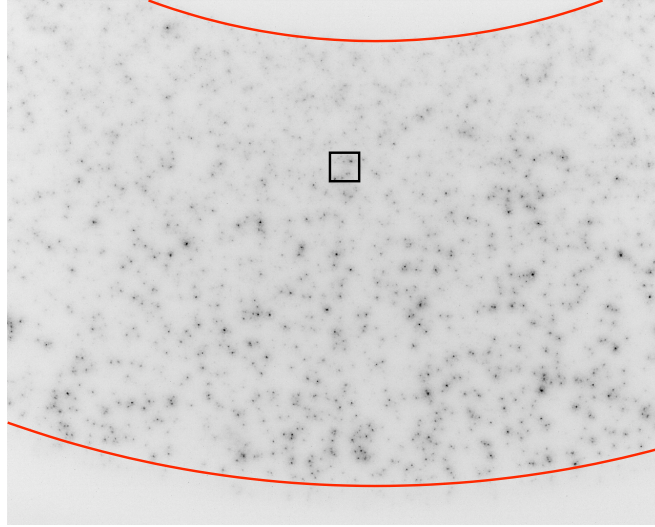


FIG. 2.7 – Image type (contraste inversé) obtenue 14 mm au dessus du fond du cylindre dans une suspension à  $\Phi = 0.4$ . Les deux bords des cylindres sont ajustés par deux cercles. Rectangle : fenêtre d’interrogation.

### 2.2.3 Contrôle de la température

Pour contrôler la transparence de la suspension, l’ensemble du dispositif est placé dans une enceinte en bois tapissée de 2 cm de polyuréthane. La régulation thermique est réalisée par un radiateur relié à un bain thermostaté (Polystat CC2, Huber) contrôlé par un thermocouple (PT100) placé au voisinage de la cellule d’écoulement. Un ventilateur homogénéise la température fixée à  $34 \pm 0.1^\circ\text{C}$ . Cette valeur est stable pendant toute la durée des expériences.

La figure 2.7 montre une image type obtenue dans une suspension à  $\Phi = 0.4$ , 14 mm au dessus du fond de la géométrie. La fluorescence de chaque marqueur produit une tache d’environ 2 pixels entourée d’un halo diffus de l’ordre d’une dizaine de pixels de diamètre.

## 2.3 Mesures locales

### 2.3.1 Technique de PIV

La technique de vélocimétrie par imagerie de particules (*Particle Image Velocimetry*, PIV), permet d’accéder au champ de vitesse instantané d’un écoulement  $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$  dans le plan de la nappe laser. Les positions de marqueurs dispersés dans un fluide sont enregistrées à intervalle de temps régulier  $\Delta t$ . La connaissance du déplacement des marqueurs  $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$

permet de calculer la vitesse locale à partir de la relation :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}, t) \simeq \frac{\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)}{\Delta t} \quad (2.4)$$

en supposant  $\Delta t$  suffisamment *petit*. Notons que dans des écoulements pour lesquelles  $Re \ll 1$ , des particules de taille  $a \sim 10 \mu m$  et de densité proche de celle du fluide suspendant sont classiquement considérées comme *esclaves*, i.e. la vitesse d'une particule est identique à la vitesse du fluide [Wiederseiner 2010].

Le champ de déplacement est obtenu par une technique de corrélation— soit par auto-corrélation d'une même image ayant subi une double exposition— soit par corrélation croisée (*cross-correlation*) de deux images successives. C'est cette dernière technique que j'ai utilisée dans ce travail. Pour un article de revue complet et une description détaillée des différents processus de PIV nous renverrons le lecteur à la référence [Adrian 1991].

Le traitement numérique des images est réalisé à l'aide du logiciel libre DPIVsoft<sup>4</sup> développé pour l'environnement *Matlab*. La présente section introduit les concepts généraux du processus de corrélation croisée [Meunier & Leweke 2003] [*DPIVsoft User Guide*, disponible à l'adresse internet ci-dessous], [Adrian 1991].

On note  $I_i(\mathbf{r})$  et  $I_f(\mathbf{r})$  l'intensité des images acquises aux instants  $t_i$  et  $t_f = t_i + \Delta t$ . Les images de dimension  $1280 \times 1024 px^2$  sont maillées en sous-ensembles  $\mathcal{B}$  de dimension  $B \times B$  appelées *boîtes de corrélation* ou *fenêtres d'interrogation* (fig. 2.8). Chaque image est découpée en  $N_x \times N_y$  boîtes de corrélation ( $N \sim 30 - 60$ ). La fonction de corrélation est calculée en chacune des mailles  $(i, j)$  par la relation :

$$C_{ij}(\mathbf{r}) = \frac{\int_{\mathcal{B}} (I_f(\mathbf{s}) - \bar{I}_f) (I_i(\mathbf{s} + \mathbf{r}) - \bar{I}_i) ds}{(\sigma_i \sigma_f)^{\frac{1}{2}}} \quad (2.5)$$

avec

$$\bar{I} = \frac{1}{B^2} \int_{\mathcal{B}} I(\mathbf{s}) ds \quad \sigma = \left[ \frac{1}{B^2} \int_{\mathcal{B}} (I(\mathbf{s}) - \bar{I})^2 ds \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.6)$$

En considérant le déplacement d'une seule particule de diamètre  $2a$  dans la fenêtre d'interrogation, la fonction de corrélation se limite à un pic de largeur  $4a$  situé en une position correspondant au déplacement de cette particule. Dans le cas de plusieurs particules,  $C_{ij}$  possède des pics secondaires correspondant aux corrélation inter-particulaires et un pic principal correspondant au déplacement moyen des particules.  $\mathbf{u}$  est donc donné par le maximum principal de  $C_{ij}$ . Le processus est répété en chacun des nœuds pour obtenir le champ de déplacement sur l'ensemble de l'image. La figure 2.9 montre une fonction de corrélation type obtenue en un nœud d'une image d'une suspension de fraction volumique 0.4. La qualité de la mesure dépend à la fois de la hauteur relative du pic principal par rapport aux pics

---

4. <https://www.irphe.fr/~meunier/>



secondaires et de son faible étalement spatial. Trois critères sont habituellement retenus pour réaliser une *bonne* mesure de PIV :

- (a) La fenêtre d'interrogation doit contenir au moins 4 particules<sup>5</sup> :

$$N_{part} > 4 \quad (2.7)$$

- (b) La taille de la fenêtre doit être suffisante pour qu'un nombre limité de particules sortent de la fenêtre de corrélation. On choisit habituellement B tel que :

$$|\mathbf{u}|_{max} < B/3 \quad (2.8)$$

- (c) La fonction de corrélation moyenne est d'autant moins fine que la dispersion des vitesses est importante (Fig. 2.10). Pour limiter cet effet, le déplacement relatif de particules situées aux bords opposés de la fenêtre doit être inférieur à la taille des particules :

$$B \left| \frac{\Delta \mathbf{u}}{\Delta r} \right|_{max} < 2a \quad (2.9)$$

A la fin de la première étape de calcul, DPIVsoft en réalise une deuxième où la fenêtre d'interrogation est déplacée et déformée. La quantité de marqueurs est ainsi maintenue constante dans la fenêtre d'interrogation, réduisant les effets indésirables dus à la perte de particules. D'autre part, le déplacement est plus faible et plus homogène, ce qui affine la fonction de corrélation.

### 2.3.2 Résolutions spatiale et temporelle de l'expérience de PIV

Le critère (a) défini ci-dessus, fixe la quantité de traceurs nécessaire pour un champ de vision donné. Une quantité de 0.25% de marqueurs correspond expérimentalement à environ 5 particules dans une fenêtre de taille B=64 px. Cet ensemencement permet de plus une mesure à une altitude suffisamment haute pour s'affranchir de l'effet de bord. En effet, une quantité de traceurs supérieure augmenterait l'absorption de la lumière laser et dégraderait le contraste des images et la précision des mesures de vitesses.

Sachant que l'échelle des images est d'environ  $1000 \text{ px.cm}^{-1}$ , le critère (b) peut être réécrit en fonction de la vitesse de rotation du rotor  $\Omega$  (en tour par minute, notée *rpm* par la suite) et de la fréquence d'échantillonnage de la caméra  $f$  (en Hz) :

$$\frac{\Omega}{f} \simeq 10^{-1} \text{ rpm.Hz}^{-1} \quad (2.10)$$

---

5. Keane et Adrian [Keane & Adrian 1992] ont montré que pour  $N_{part} > 6$  la probabilité d'une bonne détection est supérieur à 95%.

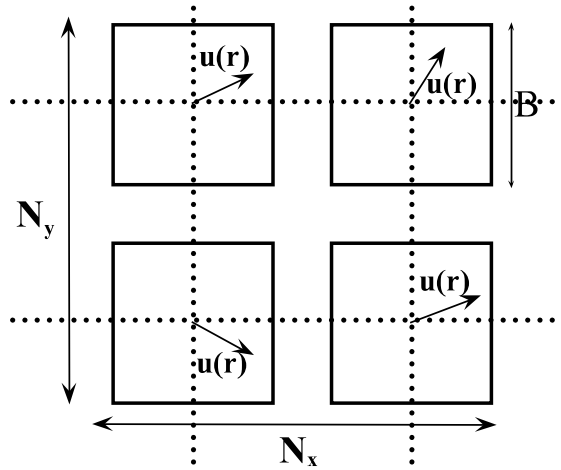


FIG. 2.8 – Définition des paramètres dans DPIVsoft (d'après [DPIVsoft User Guide]).  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  est le déplacement moyen dans une fenêtre de corrélation.

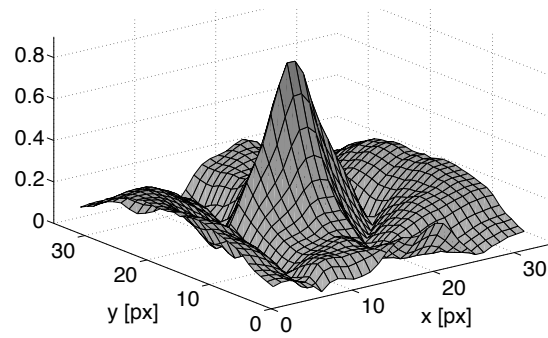


FIG. 2.9 – Fonction de corrélation type obtenue par DPIVsoft sur une image de suspension. Le décalage est mesuré par rapport au centre de la figure.

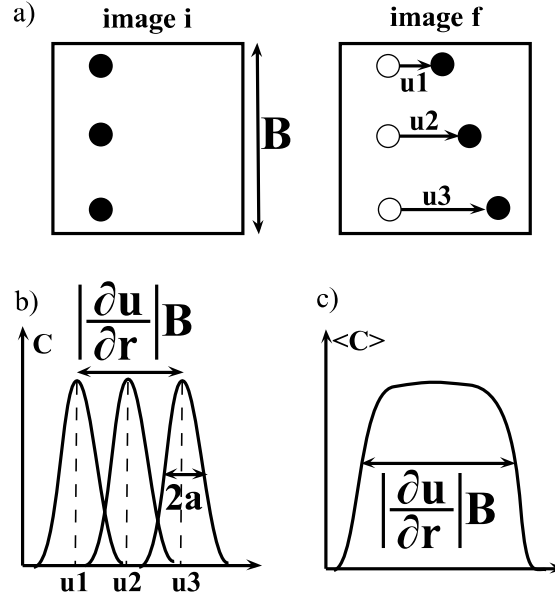


FIG. 2.10 – **a)** Déplacement des particules dans un gradient de vitesse. **b)** Fonction de corrélation associée à chacune des particules. **c)** Fonction de corrélation moyenne sur l'ensemble d'une fenêtre d'interrogation. Les corrélations interparticulaires faisant apparaître des pics secondaires n'ont pas été représentées. (D'après [Meunier & Leweke 2003])

La fréquence maximale de la caméra de 10Hz fixe à la fois la résolution temporelle à 100 ms mais aussi la vitesse de rotation la plus grande pour réaliser une mesure correcte du champ de vitesse. L'équation 2.10 permet de déduire

$$\Omega_{max} = 1 \text{ rpm} \quad (2.11)$$

Le taux de cisaillement maximum accessible est donc d'environ

$$\dot{\gamma}_{max} \sim \frac{\Omega_{max} \cdot R_i}{e} \sim 14 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} \quad (2.12)$$

Les tailles de particules étant de l'ordre de 2 px, le critère (c) est bien vérifié à ce taux de cisaillement

$$B = 64 \text{ px} < \frac{2a \cdot f_{max}}{\dot{\gamma}} \sim 143 \text{ px} \quad (2.13)$$

La deuxième étape de calcul dans DPIVsoft permet de diminuer la taille de la boîte de corrélation [DPIVsoft User Guide]; on obtient ainsi un champ de vitesse Cartésien de  $60 \times 30$ , la résolution radiale retenue est donc de l'ordre de  $200 \mu\text{m}$  et la résolution sur le déplacement est de l'ordre de la taille des particules. Remarquons que pour des gains élevés d'amplification du signal du capteur CCD de la caméra, il apparaît des pixels erratiques

dans l'image. On mesure alors une fréquence trop importante de particules à déplacement nul. Pour corriger cet effet, il suffit de soustraire à la prise de vue principale, l'image obtenue sans nappe laser où apparaissent les pixels fixes. Notons ici que le mouvement brownien est parfaitement négligeable dans l'évaluation de la résolution du déplacement du dispositif de PIV. En effet, la diffusion des traceurs entre deux images consécutives est :

$$\sqrt{\frac{kT}{6\pi\eta a} \frac{1}{f_{max}}} \approx 10^{-9} m \approx 10^{-4} px \ll 1 px \quad (2.14)$$

### 2.3.3 Profil de vitesse

En ajustant deux cercles sur les bords des cylindres de la cellule d'écoulement (cf. figure 2.7), on peut obtenir le centre de la géométrie et l'échelle,  $ech$ , des images (typiquement  $100 px.mm^{-1}$ ). La connaissance du champ de déplacement  $\mathbf{u}_{ij}$  (en px) entre deux images séparées d'un intervalle de temps  $\Delta t$  et de  $ech$ , permet d'accéder au champ de vitesse (en  $mm.s^{-1}$ ) :

$$\mathbf{v}_{ij}(x_{ij}, y_{ij}, t) = ech \times \frac{\mathbf{u}_{ij}}{\Delta t}, \text{ avec : } \begin{cases} 0 < i \leq 60, x_{ij} = N_x \times i \\ 0 < j \leq 30, y_{ij} = N_y \times j \end{cases} \quad (2.15)$$

en notant  $i$  et  $j$  les indices du maillage de l'image.

A l'aide du centre de la géométrie, on peut faire la transformation du champ en coordonnées polaires,

$$\mathbf{v}_{ij}(r_{ij}, \theta_{ij}, t) = v_{rij}(r_{ij}, \theta_{ij}, t)\mathbf{e}_{r_{ij}} + v_{\theta ij}(r_{ij}, \theta_{ij}, t)\mathbf{e}_{\theta_{ij}} \quad (2.16)$$

L'angle azimutal  $\theta_{ij}$  est défini par rapport à un diamètre du cylindre externe parallèle au bord de l'image (cf. figure 2.11).  $r_{ij}$  est le rayon reliant le centre des cercles au nœud  $(i, j)$ .

On appelle profil de vitesse, la moyenne des vitesses sur une couronne d'épaisseur  $\Delta R \sim \frac{1}{50}e$  limitée par les bords latéraux de l'image (Fig. 2.11),

$$\mathbf{V}(r_n, t) = V_r(r_n, t)\mathbf{e}_r + V_\theta(r_n, t)\mathbf{e}_\theta \quad (2.17)$$

avec

$$V_r = \langle \mathbf{v}_{rij}(r_{ij}, \theta_{ij}, t) \rangle_{R_n \leq r_{ij} < R_n + \Delta R} \quad (2.18)$$

$$V_\theta = \langle \mathbf{v}_{\theta ij}(r_{ij}, \theta_{ij}, t) \rangle_{R_n \leq r_{ij} < R_n + \Delta R} \quad (2.19)$$

où  $R_n = R_i + n\Delta R$  et  $r_n = R_n + \frac{\Delta R}{2}$ . Dans la suite on prendra la convention d'écriture  $r = r_n$ .

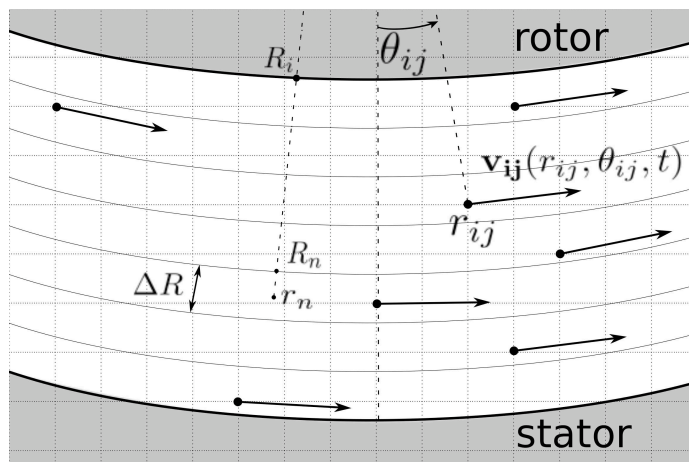


FIG. 2.11 – Nomenclature des quantités nécessaires au calcul d'un profil de vitesse.  $i, j$  : coordonnées d'un noeud.  $r_{ij}, \theta_{ij}$  : coordonnées polaires.  $r_n$  : position radiale d'une couronne d'intégration d'épaisseur  $\Delta R$

Pour un écoulement de Couette cylindrique orthoradial, on s'attend à un effet d'échantillonnage temporel sur le rapport  $v_\theta/v_r$  de l'ordre de  $\Delta\theta/2$  (fig. 2.12). En tenant compte des ordres de grandeurs de la vitesse de rotation et de la fréquence d'échantillonnage définies au §2.3.2, on obtient  $v_\theta/v_r = O(10^{-2})$ . Expérimentalement  $v_\theta/v_r$  est toujours inférieur à  $10^{-2}$  ce qui valide le positionnement des cercles étalons.

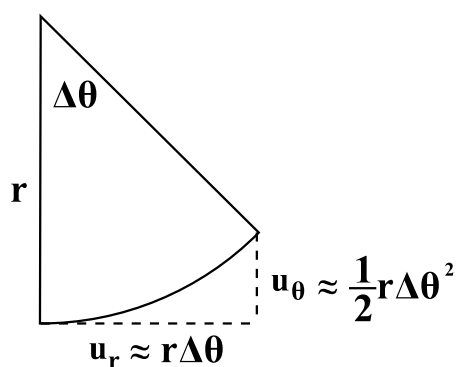


FIG. 2.12 – Effet de l'échantillonnage temporel sur le rapport entre les déplacements radiaux et orthoradiaux dans l'écoulement de Couette cylindrique.

### 2.3.4 Taux de cisaillement

En géométrie de Couette cylindrique, le taux de cisaillement local est :

$$\dot{\gamma}(r, t) = r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{V_{\theta}(r, t)}{r} \right) \quad (2.20)$$

Pour éviter les fluctuations numériques de la dérivée spatiale de la vitesse orthoradiale, on différencie une fonction d'ajustement du type :

$$V_{fit} = V_{newtonien} + f(r) = ar + \frac{b}{r} + \frac{c}{r^2} \quad (2.21)$$

où  $a$ ,  $b$ , et  $c$  sont des paramètres libres. Dans [Shapley *et al.* 2004], les auteurs fragmentent l'ajustement en trois zones sur l'ensemble du gap. J'ai vérifié (§3.2) qu'un ajustement sur tout l'entrefer ne conduit pas à une erreur significative. On peut donc calculer numériquement le taux de déformation par la relation,

$$\dot{\gamma}(r, t) = -\frac{2b}{r^2} - \frac{3c}{r^3} \quad (2.22)$$

### 2.3.5 Déformation

La déformation locale  $\gamma(r, t)$  est déduite du taux de cisaillement local par la relation :

$$\gamma(r, t) = \int_0^t \dot{\gamma}(r, t') dt' \quad (2.23)$$

### 2.3.6 Contrainte de cisaillement

Dans l'hypothèse de cylindres infinis, le champ de contrainte de cisaillement  $\sigma_{r\theta}(r, t)$  peut être déduit de la mesure du couple exercé par le rotor sur le fluide en écoulement dans l'entrefer  $\Gamma_{\infty}(t)$ ,

$$\sigma_{r\theta}(r, t) = \frac{\Gamma_{\infty}(t)}{2\pi r^2 L} \quad (2.24)$$

où  $L$  est la hauteur de fluide cisailé.

L'entrefer (10 mm) étant du même ordre de grandeur que  $L$  (60 mm), on s'attend à un effet de bord important. Pour le quantifier, on fait varier la hauteur de fluide suspendant Cargille dans la géométrie et on mesure le couple  $\Gamma_{total}$  et la vitesse de rotation  $\Omega$  du rotor. Les résultats sont reportés sur la figure 2.13. La dépendance linéaire pour chaque hauteur traduit bien le comportement newtonien du fluide suspendant. Cette dépendance linéaire se voit aussi sur la figure 2.14 où  $\Gamma_{total}/\Omega$  est tracé en fonction de  $L$ . Dans cette représentation, l'ensemble des droites se réduit à une seule et on peut écrire,

$$\frac{\Gamma_{total}}{\Omega} = a_1 L + a_2 \quad (2.25)$$

avec  $a_1 = 0.397 \mu Nm.rpm^{-1}.mm^{-1}$  et  $a_2 = 4.44 \mu Nm.rpm^{-1}$ . Le couple total est la somme de deux termes,

$$\Gamma_{total} = a_1 L \Omega + a_2 \Omega \quad (2.26)$$

$$= \Gamma_{\infty} + \Gamma_{fond} \quad (2.27)$$

$\Gamma_{\infty}$  est le couple visqueux exercé lorsque  $L \rightarrow \infty$  et  $\Gamma_{fond}$  est la perturbation due à la hauteur finie du dispositif. En particulier, on peut exprimer la contribution de ce couple sur le couple total :

$$\frac{\Gamma_{fond}}{\Gamma_{total}} = \frac{1}{1 + \frac{\Gamma_{\infty}}{\Gamma_{fond}}} \quad (2.28)$$

$$= \frac{1}{1 + \frac{a_1 L}{a_2}} \quad (2.29)$$

Pour une expérience typique ( $L \sim 50 mm$ )  $\Gamma_{fond}/\Gamma_{total} = 18.2\%$ . Cette contribution non négligeable est soustraite du couple total pour calculer la contrainte de cisaillement à partir de la relation 2.24.

Remarquons que la valeur de  $a_1$  nous permet de déduire la viscosité du fluide suspendant. En effet, dans un écoulement newtonien de Couette cylindrique infini, le couple et la vitesse de rotation sont reliés par la relation,

$$\frac{\Gamma_{\infty}}{\Omega L} = \frac{4\pi R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \eta_0 \quad (2.30)$$

On trouve  $\eta_0 = 1.02 Pa.s$  qui est une valeur proche de  $1.03 Pa.s$  mesurée en entrefer étroit (§2.1.3).

### 2.3.7 Viscosité

La viscosité locale se déduit de la contrainte et du taux de cisaillement local,

$$\eta(r, t) = \frac{\sigma_{r\theta}(r, t)}{\dot{\gamma}(r, t)} \quad (2.31)$$

### 2.3.8 Fraction volumique

L'ensemencement en marqueurs fluorescents n'est pas suffisant pour réaliser une mesure directe de la fraction volumique par une mesure d'intensité lumineuse. Comme dans d'autres études ([Shapley *et al.* 2002],[Shapley *et al.* 2004]), le profil de fraction volumique est déduit de la viscosité locale à partir de la relation entre viscosité et fraction volumique.

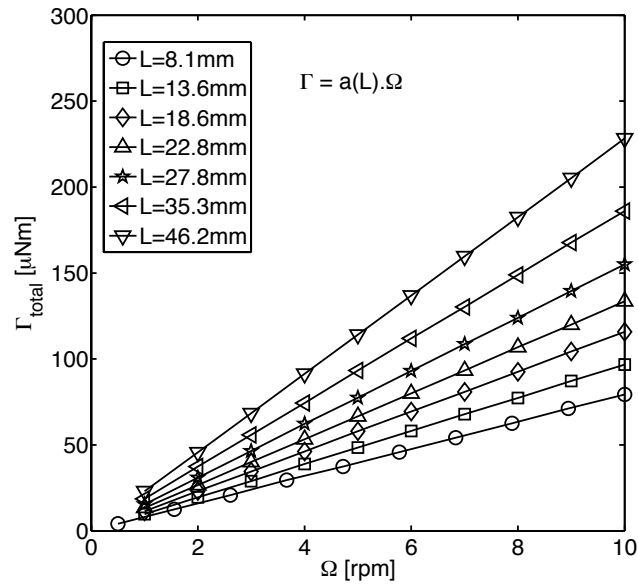


FIG. 2.13 – Couple total mesuré en fonction de la vitesse de rotation du rotor pour différentes hauteurs de fluide suspendant Cargille. La linéarité traduit le caractère newtonien du fluide suspendant.

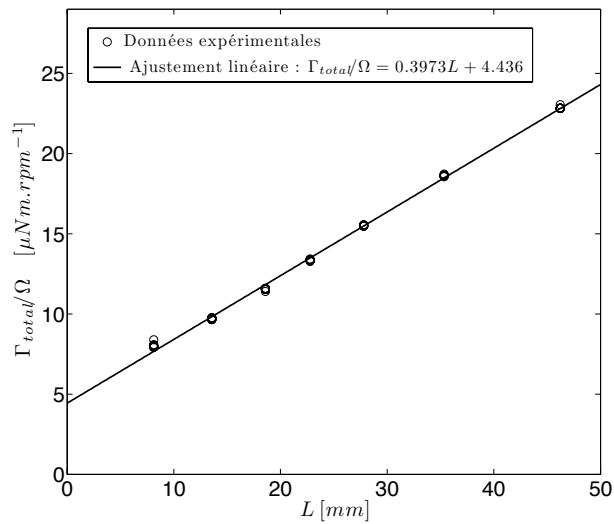


FIG. 2.14 – Rapport du couple total exercé par le rotor et de sa vitesse de rotation en fonction de la hauteur de fluide suspendant Cargille cisailé.



En supposant une dépendance de la forme [Maron & Pierce 1956],

$$\frac{\eta(r, t)}{\eta_0} = \left(1 - \frac{\Phi(r, t)}{\Phi_{max}}\right)^{-n} \quad (2.32)$$

on peut calculer  $\Phi(r, t)$ <sup>6</sup>,

$$\frac{\Phi(r, t)}{\Phi_{max}} = 1 - \left(\frac{\eta(r, t)}{\eta_0}\right)^{-\frac{1}{n}} \quad (2.33)$$

## 2.4 Validation du protocole sur un fluide newtonien

### 2.4.1 Profil de vitesse

La validation du protocole expérimental est menée sur le fluide suspendant newtonien Cargille mélangé à 0.25% de particules CA30 marquées. Les profils de vitesse présentés sont le résultat d'une moyenne sur 80 images ( $t \sim 10 s$ ) et sont normalisés par la vitesse de rotation du rotor. On note  $z$  la hauteur de mesure du profil et  $h = L+1 mm$ , la hauteur totale de liquide dans la géométrie d'écoulement. L'ensemble des résultats est comparé au profil de vitesse newtonien calculé dans l'hypothèse de cylindres infinis et donné par la relation :

$$\frac{V_{newtonien}}{\Omega R_i} = \frac{R_i}{R_e^2 - R_i^2} \left( \frac{R_e^2}{r} - r \right) \quad (2.34)$$

Le taux de cisaillement correspondant est :

$$|\dot{\gamma}_{newtonien}| = 2\Omega \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \quad (2.35)$$

La figure 2.15 montre les profils mesurés en fonction de  $z$ . Les données expérimentales (symboles) sont comparées à des données numériques (lignes pleines) obtenues par calcul numérique en éléments finis (COMSOL). Le profil newtonien est tracé en pointillés. Données numériques et expérimentales sont en bon accord et convergent vers le profil newtonien après  $z=10 mm$ . Assez naturellement, la portée de l'influence du fond est du même ordre que la largeur de l'entrefer. Au delà de 10 mm la différence entre les profils mesurés et le profil newtonien est inférieure à 4%.

### 2.4.2 Profil de viscosité

La figure 2.16 représente le profil de vitesse moyen normalisé mesuré à  $z=14mm$  ( $L=26.4mm$ ) ainsi qu'une fonction ajustée sur l'ensemble du gap. Cette fonction est dérivée pour calculer le profil de taux de cisaillement (eq. (2.22)). La figure 2.17 montre bien

6. Une étude détaillée de la mesure des paramètres  $n$  et  $\Phi_{max}$  est menée au §3.2.

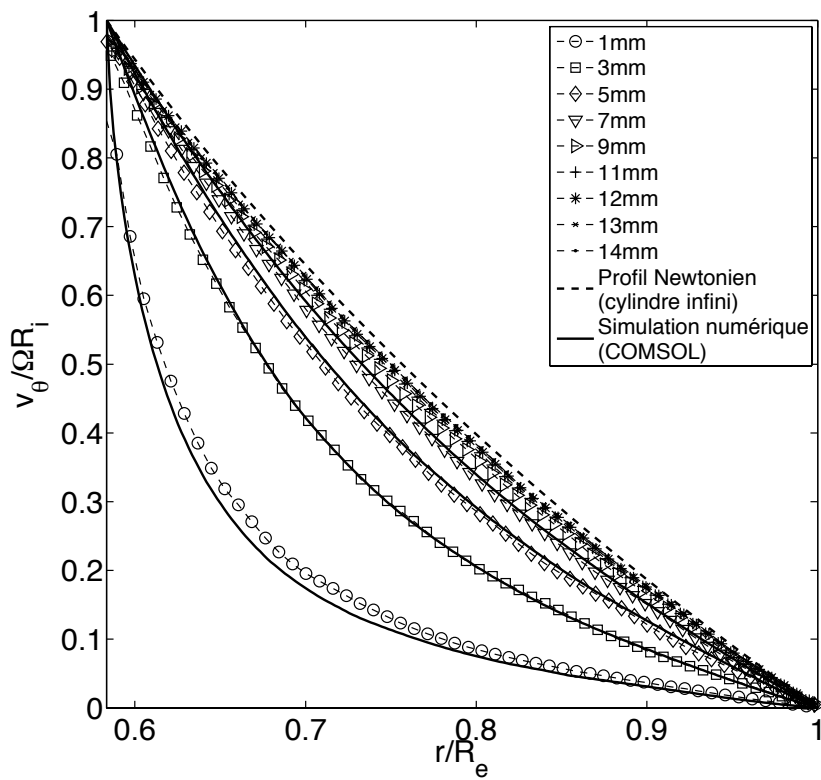


FIG. 2.15 – Profils de vitesse orthoradiale adimensionnée dans un fluide newtonien. Chaque profil résulte de la moyenne de 80 profils instantanés ( $\sim 10$  s). Les différents profils sont déterminés à des hauteurs différentes par rapport au fond de la cellule de Couette.  $\Omega \approx 0.4$  rpm. Symboles : données expérimentales. Lignes : données numériques (COMSOL). Ligne brisée : profil théorique newtonien.

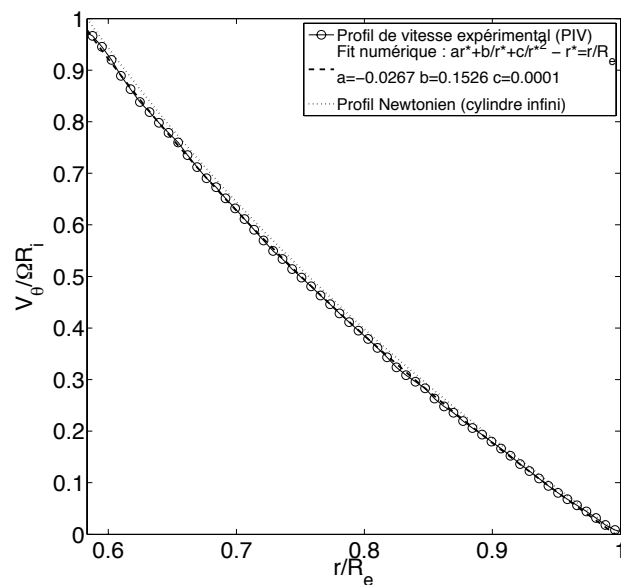


FIG. 2.16 – Profil de vitesse orthoradiale adimensionnée dans le fluide suspendant newtonien. Hauteur de liquide  $L=26.4$  mm. Altitude de mesure  $z=14$  mm. Comparaison avec un ajustement numérique et un profil théorique newtonien.

la correspondance entre le profil newtonien et expérimental du taux de cisaillement.

Le profil de viscosité déduit (eq. (2.31)) est représenté sur la figure 2.18. La viscosité est bien constante dans le gap et la valeur obtenue, 1.07 Pa.s, est bien en accord avec la mesure obtenue en rhéologie classique ( $\eta_0 = 1.03 \pm 0.01$  Pa.s en entrefer étroit et  $\eta_0 = 1.02$  Pa.s en entrefer large).

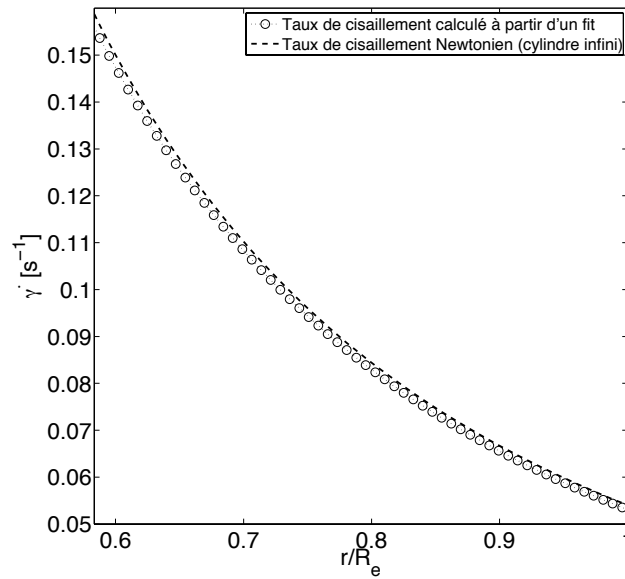


FIG. 2.17 – Taux de cisaillement déduit du fit sur le profil de vitesse. Comparaison avec un profil théorique newtonien.

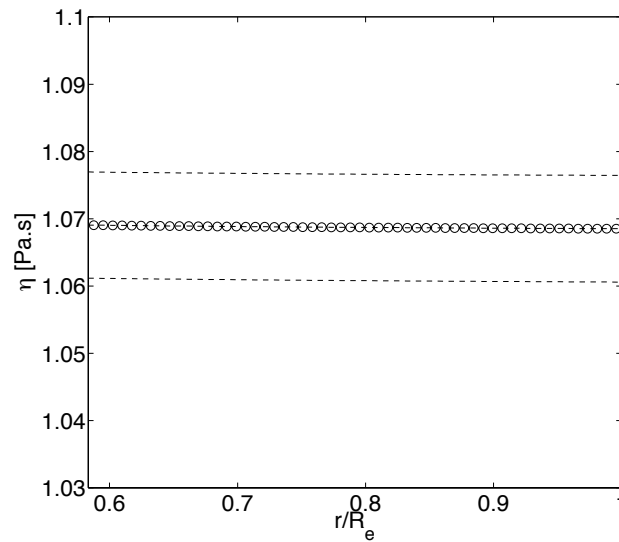


FIG. 2.18 – Profil de viscosité moyen dans le fluide suspendant newtonien. Les lignes brisées représentent l'écart-type sur 80 mesures. L'erreur est de l'ordre de 1%.



# Réponse transitoire locale des suspensions concentrées

---

## 3.1 Introduction

Les suspensions concentrées exhibent une large gamme de propriétés rhéologiques différentes : rhéoépaississement, rhéofluidification, apparition de contrainte seuil et de contraintes normales, développement de bandes de cisaillement, migration. Tous ces effets dépendent directement de la loi de comportement du fluide suspendant (newtonien, fluide à seuil, ...), des propriétés géométriques des particules (taille, polydispersité, forme) et des interactions qu'elles subissent dans le milieu porteur (effet brownien, interactions de van der Waals, électrostatiques ou stériques et rugosité de surface).

Malgré leur simplicité, les suspensions de sphères dures isodenses, monodisperses, non-colloïdales et non-browniennes dispersées dans un fluide newtonien possèdent des propriétés rhéologiques complexes. Lorsque dans les conditions  $Re \rightarrow 0$  et  $Pe \rightarrow \infty$ , elles sont soumises à un écoulement de cisaillement simple, la contrainte de cisaillement  $\sigma_{xy}$  est approximativement proportionnelle au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ ,  $\sigma_{xy} \approx \eta \dot{\gamma}$  [Stickel & Powell 2005]. Cette propriété quasi-newtonienne a été observée par des mesures locales en RMN par Ovarlez *et al.* (2006). Leurs résultats obtenus sur des suspensions très concentrées ont montré que malgré une contrainte seuil macroscopique, la relation constitutive locale est purement visqueuse et que la viscosité locale, définie comme la contrainte sur le taux de cisaillement local, dépend seulement de la fraction volumique et diverge en une concentration maximum  $\Phi^* \approx 0.6$ . Cependant, à la différence d'un liquide purement newtonien, les suspensions font apparaître des différences de contraintes normales,  $N_1 = \sigma_{xx} - \sigma_{yy}$  et  $N_2 = \sigma_{yy} - \sigma_{zz}$  qui suivent aussi une loi d'échelle visqueuse. Alors que dans les liquides polymériques, l'apparition de ces contraintes normales émerge de l'aptitude des macromolécules à se déformer dans l'écoulement, l'origine des contraintes normales dans les suspensions de sphères rigides est liée à une asymétrie de la distribution spatiale des particules [Stickel & Powell 2005]. On peut le comprendre en considérant l'interaction de deux sphères lisses dans un écoulement de cisaillement simple. La réversibilité des équations de Stokes entraîne la symétrie des lignes de vitesse par rapport au gradient de vitesse et donc la symétrie de la fonction de distribution de paires (*fore-aft symmetry*). Ces interactions de paires participent bien à l'augmentation de la contrainte de

cisaillement mais leurs contributions aux différences de contraintes normales s'annulent par symétrie par rapport au plan  $(\nabla v, \nabla \times \mathbf{v})$  [Batchelor & Green 1972b]. Une asymétrie de la microstructure (i.e une irréversibilité de l'écoulement) apparaît lorsque des interactions autres qu'hydrodynamiques existent entre les sphères. Elle est alors à l'origine de l'apparition de différences de contraintes normales dans la suspension [Brady & Morris 1997].

Par ailleurs, la microstructure influe sur la viscosité des suspensions et se manifeste clairement lors d'une inversion du sens de cisaillement. Par des mesures de rhéologie macroscopique, Gadala-Maria et Acrivos (1980) ont montré, qu'après l'inversion, la viscosité diminue, passe par un minimum puis augmente à nouveau jusqu'à une valeur de plateau. Ils ont mis en évidence que la réponse transitoire dépend uniquement de la déformation et que l'ensemble des données se superpose sur une courbe maîtresse (fig. 1.15). Kolli *et al.* (2002) et Narumi *et al.* (2002) ont mesuré qu'il en est de même pour les contraintes normales (fig. 3.18). Toutes ces observations sont bien compatibles avec l'établissement d'une microstructure asymétrique. En effet, après l'inversion de la contrainte de cisaillement, les axes de compression et de dilatation se voient inversés, la structure établie se brise alors et les particules se réarrangent dans une structure miroir.

Ce sont ces expériences de rhéologie macroscopique que nous proposons de revisiter en réalisant des mesures locales de la viscosité lors d'une inversion de cisaillement. En effet, réaliser des mesures rhéologiques macroscopiques précises sur des suspensions concentrées est une tâche difficile car des effets comme le glissement aux parois [Jana *et al.* 1995], l'apparition de bandes de cisaillement [Huang *et al.* 2005] ou la migration [Leighton & Acrivos 1987] [Chow *et al.* 1994] rendent les résultats peu reproductibles.

Nous avons choisi la PIV comme méthode d'étude locale. Cette technique, relativement facile à mettre en œuvre, offre la possibilité de mesurer l'ensemble du profil de vitesse dans un plan donné (contrairement à la LDV qui est une mesure ponctuelle) avec une résolution temporelle suffisamment importante pour capter correctement le comportement transitoire. Pour comparaison, la résolution temporelle est de l'ordre de 200 ms, alors qu'en RMN elle est de l'ordre de 2 s. Cependant, l'inconvénient majeur de la PIV par rapport à la RMN, est qu'elle ne nous permet pas d'accéder à une mesure précise de la concentration.

Dans ce chapitre<sup>1</sup>, après avoir caractérisé le comportement rhéologique stationnaire des suspensions, nous nous intéresserons aux réponses transitoires locales de la viscosité de suspensions isodenses, non-browniennes en régime visqueux. Les résultats locaux confirment les mesures macroscopiques de Gadala-Maria et Acrivos (1980). Juste après une inversion du sens de cisaillement, on observe une rapide diminution de la viscosité jusqu'à une valeur  $\eta_{min}$ , puis une augmentation jusqu'à une valeur de plateau  $\eta_{plateau}$ . En faisant varier la concentration de la phase solide ( $\Phi = 0.3 - 0.5$ ), il apparaît que  $\eta_{min}$  et  $\eta_{plateau}$  obéissent à des lois d'échelle différentes en fonction de la fraction volumique. En comparant nos résultats

1. Une partie des résultats présentés dans ce chapitre a fait l'objet d'une publication [Blanc *et al.* 2011b]

expérimentaux de la variation de  $\eta_{min}$  avec  $\Phi$ , avec un modèle théorique proposé par Mills et Snabre (2009) pour calculer la viscosité d'une suspension dont les particules n'interagissent qu'à travers des forces hydrodynamiques, et avec des résultats de simulations de Sierou et Brady (2001) de suspensions aléatoires, nous associons la viscosité minimale à celle d'une suspension dont la structure est à peu près isotrope. La valeur élevée du plateau de viscosité (comparée à celle du minimum) est quant à elle associée à la microstructure stationnaire induite par l'écoulement.

En suivant la description de Sierou et Brady (2002), on définit la viscosité structurale (*excess viscosity*)  $\eta_{struct} = \eta_{plateau} - \eta_{min}$  comme la contribution de la microstructure induite par l'écoulement à la viscosité. On montre que le rapport de la viscosité structurale sur la viscosité de plateau et que les différences de contraintes normales ( $\frac{N_1}{2} + N_2$ ) mesurées par Boyer *et al.* (2011) varient de manière identique avec la fraction volumique.

## 3.2 Comportement rhéologique stationnaire des suspensions

Dans cette section, nous montrons que le protocole de mesure de la viscosité locale défini au chapitre 2 permet d'étudier la rhéologie de suspensions concentrées. Le comportement rhéologique d'une suspension contenant 47% de particules est d'abord étudié en rhéométrie macroscopique. Nous montrons alors que la rhéologie locale donne des résultats en bon accord avec ces lois de comportement macroscopiques.

### 3.2.1 Conditions d'écoulement

L'ensemble de l'étude proposée dans ce chapitre porte sur des suspensions de concentrations variant de 0.3 à 0.5 de particules de CA30 dans l'huile Cargille. Les mesures de viscosité sont réalisées pour des taux de cisaillement compris entre  $10^{-2}$  et  $1 \text{ s}^{-1}$ . Le nombre de Péclet qui est le rapport de la convection sur la diffusion thermique est donc :

$$Pe = \frac{6\pi\eta_0 a^3 \dot{\gamma}}{kT} \sim 10^5 - 10^7 \quad (3.1)$$

le nombre de Reynolds particulaire est :

$$Re_p = \frac{\rho \dot{\gamma} a^2}{\eta_0} \sim 10^{-9} - 10^{-7} \quad (3.2)$$

et le nombre de Reynolds calculé sur l'entrefer est :

$$Re = \frac{\rho \dot{\gamma} e^2}{\eta_0} \sim 4.10^{-4} - 4.10^{-2} \quad (3.3)$$

Ainsi dans la limite  $Pe \gg 1$  et  $Re \ll 1$  les écoulements sont considérés non-inertiels et



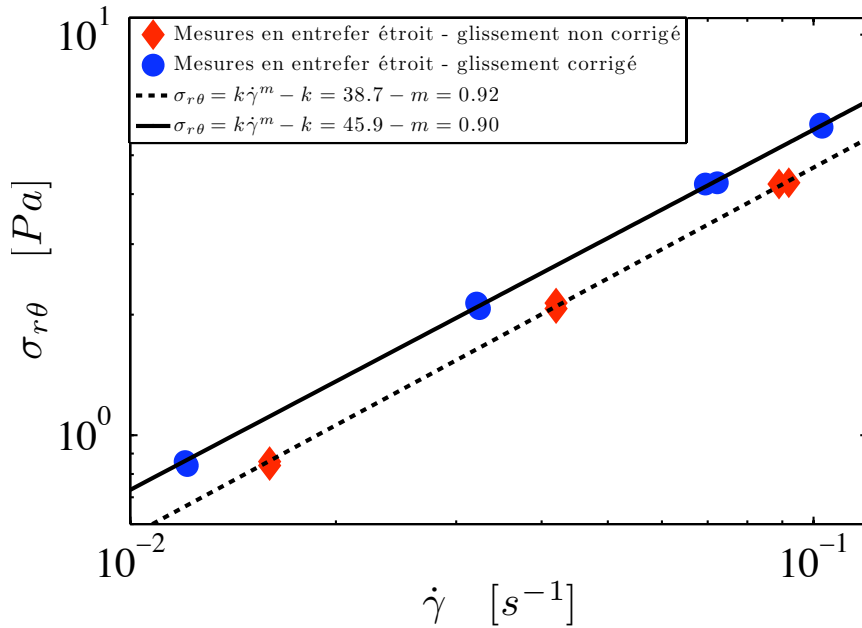


FIG. 3.1 – Courbe d'écoulement d'une suspension  $\Phi = 0.47$  obtenue en entrefer étroit.  $\blacklozenge$  : glissement non corrigé.  $\bullet$  : glissement corrigé. Lignes : fit en loi de puissance.

non-browniens.

### 3.2.2 Mesure de la loi de comportement en entrefer étroit

La loi de comportement est caractérisée par des mesures dans une cellule de Couette cylindrique (Z41Ti, Thermo Fischer) en entrefer étroit. Le rayon interne de la cellule est  $R_i = 20.71 \text{ mm}$ , l'entrefer est  $0.99 \text{ mm}$  et la hauteur  $55 \text{ mm}$ . Une suspension de particules CA30 de fraction volumique  $\Phi = 0.47$  est précisailée sur une déformation d'environ 365 à  $\dot{\gamma} \approx 10 \text{ s}^{-1}$ . La viscosité est mesurée en appliquant deux séries de quatre paliers de contrainte couvrant une décade de taux de cisaillement ( $2 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1} < \dot{\gamma} < 2 \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ ). La variation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement est présentée sur la figure 3.1. Chacun des points représente la valeur moyenne de l'état stationnaire atteint pour la contrainte considérée.

Ces mesures doivent être corrigées en tenant compte du glissement aux parois. En effet, le glissement induit un taux de cisaillement mesuré plus grand que le taux de cisaillement réel dans l'entrefer, et pour une contrainte donnée, la mesure de la viscosité est sous évaluée. Jana et al. [Jana *et al.* 1995] ont montré que la vitesse de glissement à la paroi est proportionnelle

au taux de cisaillement à cette paroi,

$$v_s = \frac{\eta_r}{q} \dot{\gamma}_{paroi} a \quad (3.4)$$

où  $a$  est le rayon des particules,  $\eta_r$  la viscosité réduite de la suspension et  $q$  une constante déterminée expérimentalement. Jana *et al.* trouvent  $q = 8$ . Une étude détaillée (cf. appendice A) montre que dans notre expérience  $q = 6.8$ . Par ajustement des données corrigées, on obtient la loi d'écoulement (fig. 3.1) :

$$\sigma_{r\theta} = k \times \dot{\gamma}^m \quad \text{avec} \quad \begin{cases} k = 45.9 \\ m = 0.90 \end{cases} \quad (3.5)$$

Ce comportement rhéofluidifiant classique est en accord avec des mesures de Gadala-Maria et Acrivos (1980), Zarraga *et al.* (2000) ou Narumi *et al.* (2005). Bien que souvent observée, la rhéofluidification n'est généralement pas expliquée. A ma connaissance, seuls Acrivos *et al.* (1994) ont proposé qu'elle provienne de la resuspension de particules de densité différente de celle du fluide suspendant. Cependant aucune sédimentation n'a jamais été observé dans les suspensions de particules de CA30 dans l'huile Cargille sur des durées équivalentes aux temps de mesure de la viscosité. Toutefois, il est possible que la surface des particules de CA30 possède une couche de polymère adsorbé (annexe B). Cette couche pourrait induire des interactions stériques et donc un léger comportement rhéofluidifiant identique à celui que l'on rencontre dans les suspensions colloïdales.

### 3.2.3 Caractérisation de l'influence du fond de la géométrie

De même que lors de la validation du protocole sur un fluide newtonien, l'influence du fond de la cellule d'écoulement est étudiée en mesurant les profils de vitesse en fonction de la hauteur  $z$  par rapport au fond. Comme dans le cas du fluide suspendant (§2.4), les résultats présentés sur la figure 3.2 indiquent qu'au delà d'une hauteur de l'ordre de la taille de l'entrefer, l'effet de bord est négligeable. Toutes les mesures en PIV présentées dans la suite de ce manuscrit sont réalisées à une hauteur de 14 mm.

### 3.2.4 Influence de la rhéofluidification sur les profils de vitesse en entrefer large

Dans l'entrefer large de la cellule de Couette cylindrique, le taux de cisaillement n'est pas constant. Pour un fluide newtonien, le rapport entre le taux de cisaillement au rotor et au stator est :

$$\frac{\dot{\gamma}_i}{\dot{\gamma}_e} = \left( \frac{R_e}{R_i} \right)^2 \sim 3 \quad (3.6)$$

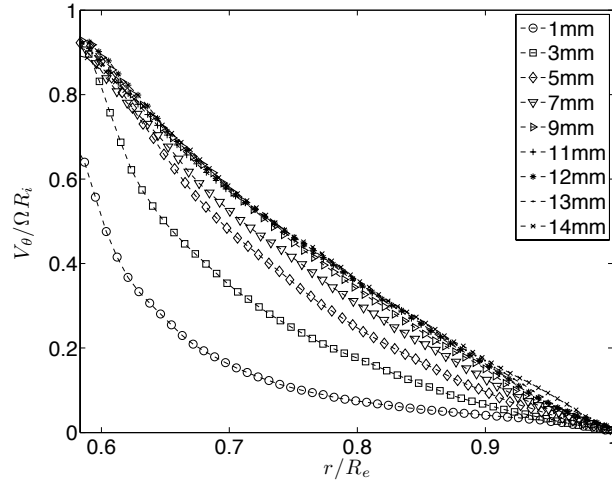


FIG. 3.2 – Profils de vitesse normalisée dans une suspension  $\Phi = 0.47$ .  $L = 50 \text{ mm}$ .  $\Omega = 0.5 \text{ rpm}$ . Les valeurs en légende indiquent les hauteurs de mesures par rapport au fond. Pour discussion sur le glissement apparent cf. §3.3.1.

On s'attend donc à une variation relative de viscosité dans le gap de l'ordre de  $1 - 3^{(1-0.9)} \sim 10\%$ , et donc à un profil de vitesse différent d'un profil newtonien. De plus, la loi de comportement (3.5) étant une loi de puissance, la vitesse normalisée doit être indépendante de la contrainte de cisaillement et adopter la forme :

$$\frac{V_\theta}{\Omega \cdot R_i} = \frac{\left(\frac{R_e}{r}\right)^{\frac{2-m}{m}} - \frac{r}{R_e}}{\left(\frac{R_e}{R_i}\right)^{\frac{2-m}{m}} - \frac{R_i}{R_e}} \quad (3.7)$$

Notons que la relation précédente est valable si la suspension est homogène dans l'entrefer. Or une suspension cisailée voit ses particules migrer vers les zones de faibles taux de cisaillement [Leighton & Acrivos 1987] la rendant hétérogène. Aucun vrai consensus n'ayant encore été établi sur les déformations caractéristiques de migration des suspensions concentrées [Phillips *et al.* 1992] [Morris & Boulay 1999] [Ovarlez *et al.* 2006], les mesures sont réalisées sans pré-cisaillement et sur des faibles déformations. La figure 3.3 montre la vitesse locale en différentes positions dans le gap pour une suspension de fraction volumique 0.47. Après une décroissance rapide sur une déformation caractéristique de l'ordre de  $1^2$ , les vitesses

2. Ce transitoire observé par Gadala-Maria & Acrivos [Gadala-Maria & Acrivos 1980] et attribué à l'établissement d'une microstructure induite par l'écoulement est longuement étudié dans la suite de ce manuscrit.

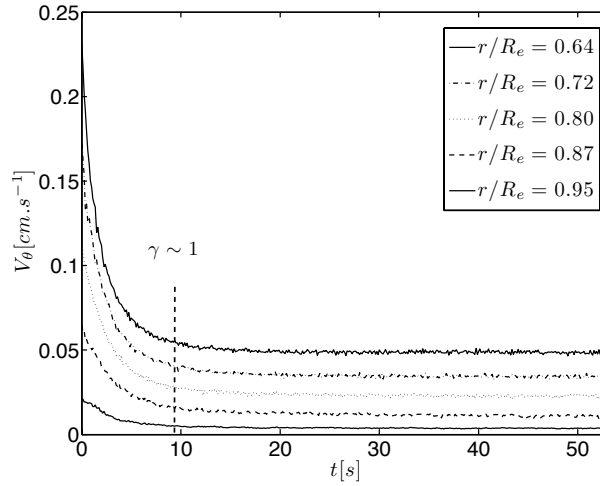


FIG. 3.3 – Évolution temporelle de la vitesse en différents points du gap pour une suspension  $\Phi = 0.47$ .  $t=0$  : début de l'application du couple. Hauteur de suspension : 45 mm. vitesse de rotation du rotor au plateau :  $\Omega = 4.4.10^{-2} \text{ rad.s}^{-1}$ . Couple imposé :  $\Gamma_{total} = 500 \mu\text{Nm}$

locales atteignent un plateau constant sur la durée de l'expérience<sup>3</sup>. Les mesures présentées sur les figures 3.4 et 3.5 sont réalisées sur des déformations totales inférieures à 4 tours de rotor. Chacun des profils est une moyenne de 100 profils instantanés (environ 12 s au total) enregistrés sur le plateau.

La figure 3.4 montre que les profils de vitesses normalisées pour différents couples appliqués ( $\Gamma_{total} = 100, 250, 500, 700 \mu\text{Nm}$ )<sup>4</sup> se superposent sur une courbe maîtresse. La figure 3.5 reprend le profil pour le couple imposé  $\Gamma_{total} = 500 \mu\text{Nm}$  et le compare à un profil visqueux déduit de la relation (3.7) avec  $m = 0.9$ . L'écart relatif entre ces deux profils est inférieur à 4%.

Les profils de viscosité sont présentés sur la figure 3.6. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec le profil déduit des relations (2.22) et (3.7) avec  $m = 0.9$ . L'écart relatif est de l'ordre de 5%.

L'ensemble de ces résultats valident à la fois le caractère faiblement rhéofluidifiant et l'homogénéité de la suspension sur la déformation cumulée de l'expérience de l'ordre de 35.

3. Une étude sur une plus grande déformation a montré une variation relative de la vitesse du rotor de l'ordre de 1% par tour.

4. Les contraintes au centre du gap sont comprises entre 1 et 7 Pa, correspondant au domaine de validité de la loi de comportement (3.5).

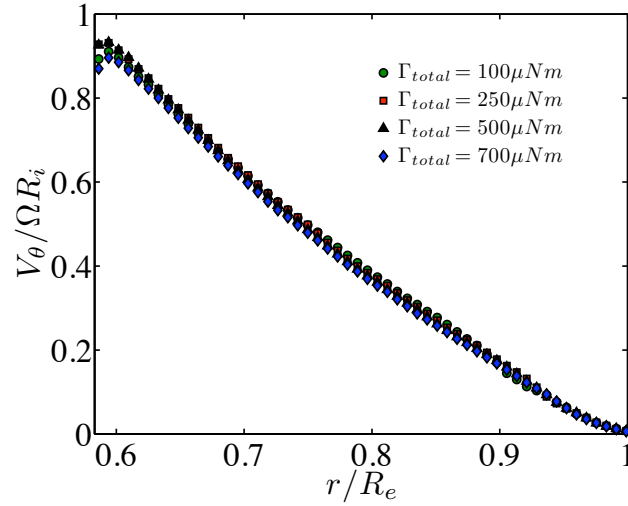


FIG. 3.4 – Profils de vitesse normalisée obtenus pour quatre couples. Les profils sont obtenus en moyennant 100 profils instantanés (environ 12 s) sur le plateau. L'écart relatif entre les profils est inférieur à 4%.  $\Phi = 0.47$ .

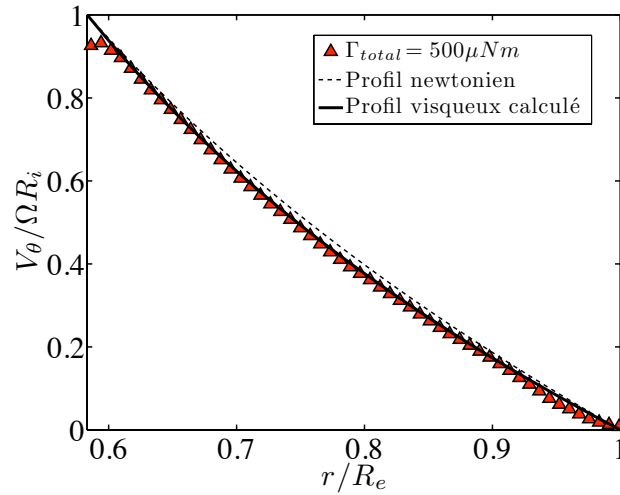


FIG. 3.5 – Profils de vitesse normalisée expérimental, newtonien théorique et déduit de la relation (3.7). Ce dernier profil est calculé avec  $m=0.9$ . L'écart relatif entre le profil expérimental et déduit de (3.7) est inférieur à 4%.  $\Phi = 0.47$ .

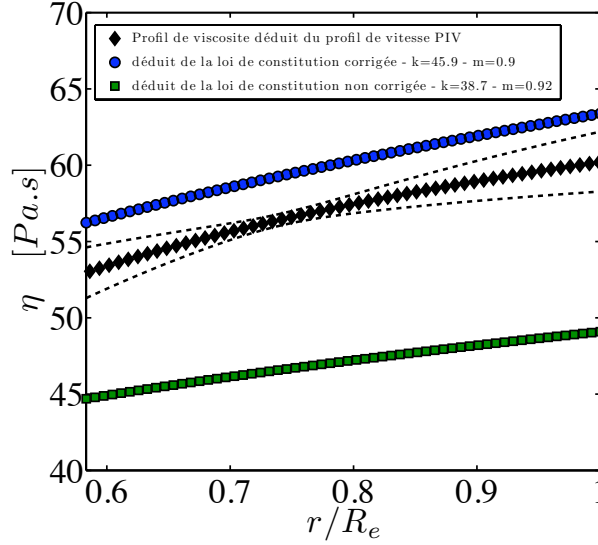


FIG. 3.6 – Le profil de viscosité déduit des mesures de PIV comparé aux profils calculés à partir des lois de comportement avec glissement corrigé et non corrigé, ainsi que des relations (2.22) et (3.7). L'écart entre le profil PIV et calculé est de l'ordre de 5%. Lignes brisées : écart-type calculé sur 100 profils.  $\Phi = 0.47$ .

### 3.2.5 Dépendance de la viscosité avec la fraction volumique

Une étude macroscopique de la dépendance de la viscosité avec la fraction volumique est faite dans la cellule à large entrefer. Cette géométrie est préférée à une géométrie à entrefer étroit où les effets dus au glissement sont importants [Jana *et al.* 1995] et où nous avons remarqué que l'effet anti-Weissenberg dû aux contraintes normales modifiait la hauteur de suspension cisailée. Les mesures sont réalisées sur de faibles déformations (moins de 4 révolutions du rotor i.e  $\gamma \sim 4 \times 2\pi \frac{R_i}{R_e - R_i} \sim 35$ ) pour limiter la migration. Pour calculer la viscosité macroscopique apparente on suppose que la viscosité est constante dans le gap. Compte tenu de la faible précision des mesures macroscopiques et de la variation relative de viscosité de l'ordre de 0.1 dans l'entrefer, cette hypothèse semble cohérente. Nous avons également négligé le glissement aux parois dont l'influence est faible lorsque l'entrefer est large devant la taille des particules. En suivant les notations définies en §2.3.6 la contrainte de cisaillement se déduit du couple mesuré au rotor,

$$\sigma(r) = \frac{\Gamma_\infty}{2\pi L r^2} \quad (3.8)$$

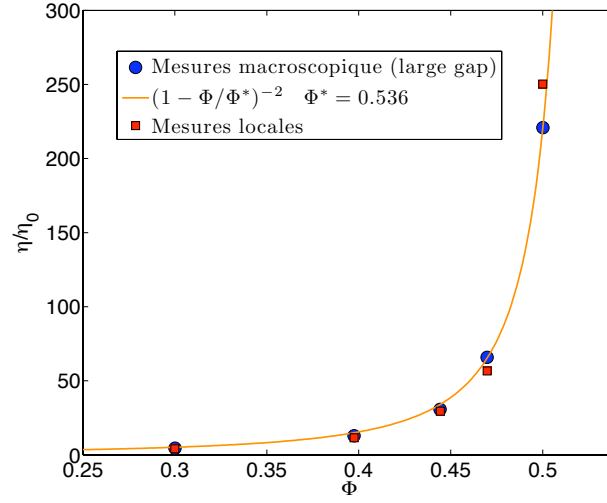


FIG. 3.7 – Viscosité réduite en fonction de la fraction volumique. Les mesures macroscopiques sont réalisées en large gap à un taux de cisaillement moyen de  $0.02s^{-1}$ . Les mesures locales sont les valeurs moyennes aux plateaux des régimes transitoires de viscosités présentés sur la fig. 3.15.

où  $\Gamma_\infty$  est le couple corrigé des effets de bords et  $L$  la hauteur de suspension cisailée. En supposant une dépendance newtonienne du taux de cisaillement, on peut écrire :

$$\dot{\gamma}(r) = 2\Omega \frac{R_i^2 R_e^2}{R_e^2 - R_i^2} \frac{1}{r^2} \quad (3.9)$$

La viscosité macroscopique apparente est donc :

$$\eta_{macro} = \frac{\Gamma_\infty}{4\pi\Omega L} \frac{R_e^2 - R_i^2}{R_e^2 R_i^2} \quad (3.10)$$

Les mesures représentées sur la fig. 3.7 sont réalisées à un taux de cisaillement moyen  $\langle \dot{\gamma} \rangle = (\dot{\gamma}(R_i) + \dot{\gamma}(R_e))/2$  de l'ordre de  $0.02s^{-1}$ . On ajuste aux données une loi de type Maron-Pierce avec un exposant  $n = -2$  et une fraction volumique d'empilement maximum  $\Phi^* = 0.536$  :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_0} = \left(1 - \frac{\Phi}{\Phi^*}\right)^{-n} \quad (3.11)$$

Cette faible valeur de  $\Phi^*$  trouve une explication dans les interactions répulsives entre polymères adsorbés sur la surface des particules. Tous les détails relatifs à cette discussion sont abordés dans l'appendice B.

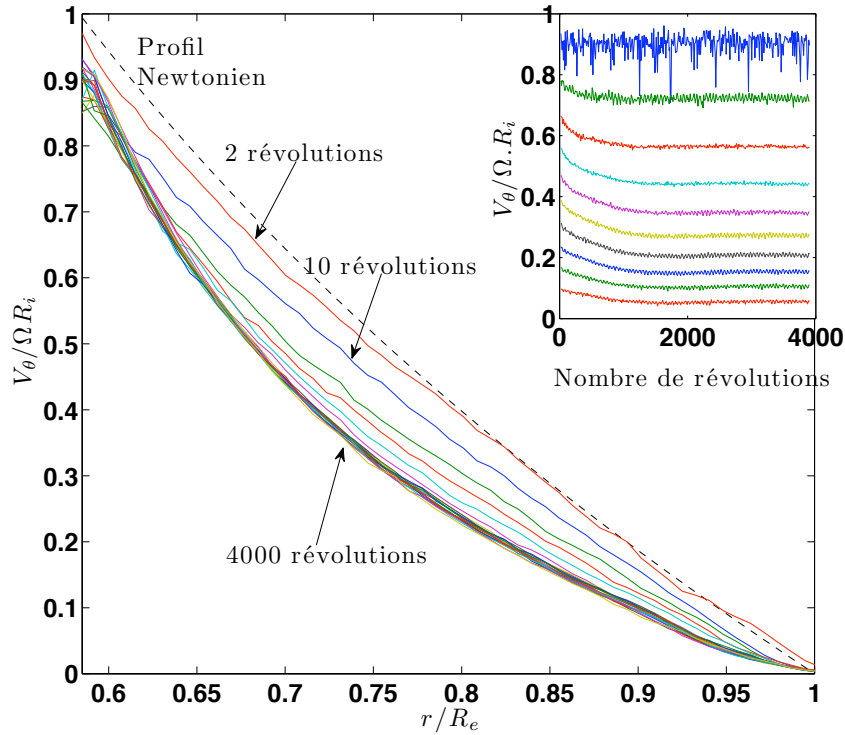


FIG. 3.8 – Évolution du profil de vitesse normalisée sur des déformations importantes.  $\Phi = 0.444$ . Vitesse angulaire imposée  $\Omega = 1 \text{ rpm}$ .  $R_e = 24 \text{ mm}$ .  $R_i = 14 \text{ mm}$ . Sauf pour les deux premiers, l'écart entre chacun des profils est de 100 révolutions. Encart : vitesse en différentes positions dans le gap.

### 3.3 Réponse transitoire à grande déformation - Contrôle de la fraction volumique

Avant d'étudier la réponse transitoire locale des suspensions à une inversion de cisaillement, il faut s'assurer de contrôler un paramètre majeur de la rhéologie, la fraction volumique<sup>5</sup>. Pour cette raison, nous nous intéressons au comportement d'une suspension de fraction volumique 0.444 sur des déformations importantes où la migration intervient et rend le milieu hétérogène.



### 3.3.1 Profil de vitesse

Une fois la suspension préparée et le rotor mis en position dans la cellule, on impose sans précisalement une vitesse de rotor  $\Omega = 1 \text{ rpm}$  ( $\dot{\gamma} \approx 2 \text{ s}^{-1}$ ). Les profils de vitesse enregistrés sur 4000 révolutions sont représentés sur la fig. 3.8. Chaque profil est une moyenne de 10 profils instantanés. La fréquence des flashes dans la PIV étant fixée à 8 Hz, la déformation cumulée pendant l'enregistrement des 10 profils est donc d'environ  $1/60^{\text{eme}}$  de tour, bien inférieure à la déformation caractéristique de la migration estimée à environ 1000 tours (fig. 3.8-encart).

La première observation concerne un éventuel glissement au rotor, la vitesse angulaire mesurée proche de la paroi interne se situant autour de  $0.9 \times \Omega$ . Remarquons qu'une mesure de la vitesse proche du cylindre interne manque de précision. En effet, la conjugaison d'un fort gradient de vitesse à la paroi et d'une largeur de boîte de corrélation de PIV non négligeable ( $B/R_e \approx 0.03$ ), induit une sous estimation de la vitesse du rotor. Pour cette raison il est difficile de mesurer réellement le glissement.

La deuxième observation concerne la forme des profils qui s'écartent rapidement d'un profil newtonien et dont la courbure augmente en accord avec une migration du cylindre interne vers le cylindre externe. En effet, au fur et à mesure de la déformation, le gradient de vitesse augmente près du cylindre interne ce qui traduit une diminution de la viscosité, donc de la concentration en particules.

### 3.3.2 Profil de viscosité et de concentration

En suivant la procédure décrite en §2.3 on obtient les profils de viscosité (fig. 3.9) et de fraction volumique<sup>6</sup> (fig. 3.10) au cours de la déformation. Notons que dans une zone située autour de  $r = r_c$  les variations de viscosité et de concentration sont faibles. La valeur de  $r_c/R_e = 0.77$  correspond à la position dans l'entrefer où la variation est la plus faible sur les quelques premières centaines de tours. Ensuite cette position semble se décaler vers des valeurs plus grandes de  $r$ . On peut donc affirmer que la fraction volumique en  $r_c$  reste quasiment constante et égale à la fraction volumique moyenne sur des déformations d'une centaine de tours. L'existence de cette zone où la concentration semble stationnaire durant le processus de migration a aussi été observée expérimentalement par Phillips *et al.* (1992) et est prédite par des modèles [Morris & Boulay 1999] [Phillips *et al.* 1992].

Cette valeur particulière de  $r_c$  ne varie pas de manière significative avec la gamme de fractions volumiques étudiées. Toutes les mesures locales présentées dans la suite de ce travail sont donc faites en  $r = r_c = 0.77R_e$  où on supposera toujours  $\Phi(r = r_c) = \Phi_{\text{moyen}}$ .

5. Rappelons qu'une détermination directe de la concentration par une mesure de quantité de traceurs n'est pas précise et que les profils de fraction volumique sont déduits des profils de vitesse.

6. L'appendice C détail la procédure de contrôle des profils de concentration.

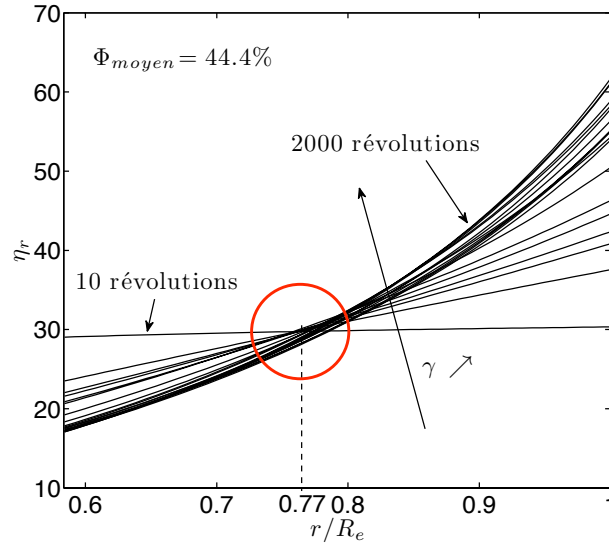


FIG. 3.9 – Évolution du profil de viscosité réduite sur une longue déformation.  $\Phi_m = 0.444$ . Encerclé : zone de faible variation de la viscosité.

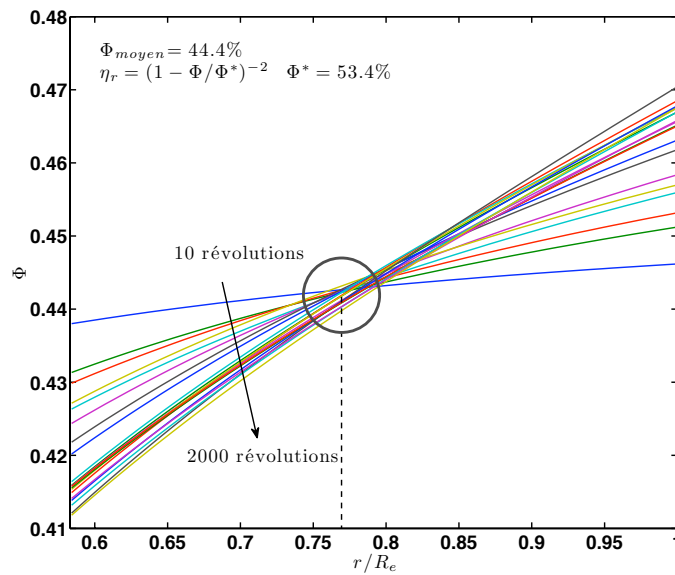


FIG. 3.10 – Évolution du profil de concentration sur une grande déformation.  $\Phi_m = 0.444$ . Les concentrations sont calculées à partir des profils de  $\eta_r$  et de la relation (3.11).

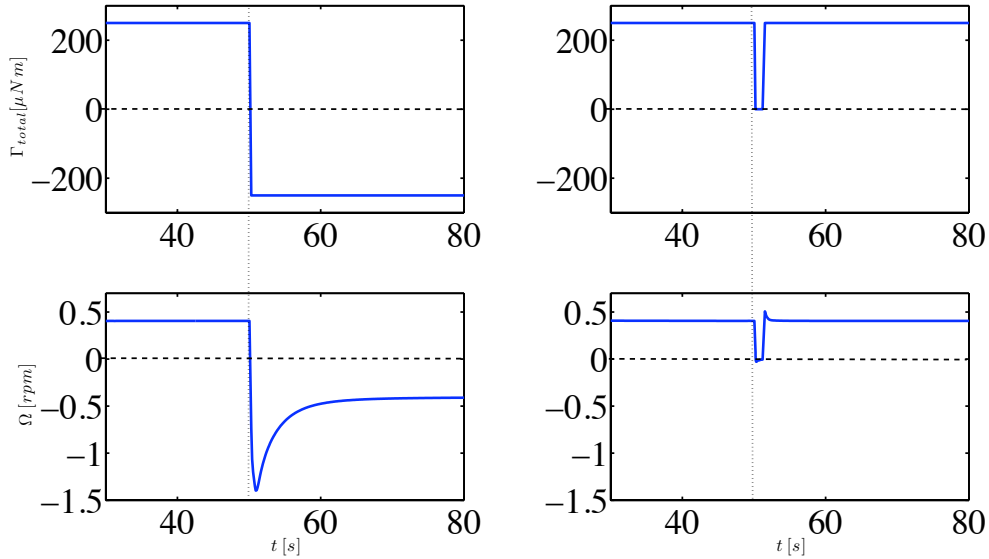


FIG. 3.11 – *Haut à gauche : Inversion du sens du couple imposé à la suspension. Bas à gauche : Régime transitoire de la vitesse angulaire du rotor associé à l'inversion de cisaillement. Haut à droite : Couple imposé dans le même sens après une pause. Bas à droite : Absence de régime transitoire.  $\Phi_{moyen} = 0.444$*

Cependant, pour que la correction de couple appliquée reste valide, il est nécessaire que la suspension soit quasi-homogène. C'est pour cela que l'ensemble des mesures du chapitre sont réalisées sur des suspensions préparées sans précisaillement et sur des déformations cumulées inférieures à 4 tours.

### 3.4 Réponse transitoire après inversion de cisaillement

En plus d'un régime transitoire sur des déformations importantes lié à la migration, un régime transitoire rapide est observé après une inversion de cisaillement. La fig. 3.11 montre une réponse macroscopique de la vitesse angulaire du rotor après que le couple exercé sur une suspension non précisaillée de fraction volumique 0.444 passe de  $+250 \mu Nm$  à  $-250 \mu Nm$  (i.e.  $+2 \text{ Pa}$  à  $-2 \text{ Pa}$ ). La contrainte positive est appliquée pendant  $1/4$  de tour (i.e.  $\langle \gamma \rangle \approx 3.5$ ), permettant de négliger tout effet de migration. Sur la même figure, on représente aussi la réponse de la suspension après une interruption de cisaillement. On remarque l'absence de régime transitoire<sup>7</sup> lorsque la suspension est à nouveau cisailée dans le même sens.

7. La légère survitesse notée après la reprise est interprétée dans l'annexe B.

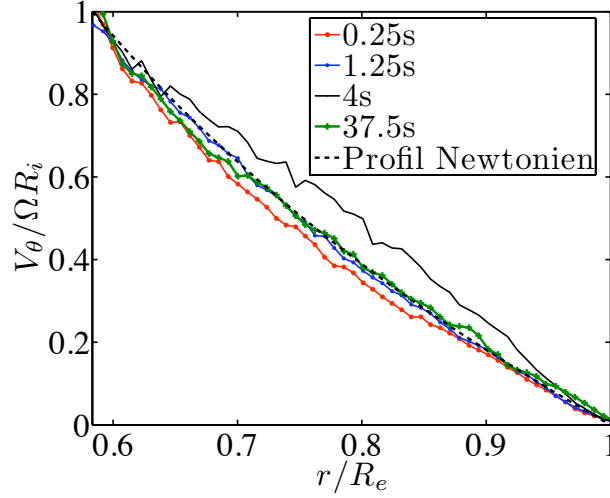


FIG. 3.12 – Profils de vitesse normalisée transitoire après une inversion de cisaillement à différents instants (à  $t=0$  le couple passe de  $+250 \mu\text{Nm}$  à  $-250 \mu\text{Nm}$ ). Ligne brisée : Profil newtonien.  $\Phi_{\text{moyen}} = 0.444$ .

La fig. 3.12 montre l'évolution des profils de vitesse instantanée et normalisée après l'inversion ( $t=0$  est défini comme l'instant de l'inversion de la contrainte). Le premier profil est presque newtonien ; les suivants s'en écartent avant d'y converger à nouveau. À partir de ces profils, et suivant la procédure décrite en §2.3, on peut déduire  $\eta_r(r, t)$  et  $\gamma(r, t)$ . En particulier, même si cette précaution est superfétatoire compte tenu des faibles déformations mises en jeu, on peut calculer ces fonctions en  $r = r_c$  où la migration ne modifie pas la fraction volumique locale qui reste égale à  $\Phi_{\text{moyen}}$ . En traçant  $\eta_r(r_c, t)$  en fonction de  $\gamma(r_c, t)$  on obtient la courbe présentée sur la fig. 3.13. Juste après l'inversion, la viscosité semble subir une discontinuité depuis sa valeur de plateau  $30.2\eta_0$  vers une valeur plus faible  $11.2\eta_0$ . Cette discontinuité apparente est sans doute la conséquence d'une résolution en déformation ( $\sim 2 \cdot 10^{-2}$ ) supérieure à la déformation caractéristique de la décroissance à l'origine. Dans le chapitre 5, nous présentons des mesures réalisées en PTV avec une meilleure résolution, qui semblent montrer qu'il n'y pas de discontinuité. Après cette chute brutale, la viscosité décroît plus lentement vers une valeur minimum notée  $\eta_{\text{min}}$  pour enfin croître vers une valeur de plateau notée  $\eta_{\text{plateau}}$ .

Une telle dépendance de la viscosité avec la déformation est cohérente avec l'évolution des profils de vitesse présentés sur la fig. 3.12. En effet, puisque le taux de cisaillement est plus grand au voisinage du cylindre interne, la déformation croît plus vite près de ce cylindre que près du cylindre externe. Ainsi, aussi longtemps que le plateau de viscosité n'est pas atteint partout dans l'entrefer, et notamment près du cylindre externe, le profil de vitesse reste non-newtonien.

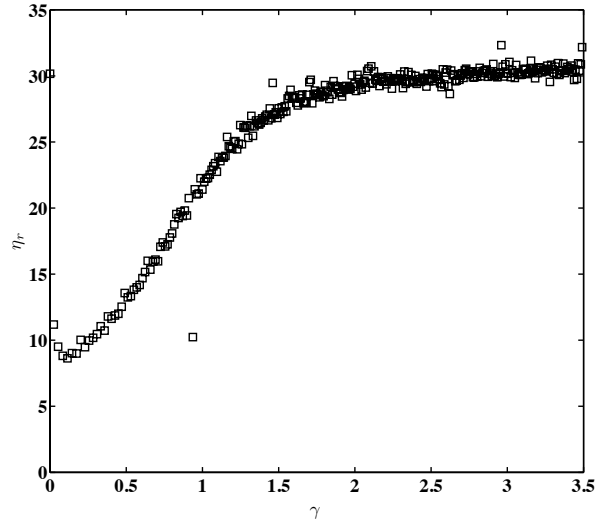


FIG. 3.13 – Réponse transitoire locale de la viscosité réduite après inversion de contrainte en  $r_c/R_e = 0.77$ .  $\Phi_{moyen} = 0.444$ .  $|\Gamma_{total}| = 250 \mu Nm$ .

La même expérience d'inversion est réalisée pour différents couples imposés, correspondant à des contraintes calculées au rotor de 0.85, 2.12, 4.25 et 5.95 Pa. Les résultats pour une fraction volumique  $\Phi_{moyen} = 0.47$  sont présentés sur la fig. 3.14. Tout d'abord remarquons qu'en accord avec la rhéofluidification mesurée sur cette suspension, les viscosités de plateau diminuent lorsque les contraintes augmentent. Par contre  $\eta_{min}$  ne semble pas varier avec la contrainte.

Des expériences similaires sont réalisées pour d'autres valeurs de fractions volumiques et les courbes de viscosité réduite en régime transitoire sont présentées sur la fig. 3.15. Pour chacune des fractions volumiques étudiées, le couple imposé est choisi pour que la vitesse angulaire du rotor soit toujours d'environ 0.5 rpm au plateau (ce qui correspond à  $\langle \dot{\gamma} \rangle_{plateau} \approx 0.1 s^{-1}$ ). La déformation cumulée dans chacune des expériences n'a jamais excédé 50 (i.e 4 révolutions). Notons que pour des fractions volumiques importantes, la baisse de viscosité enregistrée pendant le régime transitoire peut être très importante ( $\eta_{plateau}/\eta_{min} \sim 5$  pour  $\Phi/\Phi^* \sim 0.9$ ).

Trois résultats peuvent être déduits de ces observations :

- (a) Les valeurs locales de plateaux reportées sur la fig. 3.7 montrent que la viscosité locale de plateau suit la même variation que la viscosité macroscopique en fonction de la fraction volumique. Rappelons encore que la mesure macroscopique a été réalisée sans précisaillement ; la suspension étant homogène, la viscosité moyenne mesurée est donc identique à la viscosité locale en chacun des points de l'entrefer. Indiquons pour ce point,

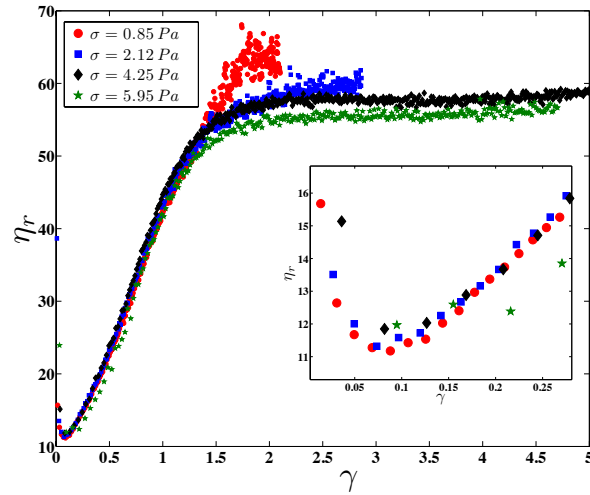


FIG. 3.14 – Réponse transitoire de la viscosité réduite après une inversion de contrainte. L'expérience est réalisée pour différentes contraintes calculées au rotor ( $\sigma = 0.85, 2.12, 4.25$  et  $5.95 \text{ Pa}$ ).  $\Phi_{\text{moyen}} = 0.47$ .  $r_c/R_e = 0.77$ . Encart : Zoom autour du minimum.

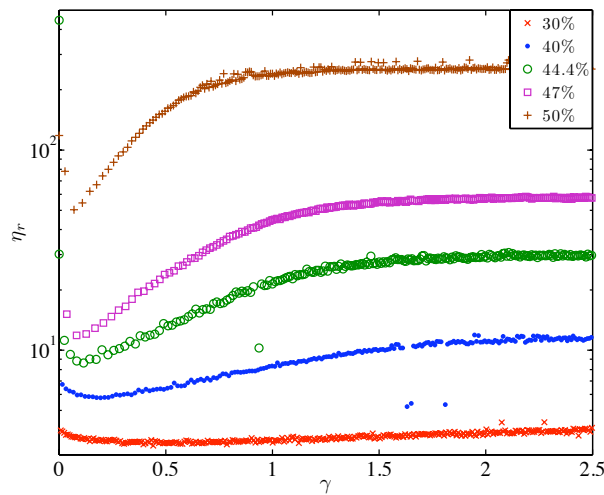


FIG. 3.15 – Réponse transitoire de la viscosité réduite pour différentes fractions volumiques après une inversion de contrainte.  $\langle \dot{\gamma} \rangle_{\text{plateau}} \approx 0.1 \text{ s}^{-1}$ . Le couple imposé est choisi pour que la vitesse angulaire du rotor soit toujours d'environ  $0.5 \text{ rpm}$  au plateau quelle que soit la fraction volumique.  $r_c/R_e = 0.77$ .

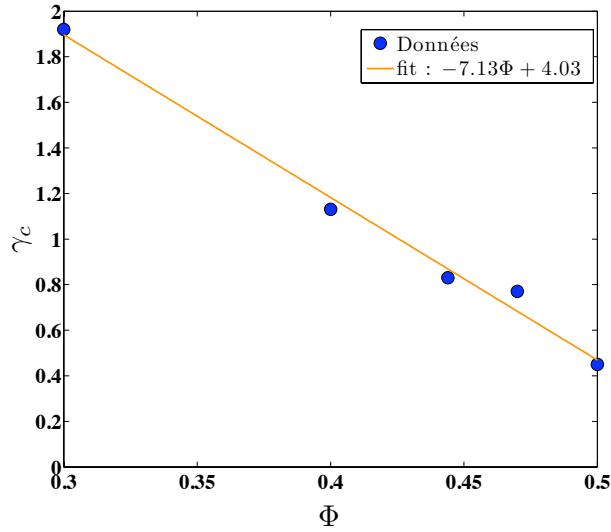


FIG. 3.16 – Déformation caractéristique déduite des transitoires de viscosité en fonction de la fraction volumique. Une extrapolation de la droite de régression donne  $\Phi(\gamma_c = 0) \approx 0.566$ .

que les mesures en RMN d'Ovarlez *et al.* (2006) dans des suspensions très concentrées, montrent un écart important entre résultats macroscopiques et microscopiques. Cette différence avec ce que nous mesurons n'est pas surprenante, car leurs mesures macroscopiques ont été menées sur des suspensions fortement précisillées et dans lesquelles, par conséquent, les particules avaient migré. De plus, Ovarlez *et al.* se sont intéressés à des suspensions encore plus concentrées que les nôtres où les effets de la migration peuvent être spectaculaires.

- (b) La viscosité minimum est atteinte d'autant plus rapidement que la fraction volumique augmente. De même la déformation nécessaire pour atteindre le plateau diminue avec l'augmentation de la concentration. La figure 3.16 représente la variation de la déformation caractéristique  $\gamma_c$  avec la fraction volumique, où  $\gamma_c$  est telle que :

$$\eta(\gamma_c) = \frac{\eta_{\text{plateau}} - \eta_{\text{min}}}{2} \quad (3.12)$$

Une extrapolation de la droite de régression donne la valeur de la concentration pour laquelle  $\gamma_c$  est nulle.  $\Phi(\gamma_c = 0) \approx 0.566 \sim \Phi^*$ . Ce résultat qualitatif montre que la transition entre les deux microstructures miroirs développées aux plateaux se fait sur une déformation d'autant plus petite que le volume libre accessible par particule est petit. On retrouve ainsi un bon ordre de grandeur de la fraction volumique de blocage obtenue en (a) et (c).

- (c) Le résultat le plus important, présenté sur la fig. 3.17, est que la viscosité minimum et

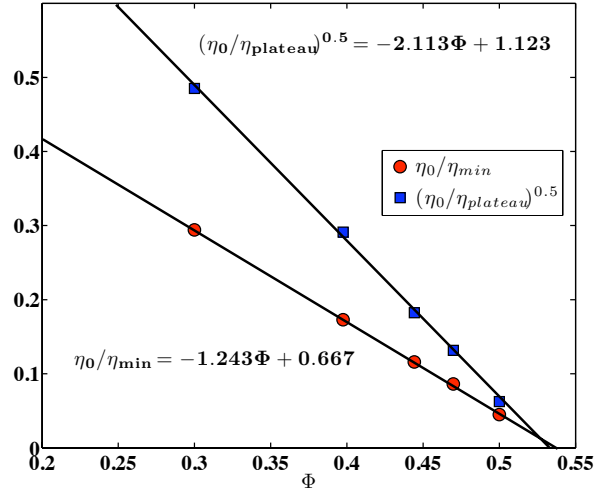


FIG. 3.17 – Loi d'échelle pour les mesures locales en  $r_c/R_e = 0.77$  de la viscosité de plateau et de la viscosité minimum. Pour chacune des mesures, le couple imposé est choisi de sorte que la vitesse angulaire du rotor au plateau soit de l'ordre de 0.5 rpm.

la viscosité de plateau ne suivent pas la même loi d'échelle avec la fraction volumique. Alors que, comme il a été vu en (a) ci-dessus, la viscosité de plateau est bien décrite par une loi de la forme Maron-Pierce

$$\eta_{plateau} \sim (\Phi_p^* - \Phi)^{-2} \quad \text{avec } \Phi_p^* = 0.531 \quad (3.13)$$

la viscosité minimale suit une dépendance du type

$$\eta_{min} \sim (\Phi_m^* - \Phi)^{-1} \quad \text{avec } \Phi_m^* = 0.537 \quad (3.14)$$

### 3.5 Discussion

Les mesures présentées dans ce chapitre montrent que lors d'une inversion du sens de cisaillement, la viscosité de la suspension décroît brutalement, poursuit sa décroissance jusqu'à un minimum pour croître à nouveau vers la valeur qu'elle avait avant l'inversion. Ces résultats sont en très bon accord avec les résultats obtenus en rhéométrie macroscopique par Gadala-Maria et Acrivos (1980) en géométrie de Couette cylindrique, ou avec les résultats de Kolli *et al.* (2002) et de Narumi *et al.* (2002) en géométrie torsionnelle plan-plan.

En particulier, comme ces auteurs, nous obtenons que le régime transitoire, pour une suspension de fraction volumique donnée, ne dépend que de la déformation.



Une de nos contributions est de confirmer que la réponse transitoire est bien une propriété propre aux suspensions et n'est pas due à un effet de bord sur la géométrie d'écoulement, comme par exemple l'apparition d'une zone de Vand [Vand 1948] ou d'un glissement [Jana *et al.* 1995]. Notons toutefois, qu'à la différence des résultats de Gadala-Maria et Acrivos (1980), seule la viscosité de plateau présente une rhéofluidification (fig. 3.14). Cette question reste encore ouverte mais on peut supposer que cette différence est due à une légère dépendance de la microstructure avec le taux de cisaillement.

Gadala-Maria et Acrivos (1980) proposent d'expliquer le comportement transitoire de la viscosité lors d'une inversion de cisaillement par l'établissement d'une microstructure induite par l'écoulement. Les mesures de fonction de distribution de paires de Parsi et Gadala-Maria (1987) confirment l'existence d'une structure anisotrope et asymétrique qui s'inverse avec le sens de l'écoulement.

Narumi *et al.* (2002) et Kolli *et al.* (2002) ont également observé un régime transitoire pour la force normale. En géométrie plan-plan, Narumi *et al.* mesurent une annulation de la force normale au moment de l'inversion puis une évolution vers la valeur de plateau. A l'aide d'une géométrie annulaire plan-plan dans laquelle le taux de cisaillement est à peu près constant, Kolli *et al.* mesurent qu'après l'inversion, la contrainte normale atteint quasi-instantanément une valeur faiblement négative avant de croître vers la valeur positive de plateau (fig. 3.18). Les réponses transitoires de viscosité et de contrainte normale s'effectuent sur des déformations identiques et le minimum de viscosité est atteint pour une déformation proche de celle pour laquelle la force normale s'annule. A cause de la discontinuité apparente des contraintes tangentielles et normales, les auteurs associent la valeur de la viscosité au moment de l'inversion à une contribution hydrodynamique pour une microstructure donnée, et la valeur de plateau, à la somme de la contribution hydrodynamique et d'une contribution des contacts entre particules. Au moment de l'inversion, les forces de contact relaxent et seules les interactions hydrodynamiques subsistent [Kolli *et al.* 2002]. Ainsi, le comportement transitoire de la viscosité semble devoir être expliqué à la fois par l'établissement d'une microstructure et une relaxation des forces de contact entre particules lors de l'inversion.

On peut se demander s'il est possible de discriminer l'influence de ces deux phénomènes sur le comportement transitoire de la viscosité. Remarquons d'abord que les contributions des forces hydrodynamiques et des forces de contact sont théoriquement difficiles à isoler, puisque contraintes hydrodynamiques et de contact entre particules sont couplées à la microstructure, elle-même dépendante de ces interactions [Sierou & Brady 2002]. Il est toutefois raisonnable de penser que si les forces de contact jouent un rôle prédominant, leur relaxation lors de l'inversion de cisaillement doit faire apparaître une discontinuité dans la viscosité. C'est ce que nos mesures semblent indiquer. Cependant, la résolution en déformation de nos mesures en PIV, du même ordre de grandeur que la déformation sur laquelle la visco-

sité varie rapidement après l'inversion, ne permet pas de dire si il existe véritablement une discontinuité. Nous verrons au chapitre 5 que des mesures en PTV semblent au contraire indiquer que la viscosité varie continument.

Intéressons nous maintenant au comportement du minimum de viscosité en fonction de la fraction volumique qui semble être identique à celui de la viscosité dynamique à haute fréquence  $\eta'_\infty$  obtenue en dynamique stokésienne par Sierou et Brady (2001). La viscosité dynamique à haute fréquence, d'origine purement hydrodynamique, correspond à la contribution visqueuse des contraintes pour un système dont la microstructure n'est pas affectée par l'écoulement et est donnée par une distribution spatiale aléatoire de sphères dures. Les résultats sont portés sur la fig. 3.19 pour laquelle  $\eta_0/\eta_{min}$  (cercles) et  $\eta_0/\eta'_\infty$  (carrés) sont exprimées en fonction de  $\Phi/\Phi^*$ . Pour les résultats en PIV,  $\Phi^* = 0.537$  et pour ceux en dynamique Stokésienne,  $\Phi^* = 0.64$ . Le bon accord des deux séries pour  $0.55 < \Phi/\Phi^* < 0.93$ , semble plutôt indiquer une absence de microstructure lorsque la viscosité de la suspension passe par le minimum. De plus, sur la base d'arguments géométriques et par une approche de dissipation d'énergie, Mills et Snabre (2009) montrent que, proche de la concentration maximale, la contribution purement hydrodynamique à la viscosité d'une suspension isotrope suit une loi d'échelle de la forme  $\Phi^{4/3}(\Phi^* - \Phi)^{-1}$ . Malgré un facteur  $\Phi^{4/3}$  que nos mesures ne mettent pas en évidence, le comportement asymptotique de leur modèle est identique à celui que nous mesurons pour  $\eta_{min}$  (eq. (3.14)). L'hypothèse d'un état isotrope pour une suspension au minimum de viscosité semble à la fois corroborée par les mesures de Kolli *et al.* (fig. 3.18) pour lesquelles ce minimum de viscosité intervient pour une déformation voisine de celle pour laquelle des différences de contraintes normales s'annulent. En effet, comme le montrent des études théoriques et numériques [Batchelor & Green 1972a] [Brady & Morris 1997] [Wilson & Davis 2000] [Wilson & Davis 2002], une différence de contrainte normale est liée à une asymétrie de la microstructure par rapport à la direction du gradient de vitesse dans le plan  $(\mathbf{v}, \nabla v)$ . Sur la fig. 3.19 sont aussi représentées des mesures rhéologiques de  $\eta_0/\eta'_\infty$  de Van der Werff et de Kruiff (1989) sur des suspensions colloïdales ( $a = 76 \text{ nm}$ ,  $\Phi^* = 0.63$ ). La mesure dynamique à haute fréquence impose à la suspension une microstructure isotrope. La comparaison des deux séries expérimentales montre que la viscosité de cisaillement d'une suspension au minimum du régime transitoire est à peu près la même que celle d'une suspension dont les particules sont distribuées de manière isotrope.

De manière plus habituelle, comme dans de nombreuses études expérimentales, numériques et théoriques [Mills & Snabre 2009]<sup>8</sup> la viscosité de plateau (eq. 3.13) suit une loi classique de type Maron-Pierce. Dans cet état, la microstructure retrouve son caractère asymétrique, et comme le suggèrent les mesures de Kolli *et al.* (fig. 3.18), c'est cette asymétrie qui est responsable à la fois de la différence de viscosité  $\eta_{plateau} - \eta_{min}$ , mais aussi des

8. Mills et Snabre (2009) montrent, à l'aide d'un modèle de dynamique de clusters dans lesquels des frottements solides entre particules gouvernent les contacts, que la viscosité divergent comme  $(\Phi^* - \Phi)^{-2}$ .

contraintes normales.

Pour étudier l'importance de la microstructure et son influence sur la rhéologie, Brady et Morris (1997) et Sierou et Brady (2002) introduisent la notion d'*excess viscosity*,  $\Delta\eta = \eta - \eta'_\infty$ , où la viscosité dynamique à haute fréquence  $\eta'_\infty$  est soustraite à la viscosité de la suspension à l'état stationnaire.  $\Delta\eta$  émerge des interactions entre particules distribuées dans la microstructure asymétrique induite par l'écoulement.  $\eta'_\infty$  est obtenue par simulation [Sierou & Brady 2001] [Foss & Brady 2000] et expérimentalement<sup>9</sup> [Shikata & Pearson 1994] [Van der Werff & De Kruif 1989]. Par analogie avec ces deux études, on définit la viscosité de cisaillement structurale :

$$\eta_{struct} = \eta_{plateau} - \eta_{min} \quad (3.15)$$

La fig. 3.20 représente la viscosité structurale normalisée par la viscosité de la suspension à l'état stationnaire (■) en fonction de  $\Phi/\Phi^*$ , ainsi que valeurs de  $\Delta\eta/\eta$  issues d'un calcul de dynamique Stokésienne de Sierou et Brady (2002) pour lesquelles le modèle ne prend en compte aucune friction (☆ sur la fig. 3.20). L'ensemble est aussi comparé à des mesures obtenues en PTV (chapitre 5) et en rhéologie macroscopique dans une géométrie de Couette cylindrique à entrefer étroit [Dbouk 2011] pour lesquelles une correction en glissement [Jana *et al.* 1995] est prise en compte. Au delà de  $\Phi/\Phi^* = 0.5$ , les données expérimentales se regroupent autour d'une droite d'équation  $3.59 \times (\Phi - 0.25)$ .

Les valeurs obtenues par simulation numérique aux plus faibles fractions volumiques semblent indiquer une absence de seuil, tandis que pour les fractions volumiques les plus importantes, elles sont systématiquement inférieures aux données expérimentales. Cependant, Sierou et Brady (2002) montrent l'importance de la friction entre particules sur les contraintes. Ils calculent que pour  $\Phi = 0.40$ , l'augmentation relative de la viscosité est de l'ordre de 10% pour un coefficient de frottement de 0.5 (★ sur la fig. 3.20). Cette influence peut de plus augmenter relativement avec la fraction volumique, expliquant les écarts observés entre les différents résultats expérimentaux et numériques (fig. 3.20).

L'extrapolation du fit linéaire obtenu sur les données PIV donne  $\eta_{struct}/\eta_{plateau} \approx 1$  lorsque  $\Phi/\Phi^* \rightarrow 1$ . Proche du blocage, la rhéologie est dominée par la partie des contraintes liées à la microstructure. De plus, malgré un manque de données aux faibles fractions volumiques, on peut déduire une fraction volumique critique  $\Phi_c \approx 0.25$ . Il est frappant de constater la similitude de ce résultat avec celui de la fig. 3.21 sur laquelle sont tracés les coefficients des contraintes normales, obtenus par profilométrie de surface libre, en fonction de  $\Phi$  [Boyer *et al.* 2011] [Couturier *et al.* 2011]. Boyer *et al.* (2011) trouvent  $\Phi_c \approx 0.22$ . La similitude des deux courbes confirment l'importance de la microstructure induite par l'écoulement à la fois sur l'apparition de contraintes normales et sur l'émergence de la viscosité

9. Essentiellement sur des suspensions colloïdales.

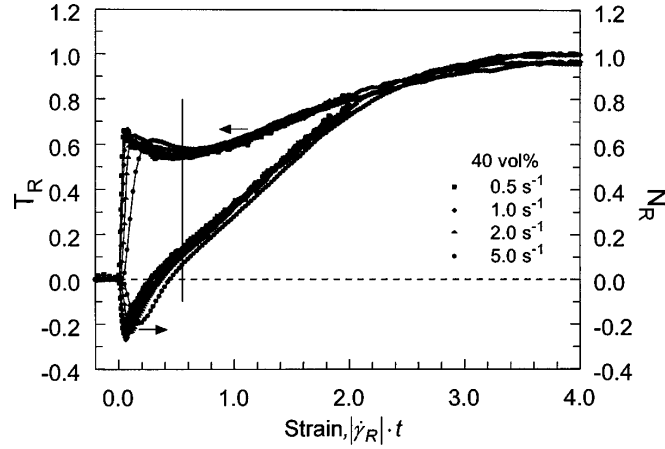


FIG. 3.18 – Couple et force normale normalisés par leur valeur au plateau en fonction de la déformation moyenne. Mesures réalisées dans un anneau plan-plan sur une suspension de 40% de sphères de diamètres 38 – 75  $\mu\text{m}$  dans du polyéthylène glycol. La ligne verticale correspond à la déformation pour laquelle le couple est minimal. D’après [Kolli et al. 2002].

structurale.

### 3.6 Conclusion

Par une technique de PIV, nous avons réalisé des mesures locales du comportement transitoire de la viscosité de suspensions concentrées après une inversion du sens de la contrainte de cisaillement. Les résultats confirment ceux obtenus sur des viscosimètres classiques [Gadala-Maria & Acrivos 1980] [Kolli et al. 2002] [Narumi et al. 2002] et montrent en particulier que le régime transitoire de la viscosité dépend seulement de la déformation. Après inversion du sens de la contrainte, la viscosité de cisaillement chute brutalement, passe par un minimum  $\eta_{min}$  et augmente vers une valeur de plateau  $\eta_{plateau}$ .  $\eta_{plateau}$  vérifie classiquement une loi de Maron-Pierce avec une exposant  $n=-2$  et une concentration de blocage  $\Phi^* \approx 0.53$ . Cette faible valeur de la fraction volumique maximale a été imputée aux interactions stériques entre polymères adsorbés en surface des particules de PMMA lors de leur synthèse.

Plus surprenant, les variations de  $\eta_{min}$  avec  $\Phi$  suivent une loi d’échelle différente, de la forme  $(\Phi^* - \Phi)^{-1}$  avec  $\Phi^* \approx 0.53$  dans la gamme de fractions volumiques étudiées ( $0.55 < \Phi/\Phi^* < 0.93$ ). Ce résultat est en bon accord avec des études numérique [Sierou & Brady 2001] et théorique [Mills & Snabre 2009] et permet de conclure qu’au minimum de viscosité il n’existe plus de microstructure très marquée où les particules seraient très proche les unes des autres.

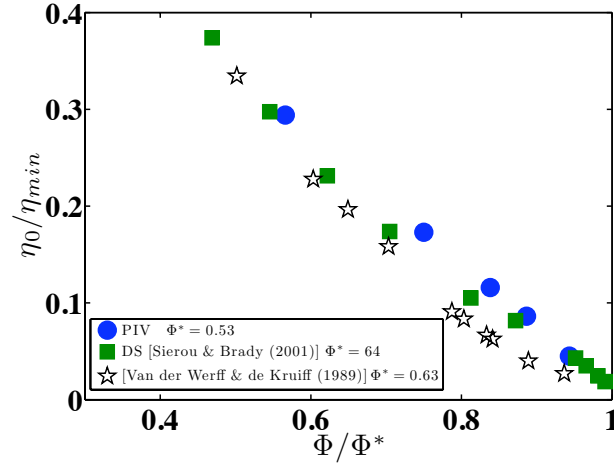


FIG. 3.19 – Inverse de la viscosité minimum en fonction de  $\Phi/\Phi^*$ . (●) Mesures en PIV. (■)  $\frac{\eta_0}{\eta_\infty}$  calculée en dynamique Stokésienne [Sierou & Brady 2001]. (☆)  $\frac{\eta_0}{\eta_\infty}$ . Données expérimentales.  $a = 76 \text{ nm}$  [Van der Werff & De Kruiff 1989].

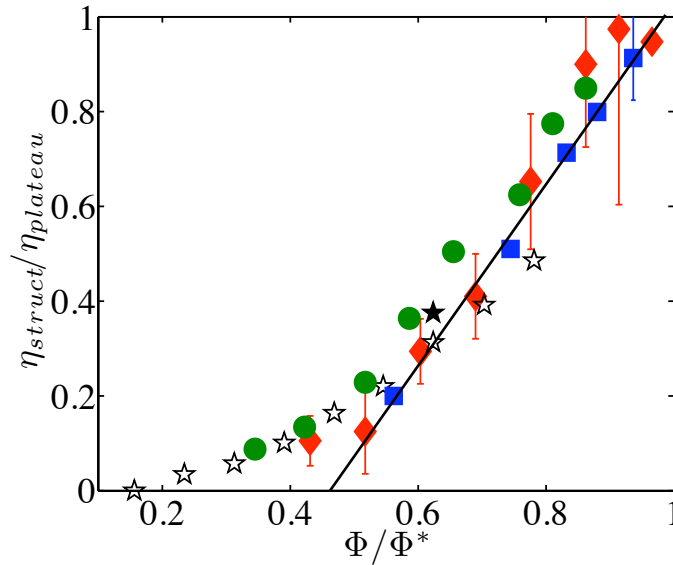


FIG. 3.20 – Viscosité structurale normalisée par la viscosité de plateau en fonction de  $\Phi/\Phi^*$ . (■) Mesures en PIV –  $\Phi^* = 0.534$  –  $a = 15.5 \mu\text{m}$ . (◆) Mesures en PTV (cf. Chap.5) –  $\Phi^* = 0.58$  –  $a = 85 \mu\text{m}$ . (●) Mesures en Couette cylindrique entrefer étroit [Dbouk 2011] –  $\Phi^* = 0.58$  –  $a = 70 \mu\text{m}$ . (☆) Mesures en dynamique stokésienne [Sierou & Brady 2002] – Sans friction –  $\Phi^* = 0.64$ . (★) Mesure en dynamique stokésienne [Sierou & Brady 2002] – Avec friction. Régression linéaire sur les données en PIV :  $3.59 \times (\Phi - 0.25)$ .

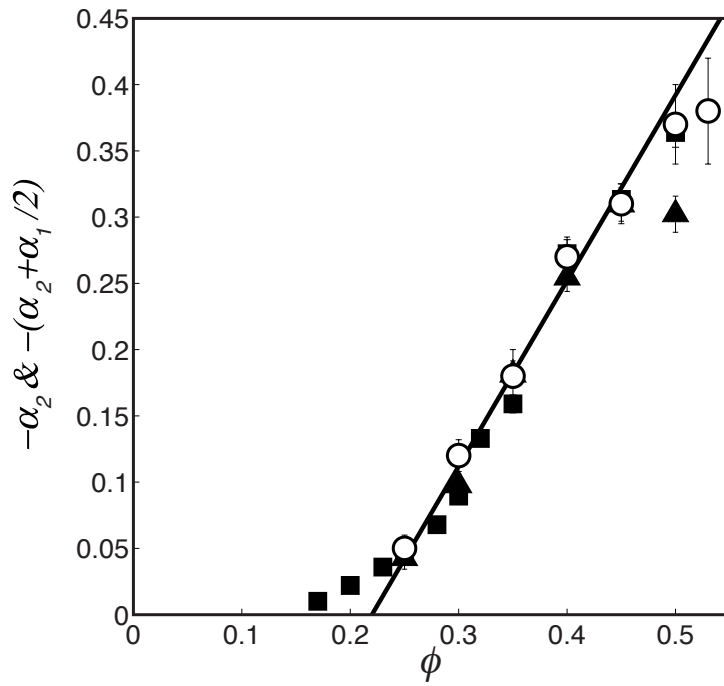


FIG. 3.21 – *Second coefficient de contrainte normale  $\alpha_2$  en fonction de  $\Phi$ . (■) :  $a = 35 \pm 5 \mu\text{m}$ . (▲) :  $a = 70 \pm 5 \mu\text{m}$ . D'après Couturier et al. (2011). Combinaison des coefficients de contrainte normale  $-(\alpha_2 + \alpha_1/2)$  en fonction de  $\Phi$ . (○) :  $a = 70 \pm 5 \mu\text{m}$ . D'après Boyer et al. (2011). Ligne : fit linéaire de Boyer et al. (2011) :  $1.4 \times (\Phi - \Phi_c)$ .  $\Phi_c \approx 0.22$ .*

Le comportement identique de la viscosité structurale et des coefficients de contraintes normales [Couturier *et al.* 2011] permet d'illustrer l'idée que les différences de contraintes normales présentes dans les suspensions concentrées trouvent leur origine dans la présence de la microstructure induite par l'écoulement.

# Mesure de la microstructure : dispositif expérimental

---

## 4.1 Introduction

L'étude par rhéologie locale des régimes transitoires après une inversion du sens de la contrainte de cisaillement a montré la nécessité d'une mesure de la microstructure d'une suspension concentrée et notamment de son asymétrie. Ce chapitre ouvre une nouvelle partie traitant de la mesure des fonctions de distribution de paires de particules dans les écoulements stationnaires et transitoires.

La mesure directe du développement d'une microstructure induite par le cisaillement des suspensions non-browniennes ne peut être réalisée à l'aide du dispositif précédent de PIV. En effet le marquage de seulement 0.25% de la phase solide ne permet pas d'avoir accès aux positions relatives de l'ensemble des particules, nécessaires à la construction de leur distribution spatiale. Accroître la quantité de particules marquées ne contribuerait de plus qu'à l'augmentation de l'absorption de lumière, rendant impossible les mesures locales. C'est pourquoi nous avons choisi de disperser les particules dans l'huile Cargille dans laquelle a été préalablement dissout un fluorochrome. En éclairant cette suspension par une nappe laser, la fluorescence n'a lieu que dans le fluide qui entoure les particules faisant apparaître leur ombre dans le plan de coupe sous la forme d'un ensemble de disques. La localisation du centre de ces disques permet d'accéder à la position de toutes les particules dans le plan laser. La principale difficulté réside dans le choix des particules dont le diamètre doit impérativement être supérieur à l'épaisseur de la nappe laser et dont les caractéristiques physiques doivent être identiques à celles du protocole de PIV – indice optique homogène et proche de celui de la phase liquide – densité proche de celle de l'huile suspendante Cargille. Après plusieurs essais sur des lots de particules différents, nous avons retenu des particules de PMMA de  $170 \mu m$  (Arkema) pour lesquelles le diamètre est plus grand que l'épaisseur de la nappe, et l'indice optique homogène permet l'ajustement de l'indice des deux phases. La suspension est donc suffisamment transparente pour permettre des mesures de la fonction de distribution de paires (PDF) en volume et loin du fond de la géométrie. Simultanément à cette mesure de la microstructure, une procédure de suivi de particules (PTV) permet d'accéder au profil de vitesse de l'écoulement et donc à la rhéologie locale.



Le présent chapitre est composé de quatre parties. La première décrit le protocole expérimental mis en œuvre pour la détection des particules. Une mesure de l'épaisseur de la nappe laser montre que celle-ci est pratiquement constante et égale à  $30\ \mu\text{m}$  sur l'ensemble de l'entrefer. La seconde partie décrit la procédure numérique permettant la détection des disques inscrits dans le plan de coupe. Cette procédure, basée sur une transformation de Hough circulaire, permet d'accéder à la fois aux positions des centres avec une résolution de l'ordre du dixième de pixel, et aux rayons, avec une précision de un pixel. La construction de la trajectoire de chacune des particules est alors rendue possible par un algorithme de vélocimétrie par suivi de particules (PTV). La connaissance des vitesses individuelles permet de déduire le taux de cisaillement et la viscosité locale. La troisième partie rappelle rapidement les principes généraux de la PTV. La dernière partie s'attache à décrire de manière détaillée le protocole de calcul de la PDF permettant d'accéder quantitativement à la microstructure de la suspension.

## 4.2 Dispositif expérimental

### 4.2.1 Fluide marqué

Le fluide utilisé est à nouveau l'huile minérale Cargille décrite en §2.1.3. Elle est rendue fluorescente par dissolution de fluorochrome Nile Blue A précédemment décrit en §2.1.2. Le fluorochrome est d'abord mélangé jusqu'à saturation dans l'huile Cargille chauffée entre  $40^\circ\text{C}$  et  $50^\circ\text{C}$  pendant une à deux heures. L'ensemble est ensuite centrifugé et filtré à  $7\ \mu\text{m}$  pour éliminer le colorant non dissout.

### 4.2.2 Particules utilisées

Les particules utilisées sont des sphères de PMMA (Arkema BS510) fournies par lots largement polydisperses de diamètre moyen  $180\ \mu\text{m}$ . Le lot initial de 2 kg est fragmenté en échantillon d'une centaine de grammes chacun. Chaque échantillon est ensuite tamisé, pendant environ quatre heures, dans un mélange eau/surfactant (SDS) en circuit fermé.

Les particules retenues entre les tamis  $160 - 180\ \mu\text{m}$  sont ensuite rincées plusieurs fois à l'eau distillée jusqu'à élimination du surfactant, puis séchées à l'étuve. L'ensemble des opérations permet de récupérer environ 70 g de PMMA.

La polydispersité des particules tamisées est ensuite mesurée à partir de photos prises en microscopie optique (Zeiss, Axio Scope A1, Grossissement : x10). Chacune des photos est analysée par une procédure de détection de cercle (décrite en §4.3). La fig. 4.1 représente la distribution en volume des sphères en fonction de leur diamètre obtenue à partir d'un millier de particules. Le diamètre moyen est  $\langle 2a \rangle \simeq 170\ \mu\text{m}$  et la polydispersité 7.5%.

La rugosité de la surface des particules est évaluée par Microscopie à Force Atomique

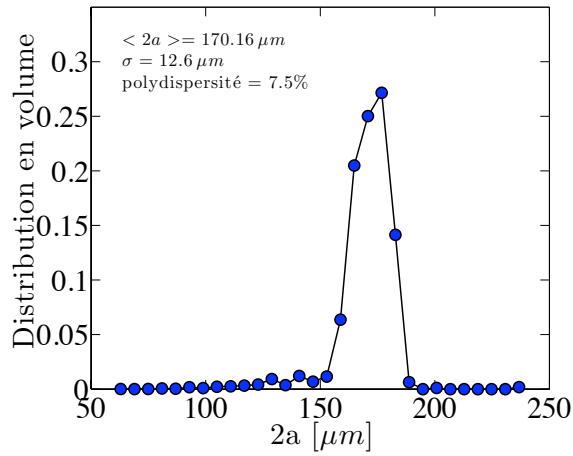


FIG. 4.1 – *Distribution en volume en fonction du diamètre d'un échantillon d'un millier de particule BS510 tamisées. Diamètre moyen :  $\langle 2a \rangle \simeq 170 \mu m$ . Polydispersité : 7.5%.*

(AFM). Le traitement de 6 profils de  $10 \mu m \times 10 \mu m$ , sur 6 particules différentes, montre une rugosité standard autour de 20 nm avec au moins un pic d'environ 200 nm par champ (fig. 4.2).

### 4.2.3 Géométrie d'écoulement

A la différence de l'étude précédente faite en PIV, et avec le souci d'augmenter la résolution des images, les mesures sont faites dans une géométrie de Couette cylindrique de 5 mm d'entrefer (contre 10 mm en PIV). Seul le cylindre interne de rayon  $R_i = 19 mm$  est différent de la description de la cellule d'écoulement faite en §2.2.1. Pour limiter le glissement à sa paroi, il est frotté avec un papier de verre de granulométrie adaptée à la taille des particules BS510. Une étude identique à celle décrite en §2.3.6 permet d'obtenir de nouveaux coefficients de correction du couple :  $a_1 = 0.457 \mu Nm.rpm^{-1}.mm^{-1}$  et  $a_2 = 3.69 \mu Nm.rpm^{-1}$ .

### 4.2.4 Mesure de l'épaisseur de la nappe laser

Le constructeur de la nappe laser plane (Stockeryale) fournit dans sa documentation la variation de l'épaisseur de la nappe, ainsi que la profondeur de champ en fonction de la distance de projection<sup>1</sup> (fig. 4.3). Pour une profondeur de champ de 5mm (largeur du gap) la distance de projection est de 7cm. L'épaisseur est alors donnée autour de  $30 \mu m$ .

La caractérisation in situ de l'épaisseur du faisceau est réalisée en mesurant l'extinction d'intensité observée sous le plan incliné d'un biseau lorsque celui-ci coupe la nappe laser.

1. Définie comme la distance entre la sortie de la lentille et la zone d'observation.

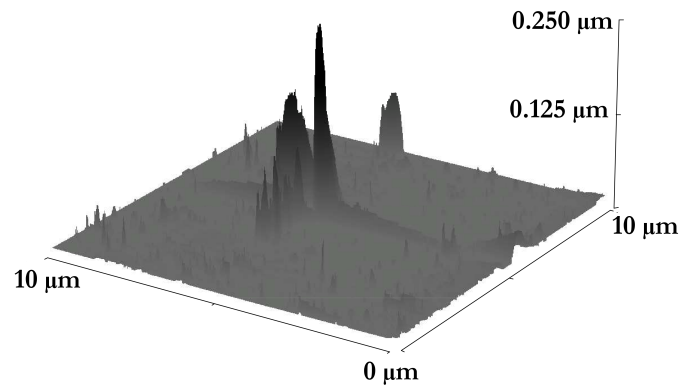


FIG. 4.2 – Image illustrant une mesure de rugosité de surface par AFM. La rugosité type est d'environ 20 nm avec des pics isolés autour de 200 nm. Champ :  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ .

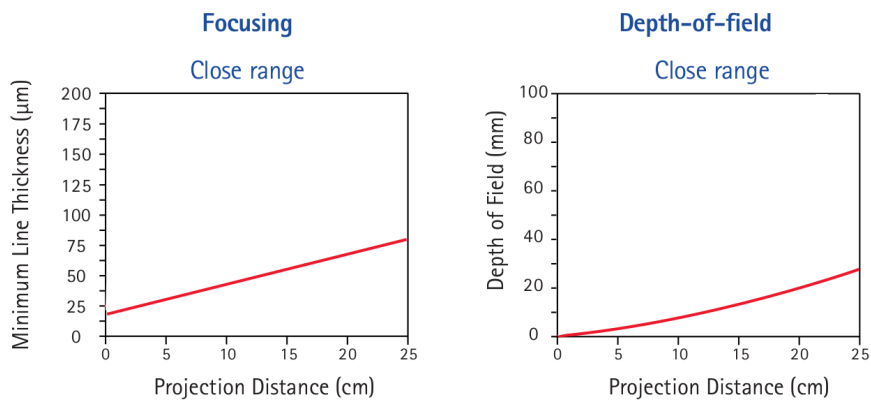


FIG. 4.3 – Épaisseur de la nappe laser et profondeur de champ en fonction de la distance de projection définie comme la distance entre la sortie de la lentille et la zone d'observation. Pour une profondeur de champ de 5 mm (largeur du gap) la distance de projection est choisie à 7 cm. Données constructeur dans l'air.

Le principe est schématisé sur la fig. 4.4. Le biseau d'angle  $\alpha = 60^\circ$ , taillé dans un cylindre de PMMA pour limiter la réfraction de la lumière, est plongé dans la cellule remplie d'huile Cargille marquée par le fluorochrome. En supposant que la lumière fluorescente émise vers l'observateur n'est ni absorbée, ni diffusée, l'intensité  $\mathfrak{I}(x)$ , mesurée dans le plan d'observation en  $x$ , est due à l'intensité de la nappe entre  $-\infty$  et  $z_m$  située au-dessus du point d'observation. La figure 4.5 illustre une photographie type enregistrée.

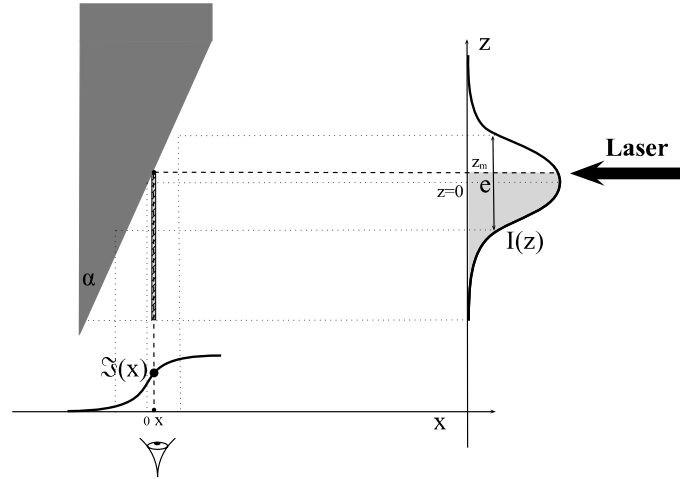


FIG. 4.4 – Principe de la mesure de l'épaisseur du laser. La partie grisée de  $-\infty$  à  $z_m$  sous le profil d'épaisseur de la nappe  $I(z)$  contribue à l'intensité  $\mathfrak{I}(x)$  mesurée en un point d'observation de l'image. L'origine est définie au centre de la nappe. Angle du biseau :  $\alpha = 60^\circ$ .

Soit  $I(z)$ , le profil Gaussien d'intensité de la nappe laser, d'écart type  $\sigma_I$ . L'épaisseur de la nappe est définie comme  $e = 2\sigma_I$ . En tenant compte des hypothèses précisées ci-dessus, on peut écrire :

$$\mathfrak{I}(x) \sim \int_{-\infty}^{z_m(x)} I(z) dz \quad (4.1)$$

Et en notant que  $z_m = \frac{x}{\tan \alpha}$  et  $I(-\infty) = 0$ , on obtient, en dérivant la relation 4.1 :

$$\frac{d\mathfrak{I}}{dx} \sim I\left(\frac{x}{\tan \alpha}\right) \quad (4.2)$$

La mesure de  $\mathfrak{I}(x)$  est réalisée en moyennant des profils acquis en plusieurs points de l'axe  $y$  (cf. fig. 4.5). Une Gaussienne d'écart-type  $\sigma_{\mathfrak{I}}$  est ensuite ajustée numériquement sur la dérivée du profil moyen  $\frac{d\langle \mathfrak{I} \rangle}{dx}$ . La relation 4.2 permet d'en déduire l'épaisseur de la nappe :

$$e = \frac{2\sigma_{\mathfrak{I}}}{\tan \alpha} \quad (4.3)$$

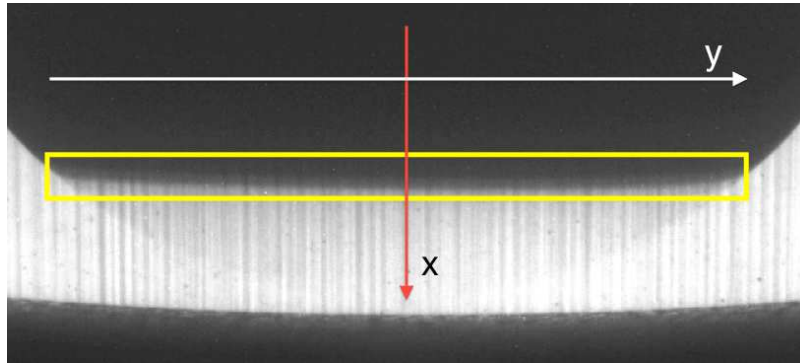


FIG. 4.5 – Photographie type enregistrée pour la mesure de l'épaisseur de la nappe laser. La variation d'intensité pertinente à lieu dans le rectangle. Axe  $x$  défini sur la fig. 4.4.

Une platine de déplacement micrométrique permet ensuite de translater le biseau vers le centre de la géométrie. On mesure ainsi l'épaisseur de la nappe en fonction de la position  $d$  par rapport au cylindre externe. L'ensemble des données représentées sur la fig. 4.6 montre une épaisseur comprise entre 25 et 40  $\mu m$  sur l'ensemble du gap. La variation étant peu importante, nous supposons une nappe d'épaisseur constante et égale à 30  $\mu m$ . A titre indicatif, la fonction d'ajustement proposée est un profil de faisceau Gaussien ; elle permet de retrouver avec un bon ordre de grandeur les données constructeur : la profondeur de champ =  $2b \approx 5 mm$  et le waist  $\approx 30 \mu m$ .

Toutes ces mesures sont réalisées dans le fluide pur. Or dans une suspension concentrée, malgré la bonne adaptation entre l'indice moyen des billes de PMMA et celui du fluide suspendant, on peut s'attendre à un élargissement de la nappe. Le protocole ci-dessus répété sur une suspension de particules BS510 de fraction volumique  $\Phi = 0.47$  donne des résultats difficilement reproductibles. Cependant, il semble que la nappe ait peu tendance à s'élargir.

#### 4.2.5 Réglage de la température

La température de travail de 34°C choisie pour les particules CA30 utilisées en PIV ne permet pas d'obtenir la transparence d'une suspension de particules BS510. La nouvelle température est mesurée en imposant une rampe de température de 0.5°C/h au dispositif expérimental. L'analyse du contraste d'une série d'images enregistrées à intervalle de temps régulier permet de déterminer la température optimale  $T = 37°C$ . A cette température la viscosité du fluide suspendant est 0.85 Pa.s.

#### 4.2.6 Image type et hauteur de travail

La fig. 4.7 est une image type obtenue pour une suspension de fraction volumique 0.56 à  $z=10 mm$  du fond de la géométrie. Cette valeur de  $z > e \approx 5 mm$ , pour laquelle le contraste

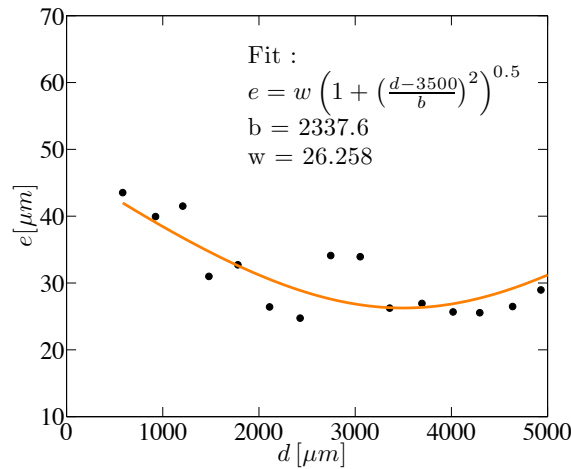


FIG. 4.6 – Mesure de l'épaisseur  $e$  de la nappe laser en fonction de la distance  $d$  définie par rapport au cylindre externe.  $\langle e \rangle \approx 30 \mu\text{m}$ . Fit : Profil du faisceau de la forme  $e = w \sqrt{1 + \left( \frac{d - d_0}{b} \right)^2}$ .

des images est bon, et où l'effet du fond est négligeable, est choisie comme hauteur de travail pour réaliser l'ensemble des mesures.

## 4.3 Procédure de détection des particules

### 4.3.1 Principe général de la transformée de Hough circulaire

La procédure de détection des particules se fait à l'aide d'une procédure *Matlab* basée sur une transformation de Hough circulaire [Hart & Duda 1972] [Kimme *et al.* 1975]. La transformation de Hough circulaire (THC), transforme une image (i.e. un tableau à deux dimensions) en un tableau à trois dimensions appelé *accumulateur*. Les trois dimensions de l'accumulateur caractérisent les cercles présents dans l'image et sont : les coordonnées  $(a, b)$  du centre d'un cercle et  $\mathbf{r}$  une série de valeurs discrètes de rayons  $[r_k | k = 1, 2, \dots, m]$ , dont on cherche la présence dans l'image. Pour simplifier, nous nous restreindrons au principe de la recherche d'un seul rayon  $R$ . L'accumulateur est alors de dimension 2 et de même taille que l'image.

Soit une image digitalisée dont on veut déterminer les cercles présents. Cette image est dans un premier temps filtrée pour extraire le bord des objets<sup>2</sup>. Chaque pixel peut alors

2. Par exemple en utilisant un filtre de type Canny. Nous ne nous étendons pas sur cette étape, le principe général étant d'appliquer un seuil à l'image gradient calculer à partir de l'image à traiter.

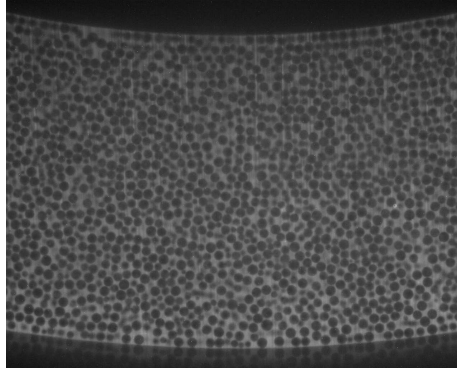


FIG. 4.7 – Image type obtenue dans une suspension  $\Phi = 0.56$ . Altitude par rapport au fond de la géométrie :  $z = 10 \text{ mm} \approx 120a$ . largeur du gap :  $e = 5 \text{ mm} \approx 60a$ .

prendre 2 valeurs : 1 pour les bords, 0 ailleurs. Notons  $I(x, y)$  cette image binaire et  $p(x, y)$  l'ensemble des points de valeur 1 dans l'image  $I$ . Dans une THC, chaque point  $(x_i, y_i)$  de  $p$  est transformé en un cercle d'équation  $(a - x_i)^2 + (b - y_i)^2 = R^2$  dans l'accumulateur. La fig. 4.8-a illustre la construction d'un accumulateur pour 5 pixels  $(x_i, y_i)$  inscrits dans un cercle  $\mathcal{C}$  de rayon  $R=5$ . Chaque pixel de  $p$  contribue donc à incrémenter l'accumulateur d'une unité sur tous les points d'un cercle de rayon  $R$ . Un ensemble de  $N$  points situés sur un cercle  $\mathcal{C}$  de l'image va donc incrémenter d'autant le pixel de l'accumulateur situé au centre de  $\mathcal{C}$ . Les centres des cercles de l'image correspondent donc à des valeurs importantes dans l'accumulateur, et une recherche de maxima locaux permet ainsi d'obtenir l'ensemble des centres de cercles de rayon  $R$ .

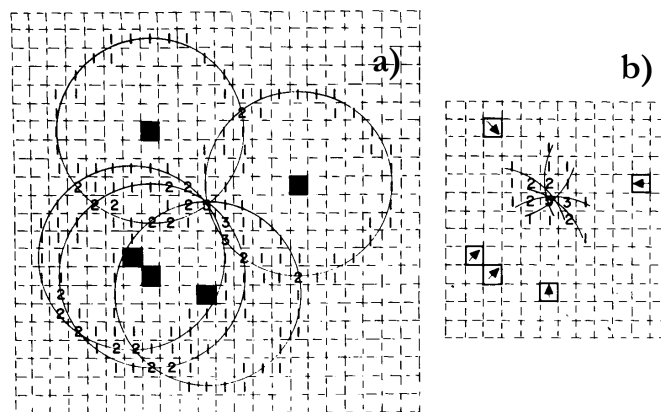


FIG. 4.8 – Contenu d'un accumulateur construit pour  $R=5$ . a) Carrés noirs : pixel d'intensité 1 inscrit dans un cercle  $\mathcal{C}$  de rayon 5 px. La direction du gradient n'est pas prise en compte. b) La direction du gradient est prise en compte. D'après [Kimme et al. 1975].

Pour obtenir un temps de calcul plus court<sup>3</sup> on se contente d'incrémenter l'accumulateur dans la direction du gradient d'intensité associé à chacun des pixels (fig. 4.8–b). En effet, incrémenter tous les points d'un cercle dans l'accumulateur revient à pratiquer environ  $2\pi R$  itérations. Incrémenter dans la seule direction du gradient suffit à faire gagner environ un facteur  $1/2\pi R$  sur le temps de calcul de l'accumulateur. Pour des rayons d'une dizaine de pixels<sup>4</sup> cela correspond à réduire le temps de calcul d'un facteur 60.

L'opération reproduite pour l'ensemble des rayons recherchés permet d'obtenir les positions et rayons de tous les cercles présents dans l'image.

### 4.3.2 Description de la procédure de détection

La procédure *Matlab* utilisée pour la détection a été développée par Tao Peng<sup>5</sup>. Il use à la fois du gradient de l'image pour construire l'accumulateur [Kimme *et al.* 1975], et d'une procédure sans boucle récursive. Le temps de calcul est donc considérablement réduit et une image de suspension de  $1024 \times 1280 px^2$  contenant environ 1200 cercles est traitée en une vingtaine de secondes sur un ordinateur équipé d'un processeur *Intel Core 2 Duo 2.66 Ghz*.

La fig. 4.9 présente le résultat d'une détection sur une portion d'image d'une suspension de fraction volumique 0.55 et l'accumulateur correspondant.

Un tel résultat est obtenu en appliquant la procédure de détection suivante :

- (1) L'image brute  $I_0$  d'une suspension est normalisée par une image de référence de cette suspension, notée  $I_b$ .  $I_b$  est obtenue par application sur  $I_0$  d'un filtre passe-bas Gaussien de taille 50 pixels.  $I_b$  suit les variations spatiales lentes dues à la non-uniformité de la nappe laser (fig. 4.10). Les variations spatiales de l'image normalisée  $I_f = \frac{I_0}{k \times I_b}$  ne sont ainsi dues qu'à la présence des seules particules. La constante  $k \sim 1-2$ , qui dépend de la fraction volumique, est déterminée empiriquement pour permettre une bonne détection des cercles à chaque nouvelle expérience.
- (2) La procédure de la THC est ensuite appliquée sur  $I_f$  pour des rayons  $r_k \in [r_i = 3, \dots, r_f = 16] px$ .  $r_i$  et  $r_f$  sont choisis pour que l'ensemble des cercles soient détectés sur l'image. Une fois le calcul terminé, on obtient une liste de centres de coordonnées  $(a_k, b_k)$  et de rayons  $r_k$  correspondants.
- (3) Des valeurs importantes de l'accumulateur (i.e. des fausses détections) apparaissent souvent dans des zones moins denses entre particules (fig. 4.9 bas). Pour limiter ces fausses détections, on vérifie que chacun des centres  $(a_k, b_k)$  est dans une zone de l'image dont l'intensité est inférieure à un seuil déterminé empiriquement pour chacune des séries d'images enregistrées, ce qui correspond à la véritable présence de particules.

3. Sans modifier la valeur de l'accumulateur pour un centre.

4. L'ordre de grandeur des rayons de nos images.

5. <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/9168>



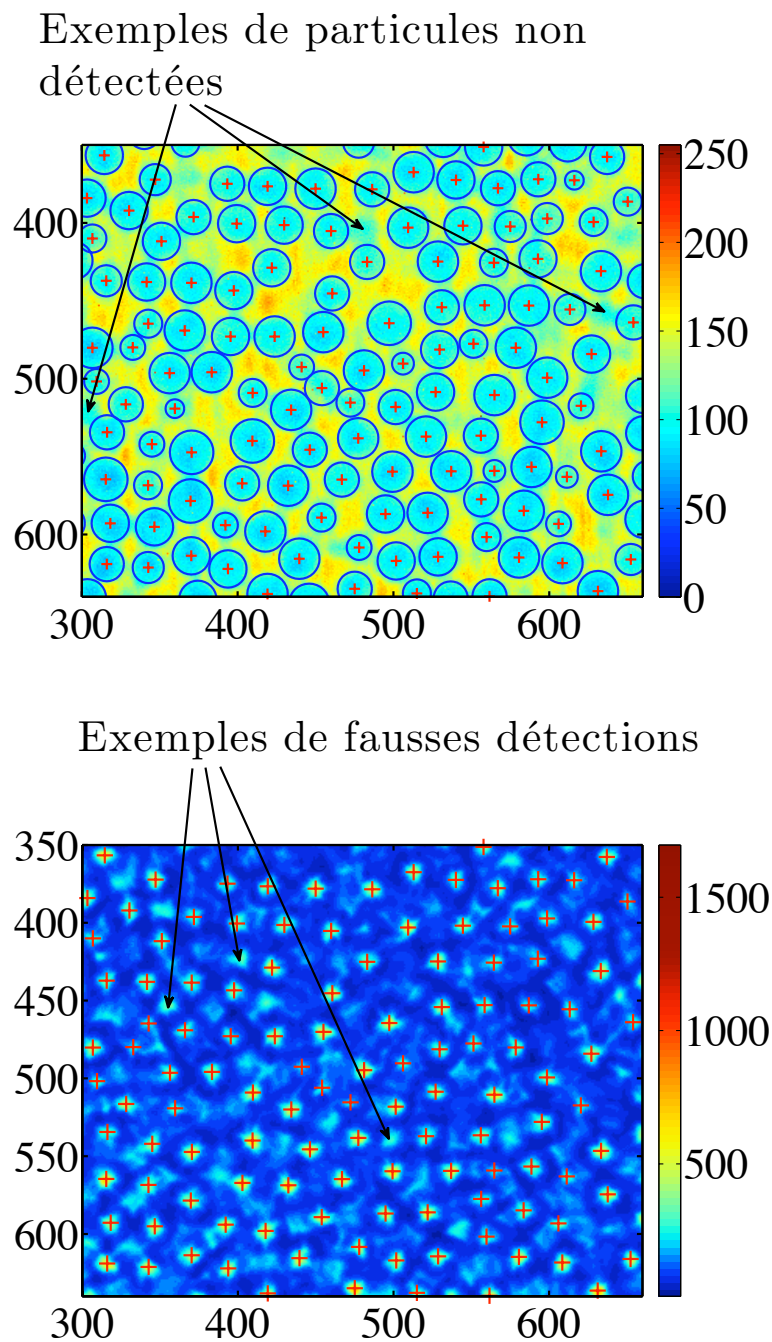


FIG. 4.9 – Haut : Image en fausse couleur de particules d'une suspension  $\Phi = 0.55$ . Les zones en rouge correspondent au fluide entre les particules et les zones en bleu aux particules. Croix rouges : centres détectés. Cercles bleus foncés : cercles détectés. Flèches : exemples de particules non détectées. Bas : image de l'accumulateur. Croix rouges : centres détectés. Flèches : exemples de fausses détections filtrées par l'étape (3) de la procédure. Axes en pixels.

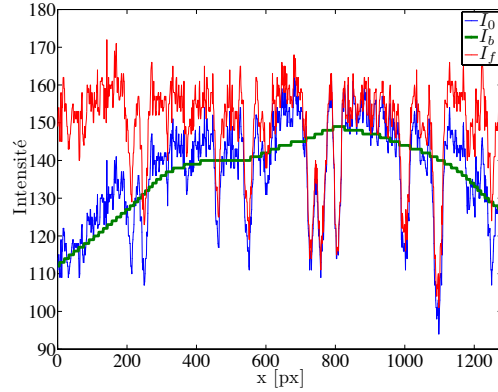


FIG. 4.10 – Variation spatiale d'intensité sur une ligne, d'une image de suspension de fraction volumique  $\Phi = 0.10$ .  $I_0$  (bleu) : image non traitée.  $I_b$  (vert) : image filtrée par un filtre Gaussien passe-bas de taille caractéristique 50 px.  $I_f = \frac{I_0}{k \times I_b}$  (rouge) : image normalisée.

### 4.3.3 Estimation des erreurs dans la détection

**Erreur sur le nombre** Pour estimer le nombre de particules non détectées, on compte manuellement les particules d'une image. On trouve alors que le taux de particules manquées est inférieur à 3% (voir par exemple la fig. 4.9 haut).

La fréquence des fausses détections après l'étape (3) est très faible et les erreurs interviennent essentiellement près des parois des cylindres. Elles sont inférieures à 1%.

**Erreur sur les positions** La position des centres des particules est obtenue par détection des maximum locaux de l'accumulateur. Le calcul du centroïde permet d'obtenir les coordonnées avec une résolution de 0.1 pixel. Une évaluation de l'erreur sur une image test de 100 disques de rayons 10 pixels aléatoirement distribués, donne un écart moyen de position inférieur à 0.1 pixel entre les centres "vrais" et les centres calculés. Lors de cette évaluation, on constate que des erreurs de position de l'ordre de 30% du rayon peuvent se produire lorsque les cercles sont tronqués par les bords de l'image. Par la suite, ces particules sont donc exclues du calcul.

**Erreur sur les rayons** Pour estimer l'erreur sur les rayons, nous allons comparer une distribution surfacique de rayons déduite d'une série d'images d'une suspension de fraction volumique 0.55, à la distribution de rayons attendue pour une coupe 2D de sphères.

Remarquons tout d'abord qu'à l'échelle des photos, la distribution de sphères peut-être considérée comme monodisperse. La distribution de taille mesurée précédemment (fig. 4.1) et convertie en pixels sur une image donne un rayon moyen  $\bar{R} = a = 14.2 \text{ px}$ , et une

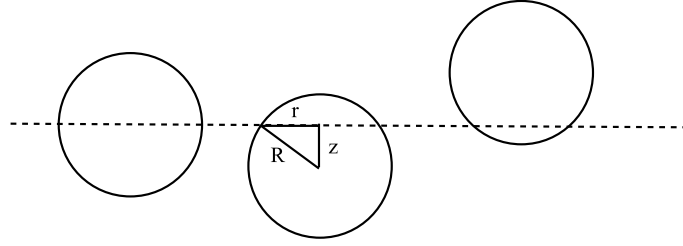


FIG. 4.11 – L'intersection d'un plan de coupe (ligne brisée) et d'une suspension de sphères de même rayon  $R$ , est formée par un ensemble de cercles de rayon  $r \leq R$ . Si la suspension est isotrope, la distance  $z$  entre le plan et le centre d'une sphère est uniformément répartie entre 0 et  $R$ .

polydispersité (7.5%) d'environ 1 pixel. La résolution des rayons de la procédure THC étant aussi de l'ordre de 1 pixel, la suspension peut alors être considérée comme monodisperse à cette échelle.

En supposant que la nappe laser d'épaisseur  $30 \mu\text{m} \sim \frac{1}{3}\bar{R}$  est assimilable à un plan d'épaisseur nulle, la distribution surfacique d'une suspension aléatoirement dispersée peut facilement être déduite de l'hypothèse de la monodispersité de la distribution volumique<sup>6</sup> [Pomeau 1983]. Soit  $R$  le rayon des sphères dans la suspension. La section de cette suspension par un plan produit un ensemble de disques de rayons  $r \leq R$  (fig. 4.11). Si  $z$  est la distance entre le plan et le centre d'une sphère, alors :

$$z = \sqrt{R^2 - r^2} \quad (4.4)$$

et la distribution normalisée des rayons dans le plan de coupe,  $p(r)$ , est telle que :

$$p(r)dr = p(z)dz \quad (4.5)$$

La coupe étant aléatoire et la suspension non ordonnée,  $z$  est uniformément distribué entre 0 et  $R$  :

$$p(z) = \frac{1}{R} \quad (4.6)$$

Des relations 4.4, 4.5 et 4.6, on déduit :

$$p(r) = \frac{r}{R\sqrt{R^2 - r^2}} \quad (4.7)$$

La fig. 4.12 présente la distribution théorique de la relation 4.7. La valeur  $R = 13.2px$  est choisie pour que la distribution théorique s'ajuste au mieux à la distribution expérimentale.

6. Notons que l'opération inverse, i.e la déduction de propriétés volumiques à partir des propriétés surfaciques, est connue sous le nom de stéréoscopie.

tale déduite de la procédure THC appliquée à 2420 images d'une suspension de fraction volumique 0.55. Remarquons que  $2.7 \times 10^6$  particules sont utilisées pour obtenir ce résultat, et qu'aucune différence n'est notée avec la distribution calculée pour un lot contenant deux fois moins d'images.

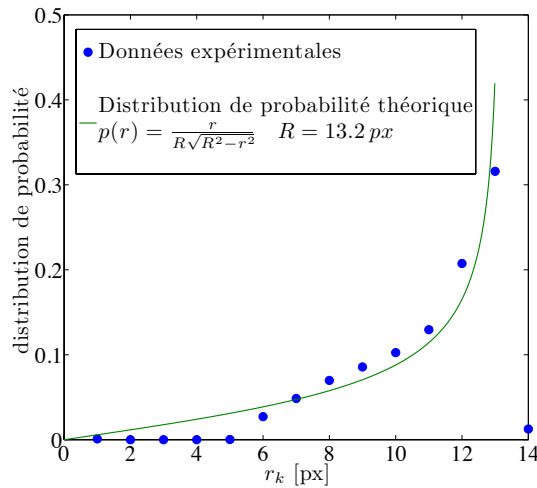


FIG. 4.12 – *Distribution de probabilité des rayons.* (•) : Données issus du traitement de  $2.7 \times 10^6$  rayons détectés sur 2420 images d'une suspension de fraction volumique 0.55. Chaque point correspond à la probabilité de trouver un rayon discret  $r_k$  dans une image. (Ligne) : Distribution théorique monodisperse :  $p(r) = \frac{r}{R\sqrt{R^2 - r^2}}$  avec  $R = 13.2 px$ .

La faible quantité de rayons 14 pixels détectés et l'extrémum pour  $r_k = 13 px$ , s'accorde bien avec une vision de distribution monodisperse de sphère de rayon de l'ordre de 13 pixels. La différence entre cette valeur et le rayon moyen attendu  $a = 14.2 px$  peut être expliquée par une sous évaluation de la taille des particules par la procédure de détection.

L'annulation de la distribution pour  $r \leq 5 px$  met en évidence un effet de coupure dans la détection. Cet effet est sans incidence pour la mesure de la microstructure car comme nous le verrons, seules les particules de plus grand rayon apparent sont prises en compte dans les calculs.

La valeur expérimentale, inférieure à la valeur théorique du cas monodisperse pour  $r_k = 13 px$  et supérieure pour  $r_k = 12 px$ , indique un probable effet combiné de l'épaisseur non nulle de la nappe et de la polydispersité de la suspension. Un élargissement de la nappe réduit le contraste de lumière et diminue la taille observée des sphères, alors que la polydispersité élargit la distribution.

**Conclusion** La procédure de détection des particules par une transformée de Hough circulaire et basée sur la procédure de T. Peng se révèle d'une très bonne efficacité pour les

suspensions concentrées. Le nombre d'erreurs de détection est inférieur à 3%. Les positions des centres ont une résolution d'un dixième de pixel, sauf pour les particules tronquées sur les bords où l'erreur est de l'ordre de 30% du rayon. Enfin les rayons sont bien détectés, mais systématiquement sous évalués de l'ordre de 1 pixel.

A titre de comparaison, la procédure décrite dans Rampall *et al.* (1997), basée sur un principe de filtrage de phase, bien que plus rapide, s'avère moins reproductible sur les images obtenues avec notre dispositif expérimental. En effet, avec le filtre de phase, il est difficile d'obtenir les bons jeux de paramètres pour, à la fois ne pas "oublier" des particules, et bien détecter leur rayon.

#### 4.4 Technique de PTV

La connaissance des positions de toutes les particules à intervalle de temps régulier permet le suivi des trajectoires individuelles. Cette procédure connue sous le nom de *Vélocimétrie par suivi de particules* (PTV) permet d'accéder aux trajectoires et aux vitesses des sphères dans l'écoulement. Les procédures *Matlab* utilisées<sup>7</sup> ont été initialement développées par Crocker et Grier (1996). Les  $N$  particules étant indiscernables, le suivi se fait en minimisant  $\sum_{i=1}^N \delta_i^2$  sur l'ensemble des chemins possible entre les particules d'une image et de la suivante, où  $\delta_i$  est la distance parcourue par la particule  $i$  sur le chemin évalué. Pour limiter le nombre d'occurrences dans le programme, les connexions possibles sont limitées à une taille caractéristique  $L$ . La condition de convergence de l'algorithme est donnée par le critère [Crocker & Grier 1996]

$$\delta_i < L < \Delta l / 2 \quad (4.8)$$

avec  $\Delta l$ , la distance typique entre centres de particules.

Pour une fraction volumique donnée, ce critère impose une vitesse de rotation maximale au rotor. En reprenant l'expression de la distance entre centres de particules

$$\frac{\Delta l}{2} = a \left[ 2 - \left( \frac{\Phi}{\Phi^*} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \quad (4.9)$$

dérivée par Mills et Snabre (2009) qui suppose un blocage ( $\Delta l = 2a$ ) pour  $\Phi = \Phi^*$ , on obtient comme expression pour la vitesse angulaire maximale,

$$\frac{\Omega_{max}}{f} = \frac{a}{R_i} \left[ 2 - \left( \frac{\Phi}{\Phi^*} \right)^{\frac{1}{3}} \right] \quad (4.10)$$

Dans la gamme de fractions volumiques étudiées et pour une fréquence d'échantillonnage

7. <http://physics.georgetown.edu/matlab/>

de la caméra  $f \approx 10 \text{ Hz}$ ,  $\Omega_{max} \sim 5.10^{-1} \text{ rpm}$  ( $\dot{\gamma}_{max} \sim 0.2 \text{ s}^{-1}$ ).

Les profils de vitesse et les quantités rhéologiques locales sont déduits des vitesses particulières en suivant un protocole identique à celui décrit en §2.3.

Notons qu'il est aussi possible d'extraire les fluctuations de vitesse des trajectoires. Cependant les quelques résultats obtenus n'ont pas été suffisamment contrôlés pour être présentés ici, et une étude systématique reste à faire.

## 4.5 Construction de la fonction de distribution de paires

L'importance de la PDF pour la rhéologie des suspensions n'est pas abordée ici et est discutée en §5.1. Seule la procédure de calcul à partir des positions et rayons détectés par la THC est traitée.

### 4.5.1 Définitions

L'arrangement spatial des sphères dans une suspension est décrit par la densité de probabilité conditionnelle  $P(\mathbf{x}_1 + \mathbf{r}_{12} | \mathbf{x}_1)$ .  $P(\mathbf{x}_1 + \mathbf{r}_{12} | \mathbf{x}_1) dV$  est la probabilité de trouver le centre d'une particule (2) dans un élément de volume  $dV$  centré en  $\mathbf{x}_1 + \mathbf{r}_{12}$  sachant qu'une particule (1) se trouve en  $\mathbf{x}_1$ . Pour des grandes distances  $\mathbf{r}_{12}$ , les probabilités de présence de deux particules en  $\mathbf{x}_1$  et  $\mathbf{x}_1 + \mathbf{r}_{12}$  sont décorréelées, et  $P(\mathbf{x}_1 + \mathbf{r}_{12} | \mathbf{x}_1)$  devient asymptotiquement égale au nombre moyen de particules par unité de volume dans la suspension. On appelle fonction de distribution de paire (PDF), la densité de probabilité conditionnelle normalisée par la densité volumique de particules, et on la note  $g_{12}(\mathbf{r}_{12})$ . Par commodité d'écriture nous supprimerons les indices 1 et 2,  $g_{12}(\mathbf{r}_{12}) = g(\mathbf{r})$ .

En coordonnées cylindriques,  $g(\mathbf{r}) = g(\rho, \theta, z)$ , où  $\theta$  est l'angle orienté dans le plan défini par la vitesse (axe  $x$ ) et le gradient de vitesse de l'écoulement (axe  $y$ ) ( $\theta = 0$  est défini dans la direction de la vitesse),  $\rho$  est la distance entre centres de particules projetée dans le plan et  $z$  la coordonnée dans la direction de la vorticit e.

### 4.5.2 Proc edure num erique de construction de la fonction de distribution de paires

La distribution de paires en deux dimensions est construite en appliquant le principe suivant :

- (1) Pour chaque paire de particules,   partir des coordonn ees calcul ees par la proc edure THC, on d etermine le vecteur  $\boldsymbol{\rho}_{12}$ , position de la particule (2) par rapport   la particule (1) (fig. 4.13).  $\boldsymbol{\rho}_{12}$  est param etr e par la distance  $\rho$  entre (1) et (2) et par l'angle  $\theta$  relatif   la direction de la vitesse de l' coulement moyen en (1) . Le plan  $(\rho, \theta)$  est uniform ement

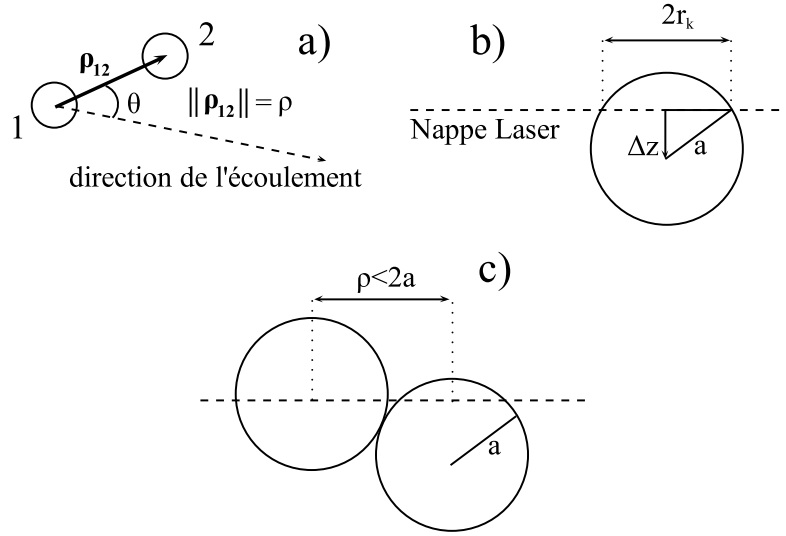


FIG. 4.13 – a) La position relative d'une particule (2) par rapport à (1) est définie par rapport à la vitesse en (1) de l'écoulement moyen.  $\rho$  et  $\theta$  sont les paramètres intervenant dans la fonction de distribution de paire. b) Pour un rayon apparent  $r_k$ , le centre de la particule de rayon  $a$  est décalé de  $\Delta z$  par rapport au centre de la nappe laser. c) Les centres des cercles de coupe de deux sphères rigides s'approchent à moins de  $2a$ .

échantillonné par des cellules de surface élémentaire  $dS = \Delta\rho \times \rho\Delta\theta$ , avec  $\Delta\rho = 1\text{ px}$  et  $\Delta\theta = 2\pi/80\text{ rad} = 4.5^\circ$ .

- (2) Pour tous les couples  $(\rho, \theta)$  du plan d'échantillonnage, on compte le nombre  $N(\rho, \theta)$  de paires présentes dans une cellule  $[\rho - \Delta\rho/2, \rho + \Delta\rho/2[$ ,  $[\theta - \Delta\theta/2, \theta + \Delta\theta/2[$ .
- (3) On peut donc évaluer la probabilité de trouver une paire dans une cellule centrée sur  $(\rho, \theta)$ , où la particule (1) est prise comme centre du référentiel,

$$P(\rho, \theta)dS = \frac{N(\rho, \theta)}{N_1} \quad (4.11)$$

avec  $N_1$  le nombre de particules (1) prise en compte dans le calcul. En normalisant par la surface de la cellule d'échantillonnage et par la densité surfacique moyenne de l'image  $n_{0S}$ , on obtient

$$g(\rho, \theta) = \frac{1}{n_{0S}} \frac{N(\rho, \theta)}{N_1 \rho \Delta\rho \Delta\theta} \quad (4.12)$$

- (4) Pour obtenir la fonction de distribution de paire 2D, on moyenne la quantité 4.12 sur l'ensemble des images.

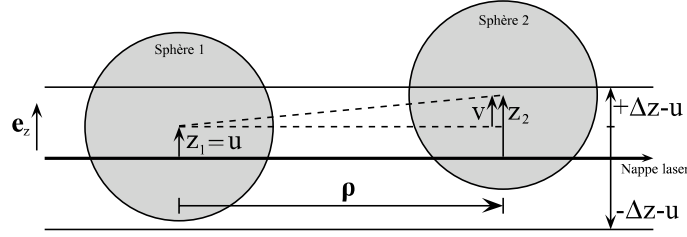


FIG. 4.14 – Définition des paramètres de la relation entre la PDF-2D mesurée et la PDF-3D.  $z_1$  et  $z_2$  sont les distances entre les centres des sphères et la nappe laser. Seules les sphères dont les centres sont compris entre  $-\Delta z$  et  $+\Delta z$  sont prises en compte dans le calcul de la PDF-2D.

### 4.5.3 Lien entre la PDF-2D et la PDF en volume

En supposant une nappe infiniment fine, et en tenant compte que seules les particules situées au plus à la distance  $\Delta z$  de la nappe sont considérées, la PDF-2D s'écrit [Rampall *et al.* 1997] :

$$g_{2D}(\boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{(2\Delta z)^2} \int_{-\Delta z}^{+\Delta z} du \int_{-\Delta z-u}^{+\Delta z-u} g(\boldsymbol{\rho} + v\mathbf{e}_z) dv \quad (4.13)$$

$u$ ,  $v$  et  $\Delta z$  sont définis sur la fig. 4.14. Remarquons que  $g_{2D}$  est bien normalisée :

$$g \rightarrow 1 \Rightarrow g_{2D} \rightarrow \frac{(2\Delta z) \times (2\Delta z)}{(2\Delta z)^2} = 1 \quad (4.14)$$

Rappelons que, d'après le principe de la procédure numérique de calcul de la PDF-2D (§4.5.2),  $g_{2D}(\rho, \theta)$ <sup>8</sup> correspond à une moyenne sur une cellule d'échantillonnage centrée en  $(\rho, \theta)$ .

### 4.5.4 Sélection des particules prises en compte dans le calcul

La valeur de  $\Delta z$  est fixée par le plus petit rayon apparent de l'image (fig. 4.13-b). Or, plus  $\Delta z$  est important, plus la PDF-2D mesurée s'écarte de la PDF-3D.

Rampall *et al.* (1997) abordent ce problème et proposent une déconvolution de la distribution mesurée pour corriger cet effet de projection. En effet, ils parviennent à montrer que  $g_{2D}$  est le produit de convolution radiale de  $g_{3D}$  et d'une fonction de  $\rho$ . En conséquence, l'effet principal sur la fonction 2D mesurée est l'élargissement du pic de la distribution centrée en  $\rho \approx 2a$  [Rampall *et al.* 1997]. La fig. 4.13-c illustre cet élargissement ; notamment, les centres de deux cercles de coupe de sphères situées à deux  $\Delta z$  différents peuvent s'approcher à moins de  $2a$ . Dans ce travail nous n'avons pas réalisé cette déconvolution, mais

8. L'indice 2D est omis dans la suite du manuscrit.



Gamme de rayons apparents sélectionnés (en px)	[6; 13]	[10; 13]	[12; 13]	13
Nombre de particules dans la statistique	238500	163600	102100	60800
$\rho^*/a$	$1.93 \pm 0.07$	$2.07 \pm 0.07$	$2.07 \pm 0.07$	$2.14 \pm 0.07$
$g^*$	1.25	1.33	1.33	1.25
Moyenne/écart-type de $g$ pour $4.3 < \rho/a < 6.7$	$1.007 \pm 0.015$	$0.982 \pm 0.018$	$0.987 \pm 0.024$	$0.991 \pm 0.041$

TAB. 4.1 – Détails des résultats de  $g(\rho)$  présenté sur la fig. 4.15. Les quantités étoilées font référence aux pics des différentes distributions de paires.

nous avons restreint le calcul aux plus grands rayons apparents, ce qui a pour conséquence la diminution de  $\Delta z$ . A titre indicatif, Rampall *et al.* précisent qu'en prenant l'ensemble de leurs particules détectées, ils trouvent  $\Delta z = 0.8a$ . Dans notre cas, les rayons apparents de l'ensemble des particules correspondent à l'intervalle :  $6 \pm 1 \leq r_k \leq 13 \pm 1$  px (fig. 4.12), i.e.  $\Delta z/a = \sqrt{14^2 - 5^2}/14.2 \approx 0.9$ . On s'attend donc à un effet de projection un peu plus important. En prenant uniquement le rayon maximum de la distribution présentée sur la fig. 4.12,  $r_k = 13$  px  $\pm 1$  px, l'intervalle d'intégration est alors fixé à  $\Delta z = \sqrt{14^2 - 12^2} \approx 7$  px  $\sim 0.5a$ .

La fig. 4.15 présente les fonctions de distribution de paires  $g(\rho)$  calculées pour différentes gammes de rayons apparents sélectionnés dans l'image.  $g(\rho)$  est la PDF-2D radiale obtenue en moyennant la PDF-2D sur  $\theta$ , définie par la relation :

$$g(\rho) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} g(\rho, \theta) d\theta \quad (4.15)$$

Les valeurs précisées dans la légende indiquent la borne inférieure de la gamme, la borne supérieure étant fixée à 13 px. L'étude est menée sur 1000 images d'une suspension de fraction volumique 0.1, cisailée en imposant une vitesse  $\Omega = 1$  rpm au rotor. Les images enregistrées à une fréquence de  $1$  min<sup>-1</sup> sont supposées statistiquement indépendantes. Le tableau 4.1 rapporte l'ensemble des résultats de  $g$ . Les quantités étoilées font références aux pics des différentes distributions de paires. La convergence des PDF vers des valeurs proches de 1 est bien vérifiée. De plus, on constate bien que plus la gamme de rayons sélectionnés s'affine, plus le pic de la distribution est étroit. Enfin, la valeur et la position des pics de  $g$  mesurés ne semblent pas dépendre de la polydispersité apparente si celle-ci n'est pas trop grande.

Dans la suite de ce travail, le choix d'une gamme de rayons dépend du nombre d'images acquises. Lorsque la PDF est construite avec un nombre important d'images on sélectionne le seul rayon maximum, tandis que lorsque ce nombre est plus réduit, on prend généralement la gamme [11; 13] px. On retiendra que la seule conséquence notable sur  $g(\rho)$  est l'élargissement du pic en  $\rho/a \approx 2$ .

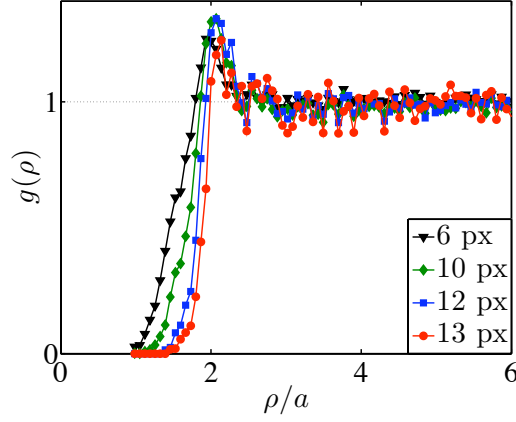


FIG. 4.15 – Fonctions de distribution de paires 2D calculées pour différentes gammes de rayons sélectionnés dans le champ de l’image. Les valeurs indiquées en légende représentent la limite inférieure de la gamme. La limite supérieure est fixée à 13 px. Fraction volumique de la suspension étudiée :  $\Phi = 0.10$ .

#### 4.5.5 Effet de la taille de l’échantillonnage radial

L’échantillonnage radial utilisé dans cette étude est  $\Delta\rho/a \sim 7 \times 10^{-2}$  (i.e. 1 px)<sup>9</sup>. La fig. 4.16 présente l’influence de cet échantillonnage sur le calcul de la PDF où quatre valeurs différentes de  $\Delta\rho$  sont utilisées pour le calcul de  $g$ . On ne note aucune augmentation significative de l’amplitude du pic de probabilité, ou de sa finesse mais seulement une augmentation des fluctuations lorsque  $\Delta\rho$  diminue.

#### 4.5.6 Effets de bord et normalisation

Le caractère fini de l’image pose des problèmes de sous-évaluation de la probabilité pour des valeurs de  $\rho$  importantes.

La fig. 4.17 illustre l’effet de taille finie d’une image (abcd) sur le calcul de la PDF. Pour un vecteur  $\rho_{12}$  donné, une particule (1b) de la zone blanche B est associée à une particule (2b) de la zone grisée C qui, hors de l’image, n’est donc pas comptée. Ce défaut de particules contribue à une sous évaluation de  $g(\rho)$  qui devient inférieure à 1 aux grandes valeurs de  $\rho$ . Pour éliminer cet effet, on ne sélectionne que les particules tests (1a) présentes dans la zone hachurée A et dont la particule (2a) associée est bien dans l’image (abcd).

En combinant tous les angles  $\theta$  pour une valeur de  $\rho$ , on définit une zone centrale dans

9. Il est important de noter que cette valeur d’échantillonnage est supérieure d’un ou deux ordres de grandeurs aux valeurs d’échantillonnages proposées dans les simulations numériques présentes dans la littérature.

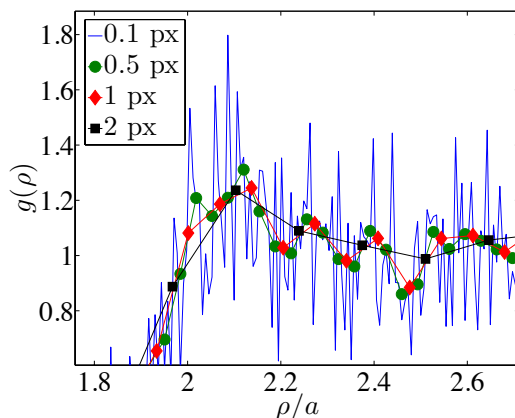


FIG. 4.16 – Influence de la valeur de l'échantillonnage radiale sur la mesure de l'amplitude du pic de probabilité. Légende : valeur de  $\Delta\rho$ .

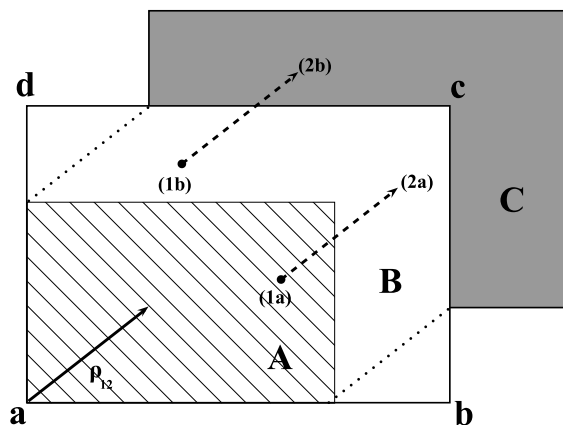


FIG. 4.17 – Illustration de l'effet de taille finie d'une image (abcd) sur le calcul de la PDF.

l'image dans laquelle on sélectionne les particules tests (1) pour le calcul de la fonction de distribution de paire (fig. 4.18).

La plupart des caractéristiques pertinentes de la microstructure concernant les premiers, voire les deuxièmes plus proches voisins, tous les calculs sont réalisés jusqu'à la limite  $\rho/a = 7$ .

La fig. 4.19 et le tableau 4.2 illustrent l'influence de la distance entre les bords de l'image et la zone A (i.e.  $k.a$ ) sur la convergence de  $g$ . Alors que la statistique des paires rapprochées n'est pas affectée par la définition de cette zone, l'écart entre les résultats augmente après  $\rho/a = 4$ . La moyenne de  $g$  sur le plateau indique qu'au delà de  $k = 5$ , la limite jusqu'à  $\rho/a = 7$  n'est plus affectée et converge bien vers 1. On fixe arbitrairement  $k = 8$  pour nos mesures.

Remarquons que des alignements de particules sont constatés proche des cylindres pour des fractions volumiques importantes (fig. 4.7). Pour éviter que la fonction de distribution

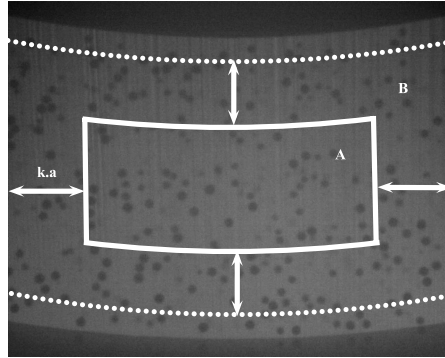


FIG. 4.18 – La zone A correspond à la zone de sélection des particules tests (1). En pointillés, zone d'exclusion proche des cylindres ( $3a$ ). Les limites de la zone A sont situées à  $k.a$  des bords.  $\Phi = 0.10$ .

Distance bord $\leftrightarrow$ zone d'exclusion	0	$2a$	$5a$	$11a$
Moyenne/écart-type de $g$ pour $4.3 < \rho/a < 6.7$	$0.927 \pm 0.032$	$0.952 \pm 0.032$	$1.004 \pm 0.036$	$1.006 \pm 0.040$

TAB. 4.2 – Détails des résultats de  $g(\rho)$  présenté sur la fig. 4.19

de paire ne soit affectée par ces effets de bords qui seront abordés dans le chapitre suivant, on fixe une zone d'exclusion qui limite la zone B à une distance  $3a$  des cylindres.

L'ensemble des particules test (1) est donc sélectionné dans une portion de l'image dont les bords sont situés à  $11a$  des cylindres et  $8a$  des bords de l'image. Et les particules (2) associées ne sont considérées que si elles sont éloignées d'au moins  $3a$  des parois des cylindres.

## 4.6 Conclusion

Des particules de PMMA de  $170 \mu m$  de diamètre sont dispersées dans l'huile minérale Cargille rendu fluorescente par la dissolution de Nile Blue A. Une nappe laser uniforme de  $30 \mu m$  d'épaisseur sur l'ensemble du gap, permet d'illuminer le fluide entre les sphères. Les particules solides apparaissent donc comme des disques sombres dans le plan de coupe. Une procédure de détection par Transformation de Hough Circulaire, permet la localisation de plus de 96% des centres des particules du plan, avec une précision de l'ordre de 0.1 pixel. La mesure des rayons est, quant à elle, réalisée avec une précision de 1 pixel. La connaissance des positions relatives des particules et de leurs rayons apparents, rend alors possible le calcul de la fonction de distribution de paire dans le plan jusqu'à des concentrations de l'ordre de 0.55. La grande stabilité de l'huile minérale, donc de la transparence de la suspension,

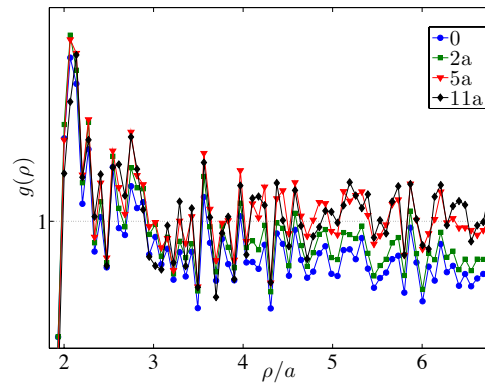


FIG. 4.19 – Influence de la zone d'exclusion des particules tests (1) sur la PDF d'une suspension  $\Phi = 0.10$ . Les valeurs en légende représentent la distance  $k.a$  définie sur la fig. 4.18.

permet des durées d'expériences importantes, pouvant s'étendre jusqu'à plusieurs jours. Ceci est d'une grande importance pour l'étude des suspensions diluées, car à cause du nombre limité de particules, il est nécessaire d'acquérir un grand nombre d'images pour obtenir une statistique suffisante à une bonne interprétation des mesures. Un suivi des particules par PTV permet aussi d'accéder aux vitesses locales à partir desquelles il est possible de déduire la viscosité locale. Les mesures simultanées des quantités rhéologiques locales et de la PDF va permettre de faire le lien entre la microstructure et la variation de viscosité induite par l'inversion du sens de cisaillement.

# Mesures de la fonction de distribution de paires des suspensions non-browniennes

---

## 5.1 Introduction

L'étude de la réponse locale d'une suspension lors d'une inversion de cisaillement a permis de mettre en évidence l'importance de la contribution de la viscosité structurale,  $\eta_{struct} = \eta_{plateau} - \eta_{min}$ , à la viscosité d'une suspension concentrée non-brownienne. Notamment,  $\eta_{struct}$  émerge des interactions entre particules distribuées dans une microstructure asymétrique par rapport au plan  $(\nabla v, \nabla \times \mathbf{v})$  induite par l'écoulement. Une comparaison entre des simulations numériques en dynamique stokésienne et nos mesures a, de plus, permis de vérifier que  $\eta_{min}$  trouve son origine dans une distribution spatiale de particules quasi isotrope pour laquelle la dissipation visqueuse est minimale. Ces régimes transitoires montrent toute l'importance de la microstructure sur le comportement rhéologique d'une suspension. Depuis les travaux de Batchelor et Green (1972) et de Gadala-Maria et Acrivos (1980), de nombreuses études numériques étudient la relation entre cette distribution spatiale et la rhéologie, et notamment le lien entre l'apparition de contraintes normales et l'anisotropie de la microstructure. Les travaux numériques de Bossis et Brady en dynamique stokésienne [Bossis & Brady 1984], ont pour la première fois mis en évidence que la fonction de distribution de paires d'une suspension de sphères non confinée soumise à un cisaillement simple possède une dépendance angulaire. En plus de cette anisotropie, une asymétrie par rapport au gradient de vitesse apparaît aussi en présence d'une interaction non-hydrodynamique entre les sphères [Bossis & Brady 1984] [Wilson & Davis 2000] [Wilson & Davis 2002] [Drazer *et al.* 2004].

Ce chapitre présente dans une première partie, une mesure de la fonction de distribution de paires (PDF), notée  $g(\rho, \theta)$  par la suite, d'une suspension de fraction volumique 0.05 dans le plan de cisaillement. Cette PDF est anisotrope et asymétrique par rapport à la direction du gradient de vitesse avec, dans le quadrant de récession, une zone de déplétion proche de l'axe de la vitesse. L'influence de la rugosité sur l'interaction entre les

sphères est quantitativement mise en évidence grâce à la bonne résolution de la mesure, et la distribution de paires expérimentale est bien retrouvée par un modèle de trajectoires de paires de particules. La deuxième partie présente la dépendance de  $g(\rho, \theta)$  en fonction de la fraction volumique pour  $0.05 < \Phi < 0.56$ . Les mesures indiquent que l'inclinaison de la zone de déplétion par rapport à la direction de la vitesse dépend de  $\Phi$ . En parallèle, au-delà d'une fraction volumique de 0.45, apparaît une surintensité dans la direction de la vitesse traduisant l'existence de doublets orientés préférentiellement sur les lignes de courant. Une structuration en bandes proche des cylindres de la cellule d'écoulement est aussi observée. Enfin, dans un dernier temps, nous revisitons l'expérience d'inversion de cisaillement pour lesquelles des mesures simultanées de rhéologie locale et de microstructure sont présentées.

## 5.2 Mesure de l'asymétrie de la microstructure d'une suspension diluée induite par l'écoulement de sphères dures rugueuses

Des études numériques [Drazer *et al.* 2002] [Drazer *et al.* 2004] ont montré l'influence des forces non hydrodynamiques sur la PDF. Ces interactions qui peuvent en particulier provenir de la présence de rugosités sont modélisées par un potentiel de sphères dures dont la portée  $r_c$  peut varier. Drazer *et al.* montrent que, pour des suspensions diluées, lorsque  $r_c \rightarrow 0$ , la PDF est anisotrope et symétrique par rapport à la direction du gradient de vitesse. Cette anisotropie se manifeste essentiellement par une déplétion de particules dans la direction de la vitesse. L'existence de cette zone déplétée est imputée à l'absence de doublets permanents qui, s'ils étaient présents auraient tendance à s'aligner dans la direction de l'écoulement. Quand  $r_c$  augmente, la PDF devient asymétrique, avec une inclinaison par rapport à la direction de la vitesse de l'axe de la région déplétée dans le quadrant de récession. L'angle d'inclinaison dépend de  $r_c$ .

Les études expérimentales sont plus rares et leurs résultats moins clairs. Les premières PDF dans les suspensions semi-diluées ont été mesurées par Husband et Gadala-Maria (1987). Leurs résultats, obtenus pour des fractions volumiques comprises entre 0.01 et 0.05, font apparaître une PDF approximativement symétrique par rapport au gradient de vitesse et une surintensité en  $\rho \approx 2a$  dans la direction de la vitesse. Notons que ce résultat est en contradiction avec les résultats numériques présents dans la littérature, mais qu'il doit être relativisé compte tenu de la mauvaise résolution du dispositif expérimental. A leur tour, Rampall *et al.* (1997) mesurent la PDF dans des suspensions de fraction volumique 0.05–0.15. Contrairement à Husband et Gadala-Maria, ils mesurent une déplétion de particules au voisinage de l'axe de la vitesse, légèrement inclinée dans le quadrant de récession. Ils proposent d'expliquer la surintensité observé par Husband et Gadala-Maria le long des lignes

de vitesse par des forces colloïdales attractives qui favorisent la formation de doublets. Par ailleurs, Rampall *et al.* proposent un modèle de PDF basé sur l'influence de la rugosité sur les trajectoires de paires de particules pour expliquer l'asymétrie mesurée. Leur raisonnement s'appuie sur l'expression de la fonction de distribution de paires obtenue par Batchelor et Green (1972) pour des sphères lisses

$$g_{BG}(r) = \frac{1}{1 - A(r)} \exp\left(\int_r^\infty \frac{3}{s} \frac{B(s) - A(s)}{1 - A(s)} ds\right) \quad (5.1)$$

où A et B sont les fonctions de mobilité [Kim & Karrila 1991]. Rappelons que l'expression (5.1) s'applique seulement dans des régions où une trajectoire de particule provient de l'infini et que dans un cisaillement simple, il existe une région d'orbites fermées, d'extension infinie, proche de la direction de la vitesse, dans laquelle la PDF ne peut être évaluée. Dans le plan de cisaillement, les particules dont la distance entre centres  $r$  est inférieure à  $r_c = 2.00004$ , possèdent une orbite fermée [Arp & Mason 1977][Da Cunha & Hinch 1996]. Rampall *et al.* supposent que la rugosité empêche les particules de s'approcher à une si courte distance. Un tel mécanisme est à l'origine de l'apparition de la zone déplétée en particules dans le plan de cisaillement et permet d'expliquer l'inclinaison de la PDF par rapport à la direction de l'écoulement (fig. 5.1). En effet, toutes les particules situées dans le quadrant de compression, dont la distance d'approche est inférieure à la taille typique des rugosités, se retrouvent distribuées dans le quadrant de dilatation sur une trajectoire limite située en dehors de l'axe de la vitesse.

Dans cette section nous nous intéressons à la mesure de la fonction de distribution de paires d'une suspension semi-diluée de fraction volumique 0.05. La résolution élevée de nos mesures nous permet de retrouver les résultats des travaux mentionnés précédemment mais aussi de mettre en évidence une zone de forte concentration dans le quadrant de dilatation au-dessus de la région déplétée, image de la trajectoire limite à laquelle nous avons fait allusion plus haut. Cette zone constitue une véritable signature de la présence de rugosités à la surface des particules. Un modèle de construction de PDF par les trajectoires de paires de particules permet d'interpréter cette observation et de retrouver la rugosité mesurée par AFM avec un très bon accord.

### 5.2.1 Fonction de distribution de paires expérimentales

La fig. 5.2 représente la fonction de distribution de paires d'une suspension de fraction volumique 0.05. La mesure est réalisée à  $\Omega = 1rpm$ , correspondant à un nombre de Reynolds  $Re \approx 4 \times 10^{-6}$  et un nombre de Péclet  $Pe \approx 6 \times 10^7$ . Elle a nécessité un enregistrement de 50000 images à une fréquence de 0.33 image par seconde pendant plus de 41 heures. Pour limiter les effets de bords, les particules 1 (§4.5) de la PDF ont été sélectionnées dans une



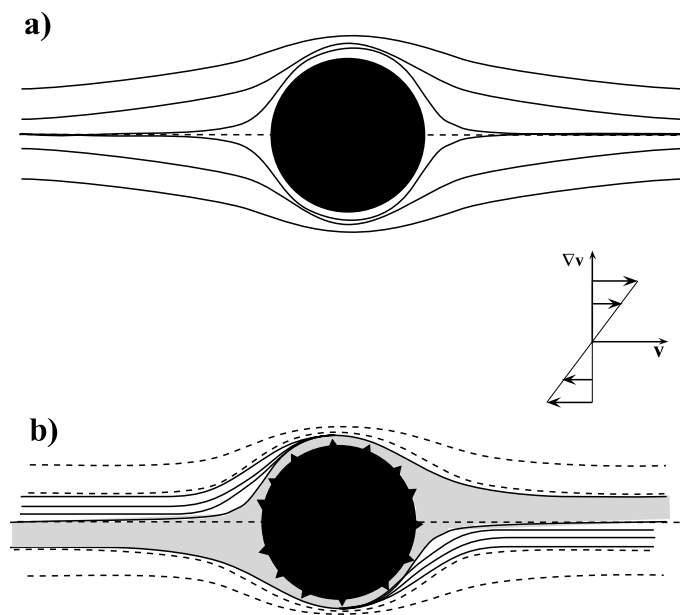


FIG. 5.1 – Schéma illustrant l'apparition d'une zone de déplétion dans le plan de cisaillement. a) Écoulement symétrique autour d'une sphère lisse. b) Asymétrie due aux rugosités de surface. Les lignes pleines représentent des trajectoires perturbées par la rugosité et les lignes brisées des trajectoires non perturbées. La zone grisée est la région déplétée en particules.

boîte distante de  $8a$  des deux cylindres et des cadres de l'image. Seuls les rayons de 13 pixels ont été retenus dans le calcul –  $\Delta z_{exp}$  est donc de l'ordre de  $0.5a$ . Aux fluctuations près, la PDF présentée n'est pas différente de celle calculée à partir des 10000 premières images, indiquant que tout état transitoire peut être négligé. Remarquons que la durée nécessaire pour briser les doublets liés de particules, i.e. une durée de collision, de l'ordre de  $1/\dot{\gamma} \approx 3 s$ , est négligeable devant le temps de l'expérience.

Comme l'ont déjà mesuré Rampall *et al.* (1997), la PDF est bien anisotrope et présente une zone de faible densité à peu près centrée sur la direction de la vitesse. Plus précisément, la fig. 5.3 montre une déplétion située autour d'un angle  $\theta \approx 6^\circ$  dans le quadrant de dilatation. Pour  $\rho \gtrsim 3a$  et en dehors de la zone de déplétion, la PDF est isotrope et on trouve une valeur proche de 1. De même, on retrouve l'augmentation de la concentration proche de la surface de contact  $\rho \approx 2a$  [Batchelor & Green 1972a]. La valeur mesurée en cette position dans la direction qui la maximise (autour de  $90^\circ$ ), en dehors de la zone d'exclusion, est  $1.8 \pm 0.2$ . De plus, la bonne résolution de la mesure, permet pour la première fois de mettre en évidence dans le quadrant récessif, au dessus de l'axe de la vitesse, une zone en forme de *queue* dans laquelle la concentration de particules est plus importante.

### 5.2.2 Comparaison avec le modèle de *trajectoires de paires*

La forme de cette *queue* rappelle la trajectoire relative de deux particules influencée par leur rugosité (fig. 5.4). Remarquons qu'un modèle de trajectoires modifiées par la rugosité permet, dans les suspensions diluées, de calculer la diffusion induite par un cisaillement [Da Cunha & Hinch 1996], et de déterminer analytiquement la fonction de distribution de paires [Wilson & Davis 2000] [Wilson & Davis 2002]. Le modèle de contact de sphères dures décrit dans Da Cunha et Hinch repris dans cette étude est le suivant. Notons  $\epsilon a$  la longueur des rugosités. A une distance entre centres de  $(2 + \epsilon)a$  les particules sont en contact, et l'approche de deux sphères dans un cisaillement simple est stoppée par les rugosités de surface. Les particules sont supposées rester en contact tant que les interactions hydrodynamiques sont compressives. Une fois que les interactions hydrodynamiques agissent en traction, le contact est perdu et les particules suivent leurs trajectoires classiques. Il existe ainsi deux types de trajectoires : celles qui n'atteignent pas la surface de contact, pour lesquelles la vitesse n'est pas affectée par les rugosités, et celles qui coupent la surface de contact, pour lesquelles on annule la vitesse radiale tant qu'elles se situent dans le quadrant compressif. Une fois le quadrant récessif atteint, la force de contact cesse et toutes les particules quittent la surface de contact sur la même trajectoire limite dépendante du paramètre  $\epsilon$ . Ainsi, en aval de l'écoulement, aucune particule ne peut se situer entre cette trajectoire limite (fig. 5.4) et l'axe x. Par conservation, toutes les particules en contact sont, en aval de l'écoulement, redistribuées sur cette trajectoire, augmentant d'autant la densité sur cette *queue* et

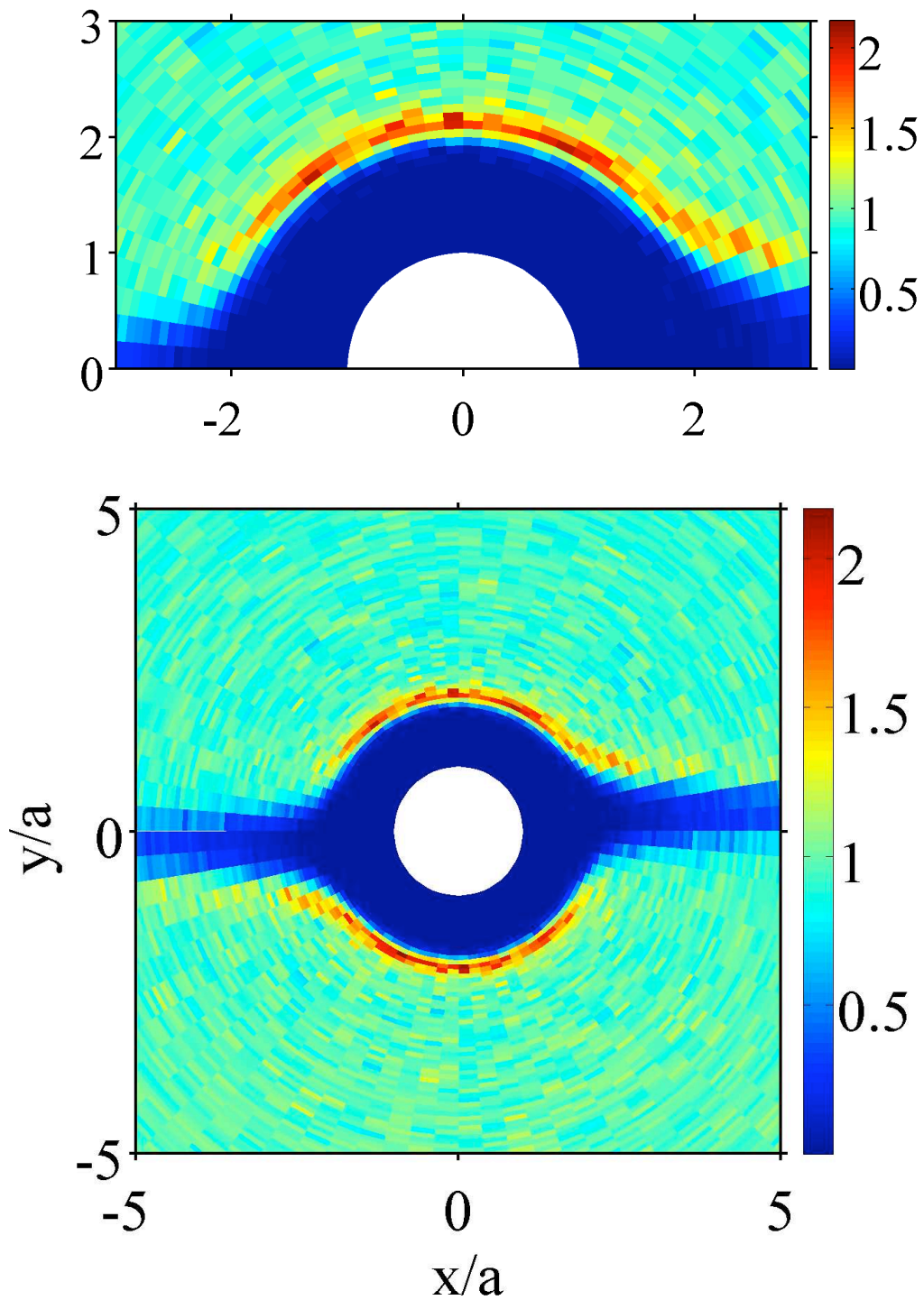


FIG. 5.2 – Fonction de distribution de paires dans le plan  $(v, \nabla v)$ .  $\Phi = 0.05$ . Les quadrants de compression sont définis par  $xy < 0$ . Haut : zoom de la région centrale et de la queue de concentration.

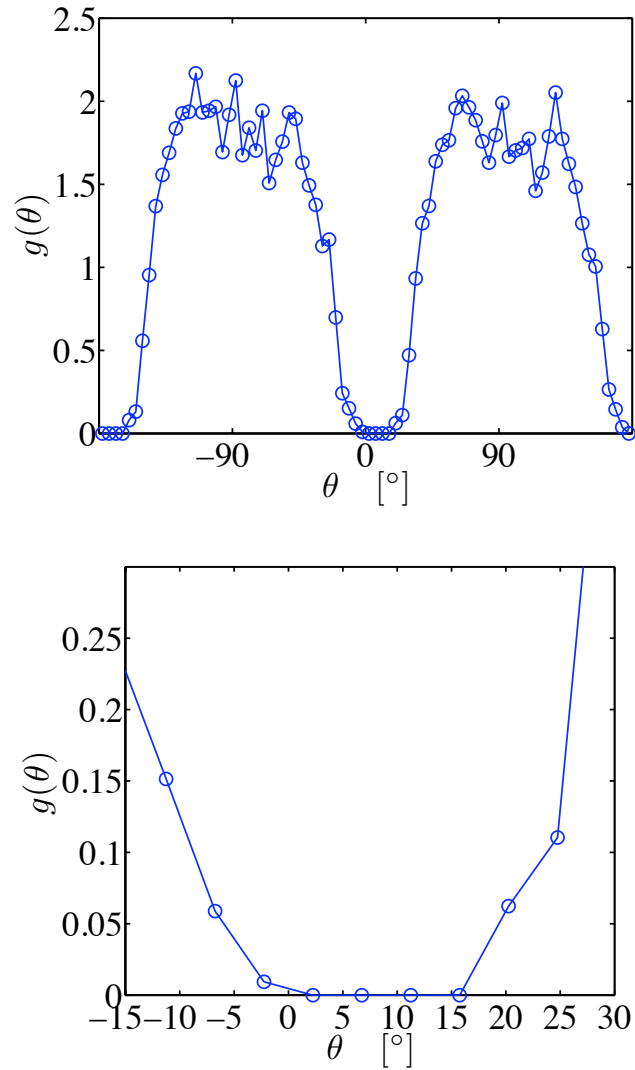


FIG. 5.3 – PDF intégrée sur l'intervalle  $\rho \in [1.97a, 2.04a]$ . L'amplitude de cet intervalle correspond à un échantillonnage radial  $\Delta\rho = 1px$ .  $\theta = 0^\circ$  est la direction de la vitesse. Le quadrant compressif est  $\theta \in [90^\circ, 180^\circ]$ . Bas : Zoom de la zone déplétée.

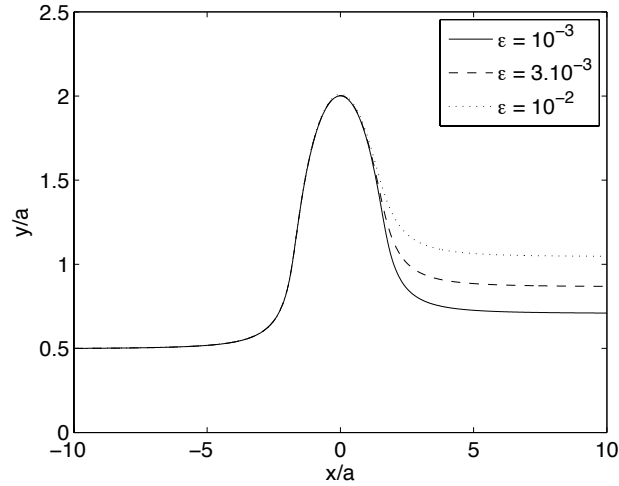


FIG. 5.4 – Trajectoires depuis le point  $x/a = -10$ ,  $y/a = 0.5$ ,  $z/a = 0$  pour différentes valeurs de rugosité  $\epsilon a$ .

faisant apparaître une asymétrie de la PDF par rapport au gradient de vitesse.

Ce modèle de rugosité<sup>1</sup> permet de calculer numériquement la vitesse relative de deux particules et d'en déduire une PDF en fonction de  $\epsilon$ . La PDF-2D numérique présentée sur la fig. 5.5 est obtenue pour une rugosité  $\epsilon a = 255 \text{ nm}$  et pour un domaine d'intégration suivant la vorticit   $\Delta z_{num} = 0.5a$  (eq. 4.13). Ces param tres sont choisis pour s'adapter le mieux possible   la mesure. Une trajectoire limite, aussi repr sent e, est centr e sur la *queue* de concentration dans le quadrant de dilatation. La fig. 5.6(a) montre les PDF exp rimentale et num rique en fonction de  $\theta$  autour de deux positions  $\rho$ . L'accord est bon, notamment concernant la position de la *queue* en  $\theta \approx 29^\circ$ .  $g(\rho, \theta)$  en fonction de  $\rho/a$  est repr sent e sur la fig. 5.6(b) pour trois valeurs de  $\theta$ . Exp rience et mod le correspondent bien dans la direction du gradient de vitesse ( $85.5^\circ < \theta < 90^\circ$ ) et dans une direction proche de la zone de d pl tion ( $18^\circ < \theta < 22.5^\circ$ ). Cependant, dans la direction de la vitesse ( $0^\circ < \theta < 4.5^\circ$ ),   la diff rence du r sultat exp rimental, le mod le pr dit l'absence totale de particule. Comme Rampall *et al.* (1997) l'ont indiqu , ceci est probablement la cons quence d'interactions   plusieurs corps qui redistribuent une partie des particules sur la trajectoire limite.

### 5.2.3 Discussion

La mesure pr cise de la fonction de distribution de paires d'une suspension de fraction volumique 0.05 en  coulement de cisaillement simple, a permis   travers un mod le simple de contact [Da Cunha & Hinch 1996] [Wilson & Davis 2000] [Wilson & Davis 2002], de mettre

1. Voir [Blanc *et al.* 2011a] en annexe pour plus de d tails.

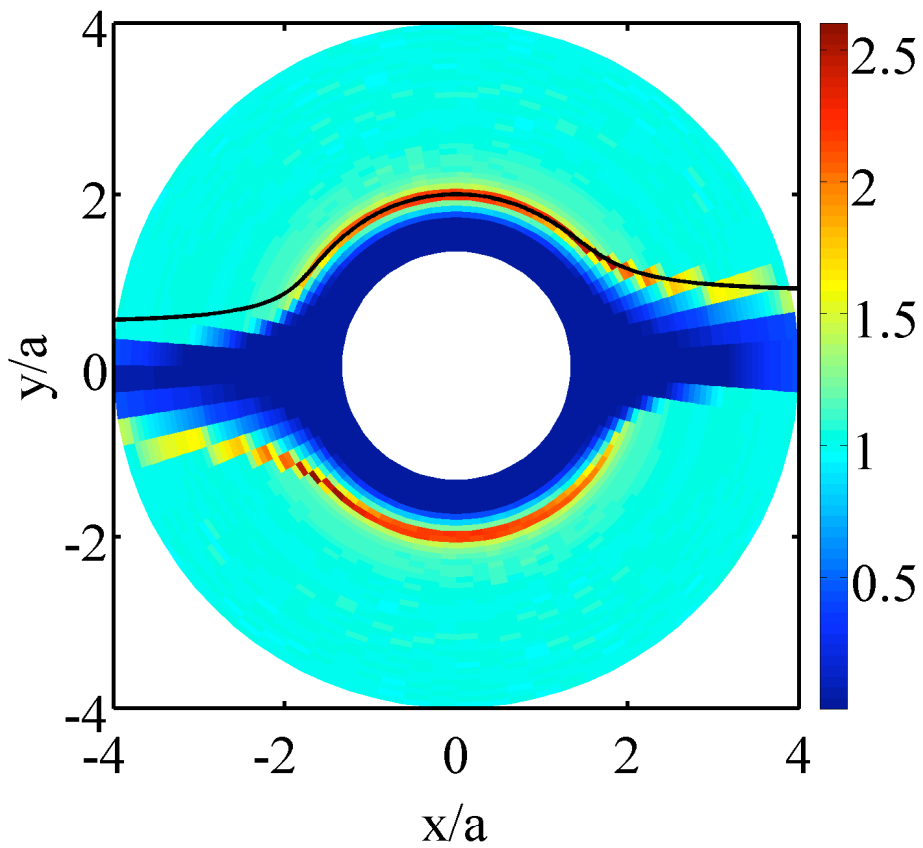


FIG. 5.5 – PDF calculée à partir des trajectoires de particules. La rugosité est  $\epsilon = 3.10^{-3}$ . Ligne noire : trajectoire limite dans le plan de cisaillement pour laquelle le contact a lieu.

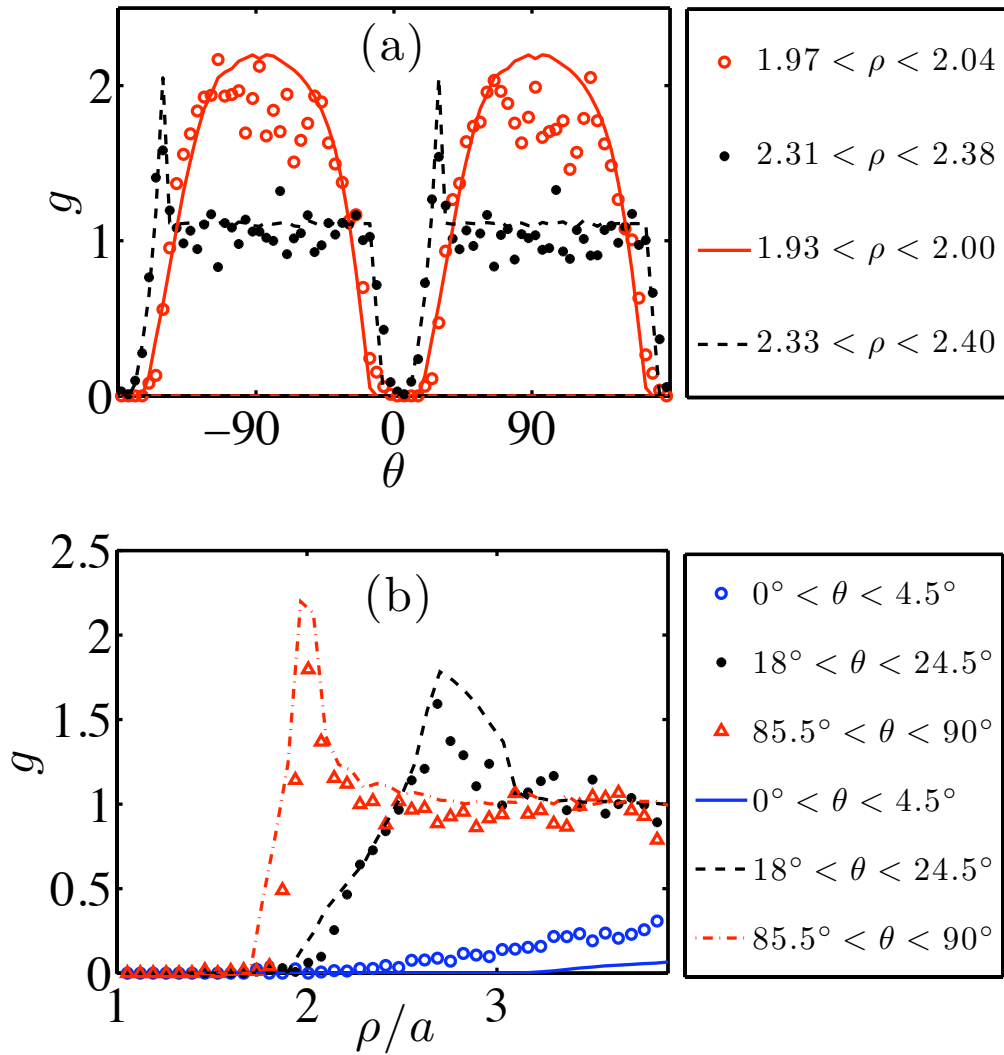


FIG. 5.6 – Données issues des PDF expérimentale (symboles) et numérique (lignes). (a) Moyenne radiale de  $g(\rho, \theta)$  en fonction de  $\theta$  pour différents domaines d'intégration de  $\rho$ . (b) Moyenne angulaire de  $g(\rho, \theta)$  en fonction de  $\rho/a$  pour différents domaines d'intégration de  $\theta$ .

en évidence le lien direct entre la rugosité et l'asymétrie de la PDF.

Le modèle présenté possède deux paramètres ajustables : la rugosité  $\epsilon$  et la largeur d'intégration dans la direction de la vorticit e  $\Delta z$ . Le premier permet d'ajuster la position de la *queue*, tandis que le second joue sur la *finesse* des courbes – une faible valeur de  $\Delta z$  rendant les variations de  $g$  plus marqu ees pour des angles proches de la queue et de la zone de d epl etion (fig. 5.6-a). Une s erie de mesures par AFM (fig. 4.2) a montr e que la rugosit e des particules peut  tre estim ee   environ 200 nm (§4.2.2). Cette mesure est bien coh erente avec celle d eduite du mod ele qui est de l'ordre de 255 nm. Le domaine d'int egration choisi pour s'adapter aux mesures  $\Delta z_{num} = 0.5a$  est le m eme que celui d eduit de la gamme de rayons s electionn es pour le calcul de la PDF  $\Delta z_{exp} = 0.5a$ . Cette  galit e doit cependant  tre consid eree comme un accord d'ordre de grandeur uniquement. En effet, la polydispersit e et la largeur de la nappe laser n' tant pas prises en compte dans le mod ele, on s'attend   un * largissement* de la zone de contact donc de la *queue* de concentration de la PDF exp erimentale, par rapport   la PDF num erique.

Nos r esultats exp erimentaux confirment ainsi les calculs num eriques de Drazer *et al.* et les r esultats exp erimentaux de Rampall *et al.*. La haute r esolution du dispositif exp erimental nous a en outre permis de mesurer l'effet quantitatif de la rugosit e des particules sur la structure de la suspension cisail ee. Enfin, le bon accord entre la PDF mesur ee exp erimentalement et la PDF calcul ee   partir des trajectoires de paires de particules rugueuses [Da Cunha & Hinch 1996] valide la mod elisation des interactions non hydrodynamiques qu'exercent entre elles les particules rugueuses par un potentiel r epulsif de sph eres dures.

### 5.3 Influence de la concentration sur l'asym etrie de la microstructure

Il n'existe   ma connaissance, aucune  tude exp erimentale syst ematique explorant l' volution de l'asym etrie de la fonction de distribution de paires de suspensions de sph eres non-browniennes en fonction de la fraction volumique. C'est cette  tude que je pr esente dans cette section o , dans un premier temps, je met en  vidence une  volution de l'asym etrie des PDF avec  $\Phi$  ainsi que l'apparition d'un pic de probabilit e dans la direction de la vitesse de l' coulement pour  $\Phi > 0.45$ . Puis une  tude d etaill ee des effets de taille finie de l'entrefer permet   la fois de v erifier que les mesures de PDF obtenues dans la r egion centrale du gap ne sont pas perturb ees par la pr esence des parois de la cellule d' coulement, mais aussi de mettre en  vidence une organisation des particules sous la forme de bandes successives parall eles aux parois dont le nombre augmente avec  $\Phi$ .



$\Phi$	$\Omega$ (rpm)	$N_{images}$	$\Delta z/a$	$f$ (Hz)
0.10	1	1000	0.8	1/60
0.15	1	1000	0.6	1/60
0.20	1	1000	0.6	1/60
0.25	1.1	320	0.6	8
0.30	0.7	800	0.6	8
0.35	0.3	1600	0.6	8
0.40	0.56	320	0.6	2
0.45	0.5	360	0.7	6
0.50	0.5	360	0.6	6
0.53	2	68	0.6	0.1
0.55	1	480	0.6	8
0.56	2	67	0.6	0.1

TAB. 5.1 – Nomenclature des différents protocoles de mesures de PDF. Les suspensions de différentes concentrations sont cisailées à une vitesse imposée du rotor  $\Omega$ .  $N_{image}$  correspond au nombre d’images prises en compte dans le calcul.  $\Delta z/a$  dépend de la gamme de rayons sélectionnés dans l’image.  $f$  est la fréquence des flashes d’enregistrements.

### 5.3.1 Résultats

Les fig. 5.7 et 5.8 proposent l’ensemble des résultats de mesures de PDF-2D réalisées sur des suspensions de fractions volumiques comprises entre 0.10 et 0.56 pour lesquelles aucun précisaillement n’est initialement appliqué. Les calculs des PDF présentées sont réalisés avec une zone A de sélection des particules de référence située à  $8a$  de la zone d’exclusion, elle même située à  $3a$  du bord des cylindres (fig. 4.18). Le tableau 5.1 indique le détail des paramètres expérimentaux associés à chacune des suspensions étudiées. Les expériences sont menées à vitesse de rotor imposée, et, pour une fraction volumique donnée, nous vérifions que dans la gamme de vitesse 0.5 – 2 rpm chacune des PDF proposée demeure inchangée.

Le nombre d’images  $N_{images}$  et la fréquence d’échantillonnage du laser  $f$  sont fixés pour qu’à la fois le couple reste constant pendant l’enregistrement (i.e. la déformation cumulée reste inférieure à la déformation typique de la migration pendant une expérience) et que le bruit statistique de la mesure soit faible par rapport aux variations de  $g(\rho, \theta)$ . Ainsi, pour des fractions volumiques inférieures à 0.25, le nombre limité de particules par image (inférieur à une centaine) impose l’enregistrement d’un nombre important d’images pour limiter le bruit statistique. Cependant, à cette fraction volumique, le phénomène de migration étant peu prononcé, la déformation totale n’est pas limitante et les expériences peuvent être menées sur de grandes déformations. Au contraire, pour les plus grandes concentrations (plus de 500 particules par image), c’est la déformation qui est limitante, et il est nécessaire, soit d’augmenter la fréquence d’échantillonnage, soit de diminuer le nombre d’images.

Chacune des PDF présente une zone de forte concentration proche de  $\rho/a = 2$  dans le quadrant de compression (définie par  $xy < 0$ ) et une zone relativement déplétée en particules

dans le quadrant de dilatation. Alors que cette zone déplétée est proche de l'axe de la vitesse pour des fractions volumiques inférieures à 0.20, elle semble s'incliner vers l'axe de dilatation ( $\theta = -135^\circ, 45^\circ$ ) lorsque la fraction volumique augmente. Pour des fractions volumiques supérieures à 0.40, il existe une surintensité proche de l'axe de la vitesse ( $\theta = 0^\circ, 180^\circ$ ). Remarquons que sur les PDF-2D, apparaît clairement une zone de déplétion secondaire dans le quadrant de compression pour  $\Phi \geq 0.45$  autour de  $\theta = -45^\circ, 135^\circ$ .

Ces observations apparaissent plus précisément sur les fig. 5.9 et 5.10 où sont représentées les fonctions  $g(\theta)$ , moyennes radiales des différentes PDF pour  $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ , pour l'ensemble des fractions volumiques. Alors que pour  $\Phi < 0.20$ , l'angle de déplétion  $\theta^*$ , défini par le minimum de  $g(\theta)$ , semble invariant – pour  $\Phi > 0.20$ ,  $\theta^*$  augmente jusqu'à environ  $45^\circ$ . De plus, dans le quadrant de compression et pour  $\Phi > 0.40$ , apparaît clairement une surintensité proche de la direction de la vitesse, dont la valeur augmente avec la fraction volumique.

On peut estimer l'angle de déplétion  $\theta^*$  en interpolant les différentes fonctions  $g(\theta)$  par une parabole dans un domaine centré autour du minimum. Pour limiter une éventuelle influence de la projection de la PDF ou de la moyenne radiale, les valeurs de  $\theta^*$  sont déterminées sur des fonctions  $g(\theta)$  calculées pour  $\Delta z/a = 0.5$  (i.e.  $r_k = 13px \pm 1px$ ) et moyennées radialement pour  $\rho \in [1.97, 2.04]$  (i.e.  $\Delta\rho = 1px$ ). Sur la fig. 5.11 sont tracés les angles de déplétion en fonction des différentes fractions volumiques. Cette représentation permet d'identifier qualitativement deux zones –  $\Phi < 0.20$  pour laquelle  $\theta^* = 6^\circ \pm 1^\circ$  –  $\Phi \geq 0.20$  pour laquelle  $\theta^*$  augmente progressivement jusqu'à la valeur  $\theta^* = 42.5^\circ \pm 2.5^\circ$  pour  $\Phi = 0.56$ .

### 5.3.2 Étude des effets de bords sur la mesure des PDF

En §4.5.6, nous avons étudié l'influence du caractère fini de l'image sur les PDF radiales  $g(\rho)$ . Pour s'affranchir des effets de bords, il s'est avéré nécessaire de sélectionner les particules de références 1 dans une zone restreinte de l'image suffisamment éloignée des limites de l'image. Cette étude menée sur une suspension de fraction volumique 0.10 est basée uniquement sur des arguments géométriques. Pour des suspensions très concentrées, des effets physiques d'influence des parois au-delà des premiers voisins peuvent modifier le comportement collectif des particules dans l'écoulement proche des parois des cylindres et influencer le résultat des différentes PDF présentées ci-dessus.

Pour étudier ces éventuels effets de bords, on fait varier les positions et tailles des zones A et B définies au §4.5.6. La fig. 5.12 présente les différents paramètres intervenant dans l'étude. La zone A est définie par son centre  $r_c$ , sa largeur  $2ka$ , la distance entre ses bords latéraux et les bords de l'image,  $\xi a$ , et la distance entre ses bords inférieur et supérieur et la zone B,  $\zeta a$ . La zone B est, soit définie par  $\zeta a$ , soit par les distances  $\chi a$  et

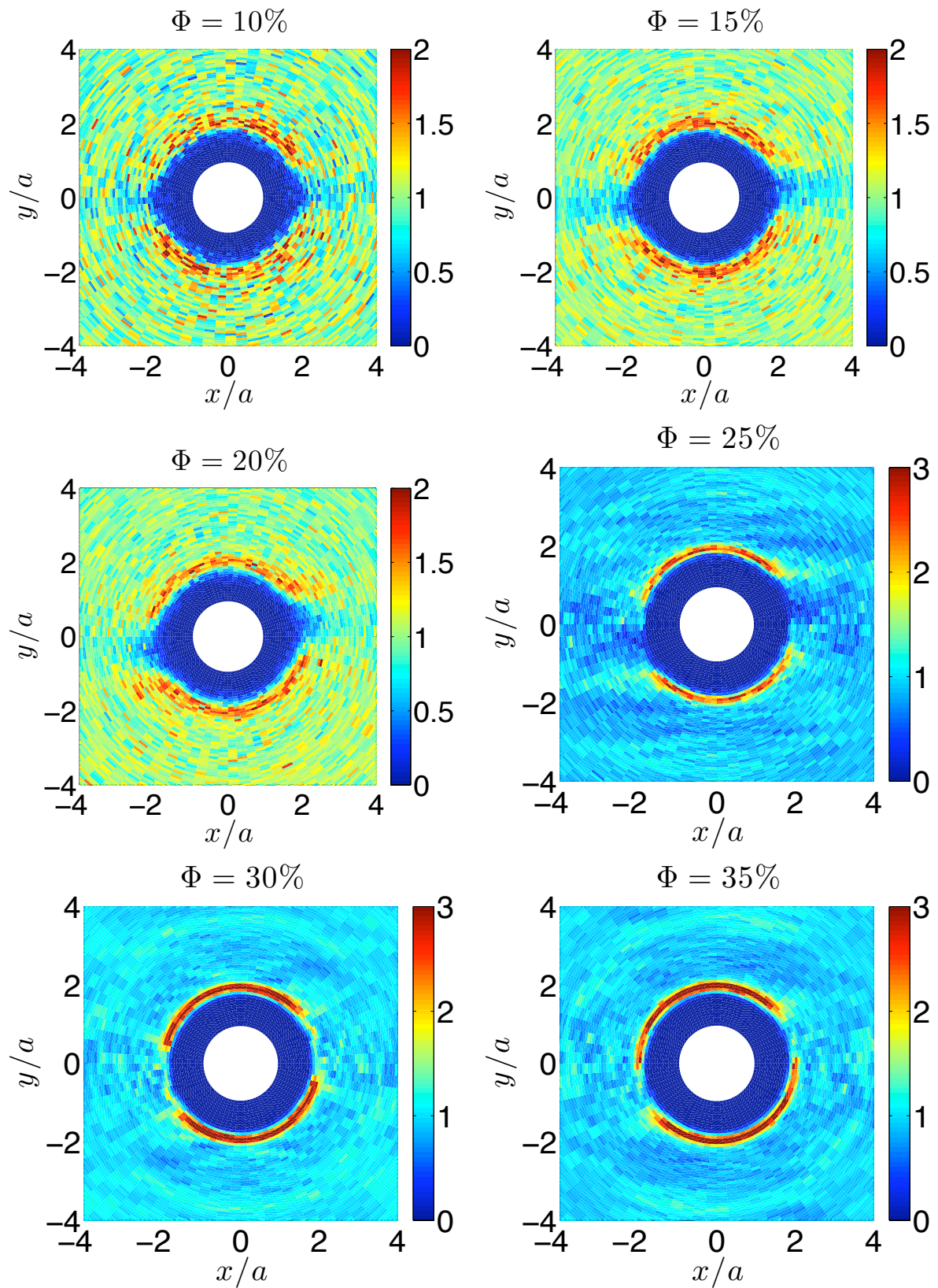


FIG. 5.7 – PDF mesurées en fonction de la fraction volumique.  $xy < 0$  définit la zone de compression.  $\Phi \in [0.10, 0.35]$

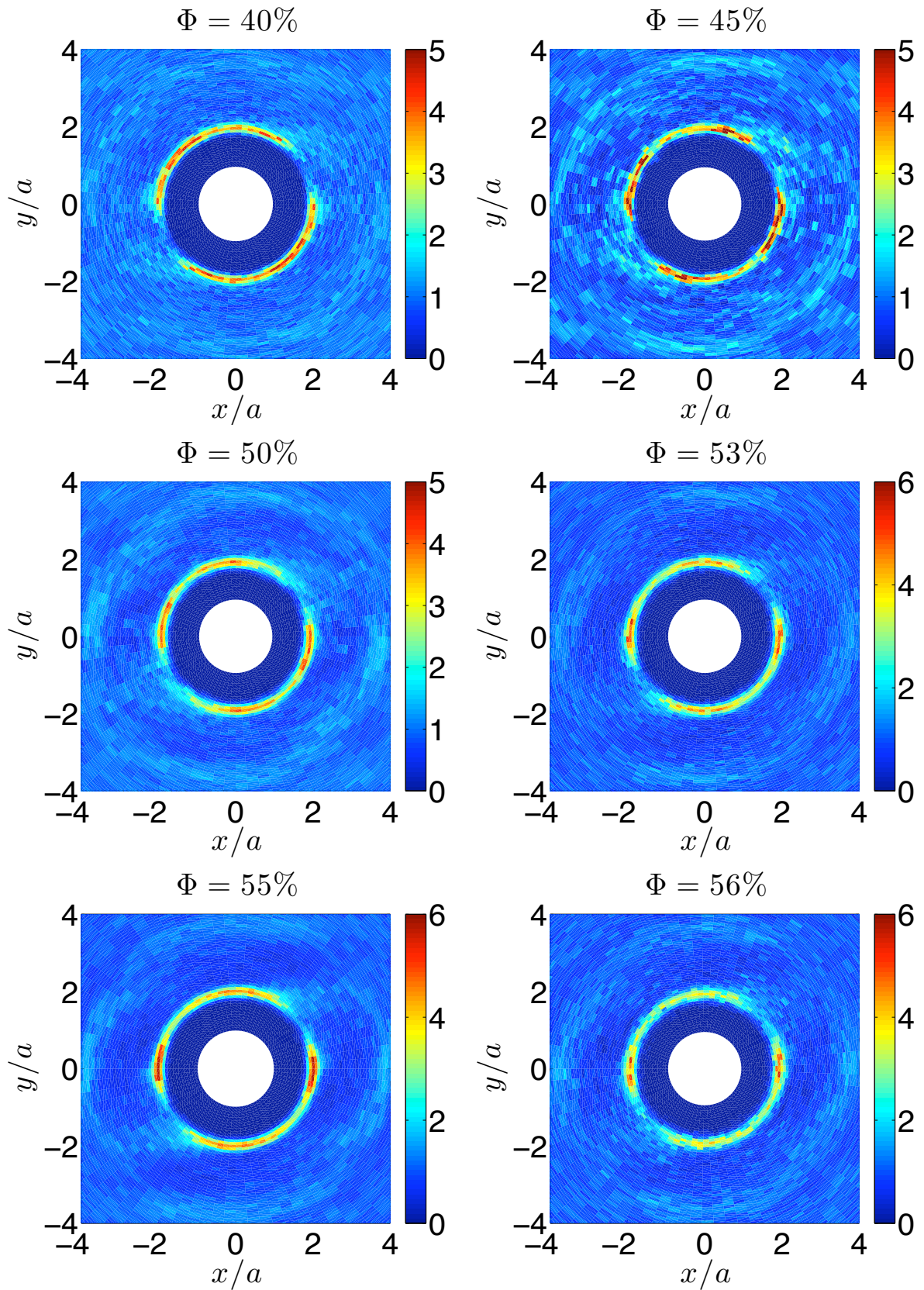


FIG. 5.8 – PDF mesurées en fonction de la fraction volumique.  $xy < 0$  définit la zone de compression.  $\Phi \in [0.40, 0.56]$

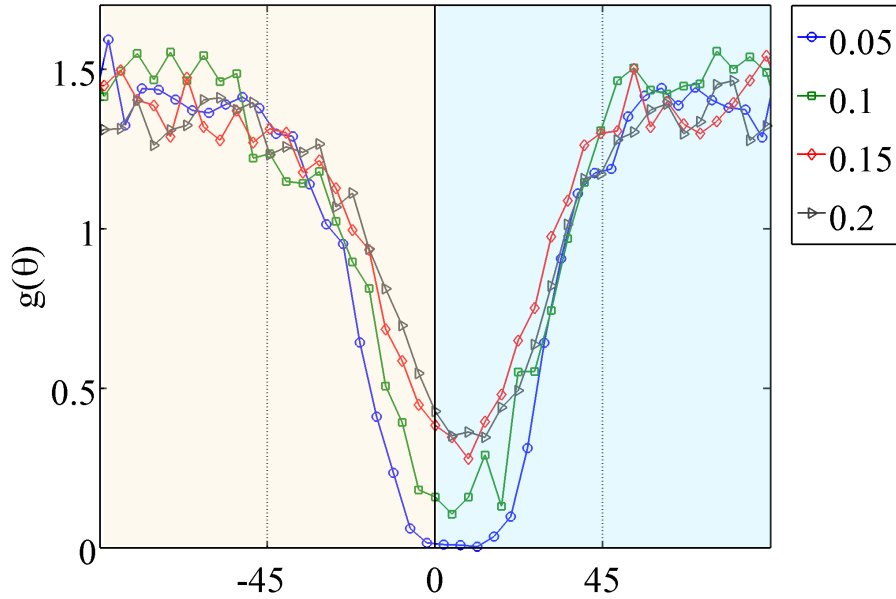


FIG. 5.9 – Fonction de distribution de paires en fonction de  $\theta$  (en  $^\circ$ ) pour  $\Phi \in [0.05, 0.20]$ .  $g(\theta)$  est la moyenne radiale de  $g(\rho, \theta)$  pour  $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Zone de couleur sable : quadrant de compression. Zone de couleur bleue : quadrant de dilatation.  $\theta = 0^\circ$  : direction de la vitesse.

$\chi'a$  entre les cylindres et les bords supérieur et inférieur de B, de sorte que la condition  $2\kappa + 2\zeta + \chi + \chi' = e/a \sim 58.8$  soit toujours respectée.

**Effet des parois.** Yeo et Maxey (2010) ont étudié, à l'aide d'une simulation numérique en *Force Coupling Method*, l'influence des parois de la cellule d'écoulement sur la microstructure de suspensions non-browniennes et non-colloïdales. Pour des fractions volumiques comprises entre 0.2 et 0.4 et des largeurs d'entrefer  $e$  comprises entre  $10a$  et  $30a$ , ils montrent qu'on peut distinguer trois régions dans lesquelles la microstructure est différente. Une zone proche des parois où les particules s'organisent en couches parallèles à la direction de  $\mathbf{v}$ , une zone centrale dans laquelle les bords n'ont pas d'influence et une zone intermédiaire où la microstructure présente des caractéristiques empruntées aux deux autres zones. Ils mettent en évidence que la largeur de la zone influencée par les parois et de la zone intermédiaire dépend seulement de la fraction volumique et n'est pas sensible à la largeur de l'entrefer dès que celui-ci dépasse une valeur critique. Pour  $\Phi = 0.40$  Yeo et Maxey trouvent que les particules s'organisent en 4 ou 5 bandes successives parallèles à chacune des parois.

Les fig. 5.13–5.14–5.15 représentent pour la suspension  $\Phi = 0.53$  précédemment étudiée, les PDF calculées avec les paramètres des zones A et B suivants :  $\kappa = 1$ ,  $\chi = \chi' = 0$ ,  $\xi = 1$ ,  $r_c = na$  avec  $n \in [1, 2, 3, 4, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 54, 55, 56, 57, 58]$ . La zone B est étendue à

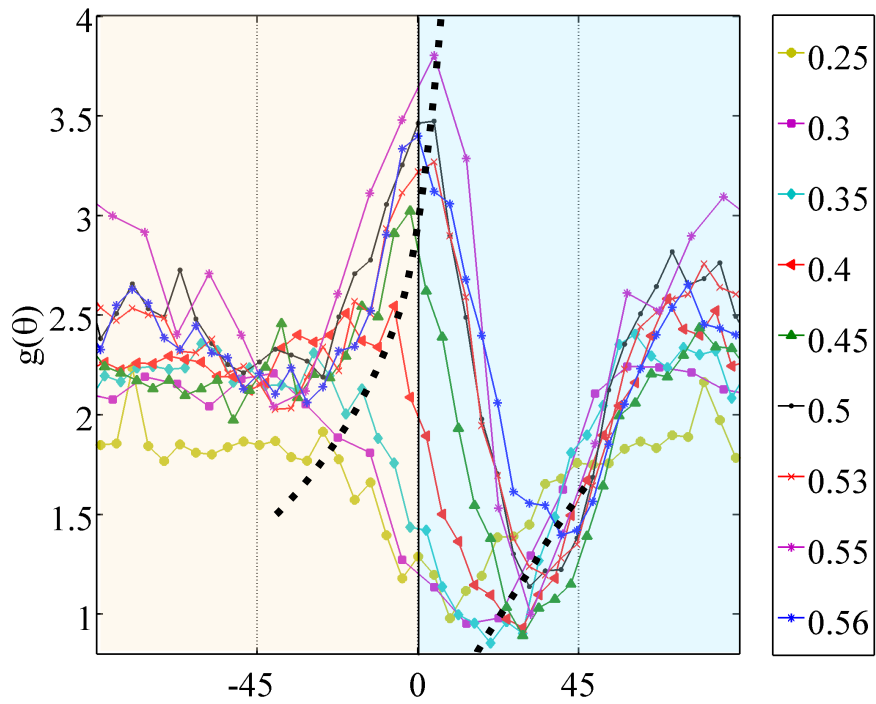


FIG. 5.10 – Fonction de distribution de paires en fonction de  $\theta$  (en  $^\circ$ ) pour  $\Phi \in [0.25, 0.56]$ .  $g(\theta)$  est la moyenne radiale de  $g(\rho, \theta)$  pour  $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Les lignes pointillées sont des indications pour suivre l'évolution de l'angle de déplétion et du pic de sur-intensité proche de la direction de la vitesse. Zone de couleur sable : quadrant de compression. Zone de couleur bleue : quadrant de dilatation.  $\theta = 0^\circ$  : direction de la vitesse.

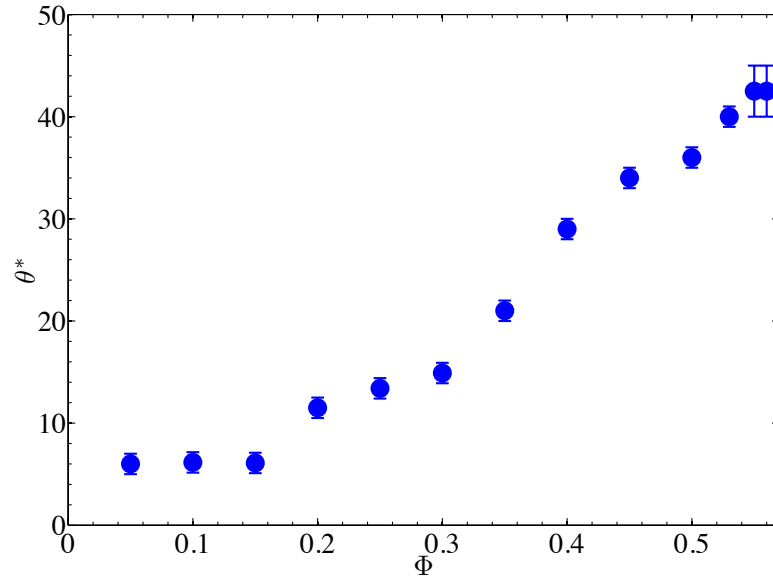


FIG. 5.11 – Angle de déplétion  $\theta^*$  en fonction de  $\Phi$ .  $\theta^*$  est mesuré en interpolant une parabole sur les différentes fonction  $g(\theta)$  dans une zone centrée autour du minimum.

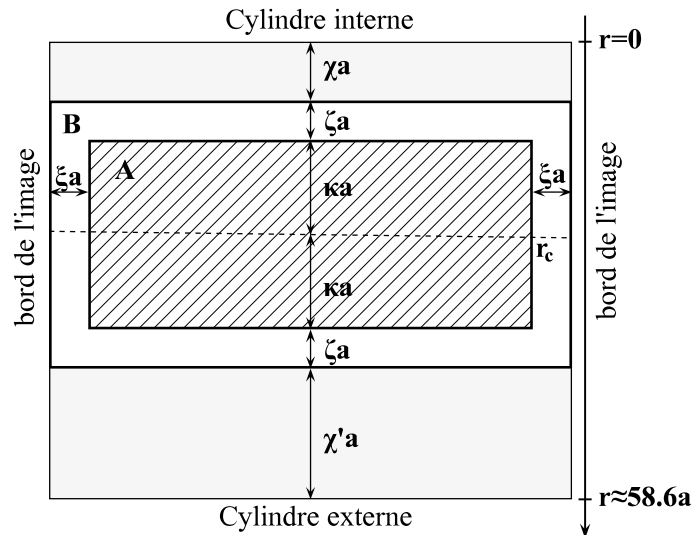


FIG. 5.12 – Définition des paramètres de tailles et positions des zones de sélection A et B des particules nécessaires aux calculs des PDF. Zone A : zone de sélection des particules 1. Zone B : zone de sélection des particules 2.  $r_c$  : position centrale de la zone A.

presque toute l'image et la zone A de largeur  $2a$  balaye l'ensemble du gap pour sonder les effets de parois. La gamme de rayons de particules sélectionnées dans l'image est telle que  $\Delta z = 0.7a$ . Les PDF en  $n = 1, 2, 3, 4, 5$  calculées pour des positions proches du cylindre interne montrent bien un effet de structuration à travers les pics de premiers ( $x/a \approx 2$ ) et deuxièmes plus proches voisins ( $x/a \approx 4$ ), les bandes d'exclusions en  $y/a \approx -3, -1, 1, 3$  et les bandes de surintensité en  $y/a \approx -2, 2$ . Comme le montrent Yeo et Maxey (2010), ces résultats indiquent la présence de bandes successives de particules structurées en lignes autour du rotor. Les PDF en  $n = 54, 55, 56, 57, 58$  proches du cylindre externe présentent des propriétés quasiment similaires. Remarquons cependant une différence de comportement dans l'écoulement proche des cylindres interne et externe. Alors que, proche du rotor, les seuls pics de premiers plus proches voisins sont situés dans la direction de la vitesse, proche du stator, apparaissent des pics de premiers plus proches voisins dans les directions  $\theta \approx \pi/3 \pmod{\pi/3}$  caractéristiques d'un réseau hexagonal. La fig. 5.16 représentant  $g(\theta)$  en  $n=2$  et  $g(\theta)$  en  $n=56$  illustre ces différences. Ce changement qualitatif traduit bien un glissement entre les bandes proche du rotor et une pseudo-cristallisation proche du stator. J'ai observé que cette pseudo-cristallisation s'accompagne d'un écoulement irrégulier entre les bandes à la manière d'un *stick-slip*, pour lequel les particules sont la plupart du temps bloquées, puis transitent rapidement vers un autre site de blocage. Aux fluctuations statistiques près, les PDF en  $n = 10, 20, 30, 40, 50$  ne présentent pas de différences significatives. A cette fraction volumique, la fonction de distribution de paires ne varie donc plus au delà d'une distance d'environ  $10a$  des bords.

Les courbes présentées sur la fig. 5.17 représentent, pour des fractions volumiques comprises entre 0.10 et 0.56, la densité surfacique de particules normalisée par la densité surfacique moyenne dans l'entrefer,  $n/n_0$ , en fonction de la position par rapport au cylindre interne.  $n(r)$  est évalué en comptant le nombre de particules totales (i.e. aucune sélection de rayons n'est ici réalisée) situées entre  $r$  et  $r + \Delta r$  (avec  $\Delta r = 5px$ ). Il apparaît très nettement une structuration proche des parois des cylindres pour des fractions volumiques supérieures à 0.45. Cette structuration semble s'étendre dans l'entrefer lorsque la fraction volumique augmente. Le nombre de bandes, proche de 3 (i.e.  $6a$ ) pour  $\Phi = 0.50$ , est d'environ 5 (i.e.  $10a$ ) pour  $\Phi = 0.55$ . On retrouve ainsi la distance d'influence de  $10a$  déduite des observations des PDF précédentes à  $\Phi = 0.53$ . Notons que de manière générale la structuration semble toujours plus marquée près du stator que du rotor. En particulier, pour  $\Phi \leq 0.45$  il existe une bande de particules contre le cylindre externe alors que nous observons une faible concentration de particules proche du cylindre interne. Cette densité *anormalement* faible pourrait expliquer le glissement habituellement observé dans les suspensions concentrées<sup>2</sup>

2. L'étude mériterait une plus grande exploration, mais les résultats ne sont présentés ici que pour vérifier l'existence d'effets de bords et pour mesurer leur extension spatiale. Notamment, on peut se demander si le glissement ne pourrait pas être lié à une baisse de la viscosité dans les régions structurées proches des parois, comme c'est le cas pour la rhéofluidification des suspensions colloïdales.



[Vand 1948].

**Influence de la taille de la zone de sélection des particules de référence 1 sur les fonctions de distribution de paires.** Après avoir mis en évidence un effet de structuration proche des parois et déterminé sa portée à environ  $10a$  pour les fractions volumiques les plus importantes, il reste à étudier l'éventuelle influence de la taille de la zone A sur les mesures de PDF. En effet, il est important de vérifier si des particules situées dans ces zones de structuration ont une importance ou non sur le calcul de la PDF. Pour cela, on fixe les valeurs suivantes pour les paramètres des zones de sélection A et B (fig. 5.12) :  $r_c$  est positionné au milieu de l'entrefer,  $\kappa \in [2, 4, \dots, 24]$ ,  $\zeta = \zeta' = 4$  et  $\xi = 4$ . La zone A s'étend donc de part et d'autre du centre de l'entrefer et la limite de la zone B est toujours à  $4a$  des limites de la zone A. La valeur limite  $\kappa = 24$  fixe la largeur des deux zones à  $56a$  (i.e. presque tout l'entrefer). La fig. 5.18 montre clairement que la PDF angulaire de la suspension  $\Phi = 0.53$  calculée en  $\rho/a \approx 2$  ne dépend pas de la largeur de la zone A. Cette étude justifie à posteriori le choix encore plus restrictif des paramètres des zones A et B utilisés pour le calcul des PDF présentées au §5.3.1 –  $r_c$  centré,  $\kappa = 18$ ,  $\zeta = \zeta' = 8$  et  $\xi = 4$ . Ces valeurs sont fixées pour laisser une zone d'exclusion de  $3a$  proche des cylindres où les précédents résultats ont montré soit une déplétion, soit au contraire une forte structuration en particules.

### 5.3.3 Discussion

La connaissance de la fonction de distribution de paires est de toute première importance dans l'étude de la rhéologie des suspensions non inertielles et non browniennes. Des effets fins au niveau de la microstructure peuvent avoir un effet important sur la réponse macroscopique d'un système soumis à une contrainte de cisaillement [Stickel & Powell 2005]. Depuis les années 80, de nombreuses études numériques ont exploré ces effets, et le rôle des interactions non hydrodynamiques entre particules (i.e. des contacts) est apparu comme critique dans la brisure de symétrie (par rapport au gradient de vitesse) de la fonction de distribution de paires et l'apparition de différences de contraintes normales. Parallèlement, quelques études expérimentales ont permis de mettre qualitativement en évidence le rôle de la rugosité de surface, sans pour autant étudier l'influence de la fraction volumique sur l'asymétrie de la PDF.

Ce travail tente d'apporter une réponse à cette question. La fig. 5.11 montre l'évolution de l'angle de déplétion  $\theta^*$  de la PDF avec  $\Phi$ . Après une fraction volumique de transition  $\Phi_c \approx 0.20$ , les résultats indiquent que  $\theta^*$  augmente progressivement d'une valeur de  $6^\circ$ , correspondant à la déplétion due aux rugosités de surface en régime dilué (§5.2), jusqu'à  $45^\circ$ . Notons que cette fraction volumique de transition est du même ordre de grandeur que

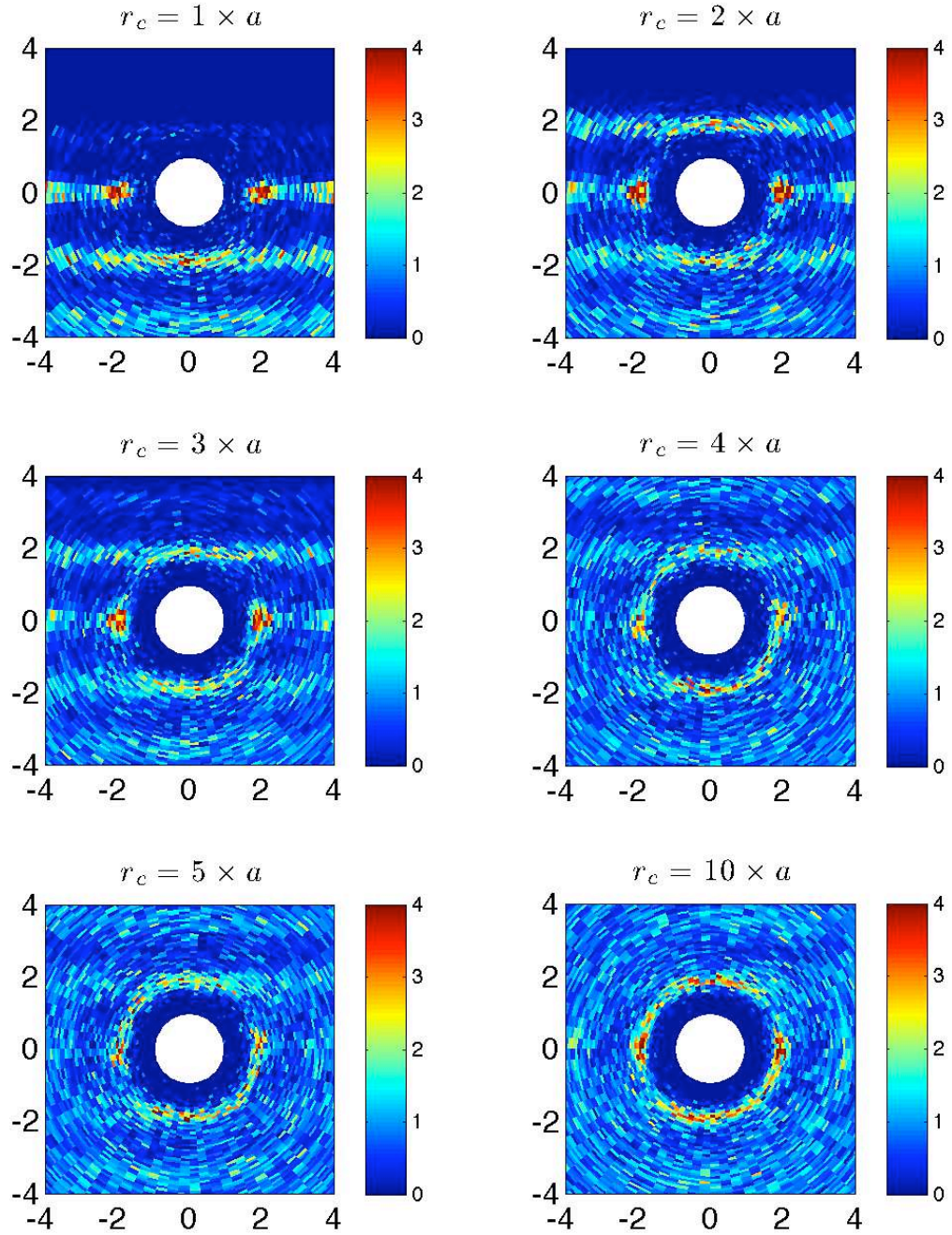


FIG. 5.13 – Influence de la position de la zone A de sélection des particules de références 1 sur le calcul des PDF.  $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B :  $\kappa = 1$ ,  $\chi = \chi' = 0$ ,  $\xi = 1$ ,  $r_c = R_i + na$  avec  $n \in [1, 2, 3, 4, 5, 10]$ . Largeur de l'entrefes :  $\approx 58.6a$ .

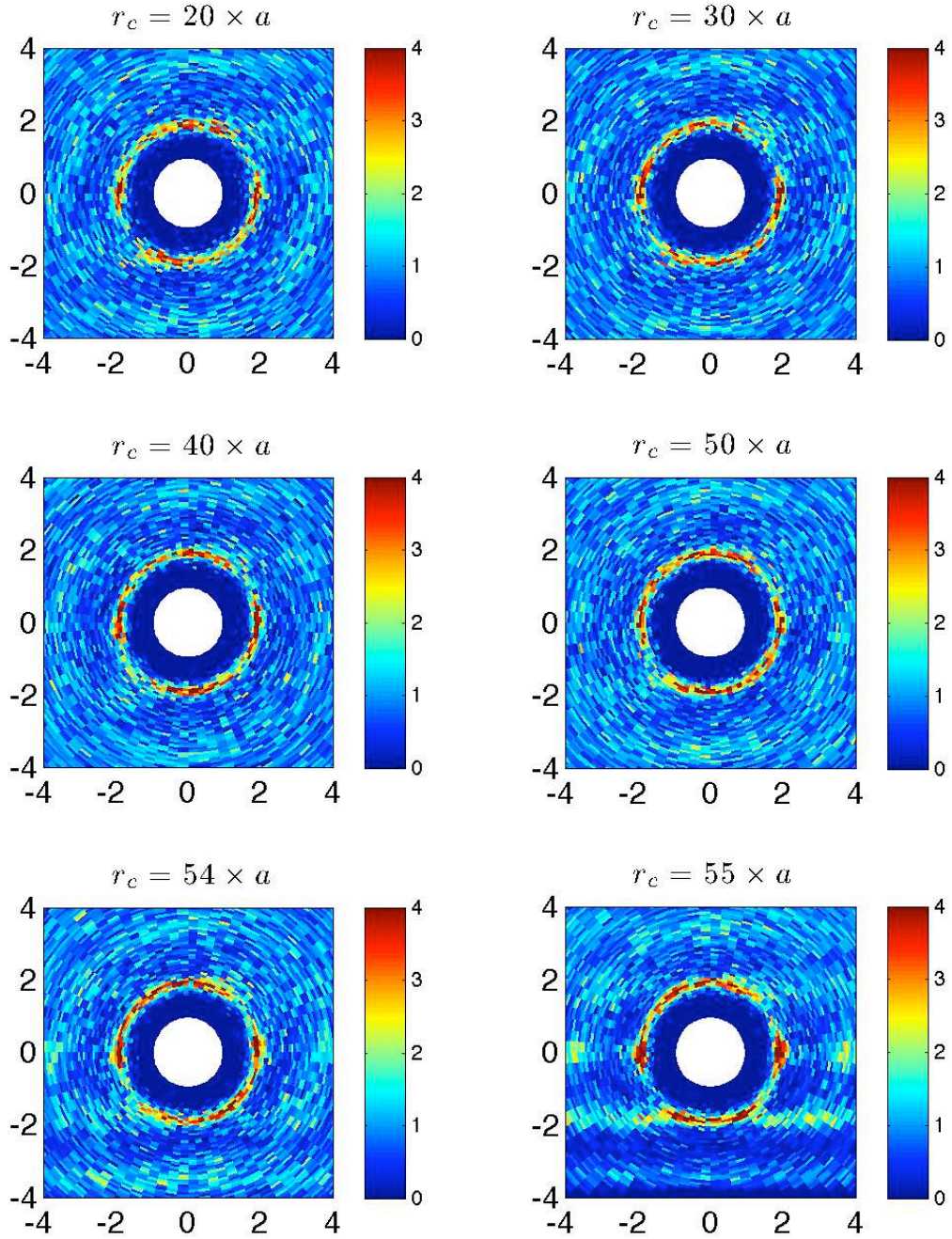


FIG. 5.14 – Influence de la position de la zone A de sélection des particules références 1 sur le calcul des PDF.  $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B :  $\kappa = 1$ ,  $\chi = \chi' = 0$ ,  $\xi = 1$ ,  $r_c = R_i + na$  avec  $n \in [20, 30, 40, 50, 54, 55]$ . Largeur de l'entrefer :  $\approx 58.6a$ .

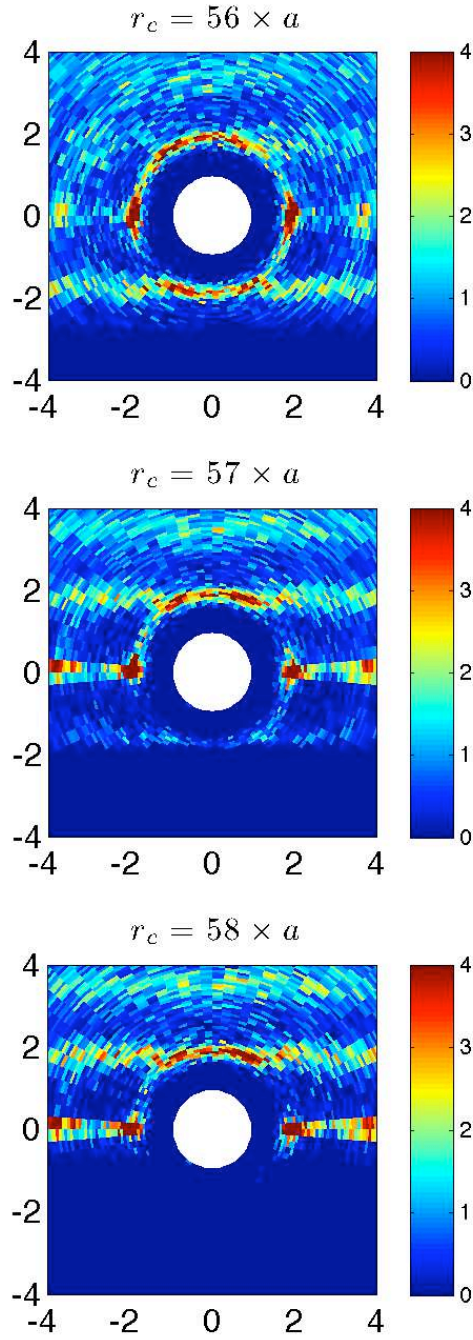


FIG. 5.15 – Influence de la position de la zone A de sélection des particules références 1 sur le calcul des PDF.  $\Phi = 0.53$ . Paramètres des zones A et B :  $\kappa = 1$ ,  $\chi = \chi' = 0$ ,  $\xi = 1$ ,  $r_c = R_i + na$  avec  $n \in [56, 57, 58]$ . Largeur de l'entrefer :  $\approx 58.6a$ .

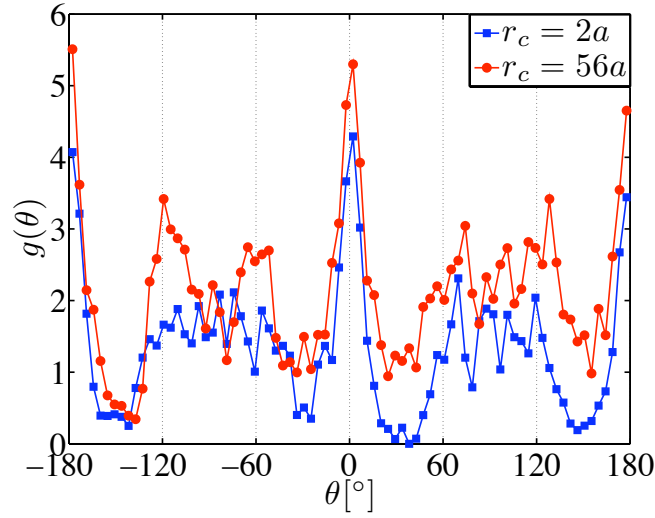


FIG. 5.16 – PDF angulaire. Moyenne radiale sur le domaine  $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ .  $\Phi = 0.53$ . (■) : Zone A centrée en  $r_c = R_i + 2a$ . (●) : Zone A centrée en  $r_c = R_i + 56a$ .

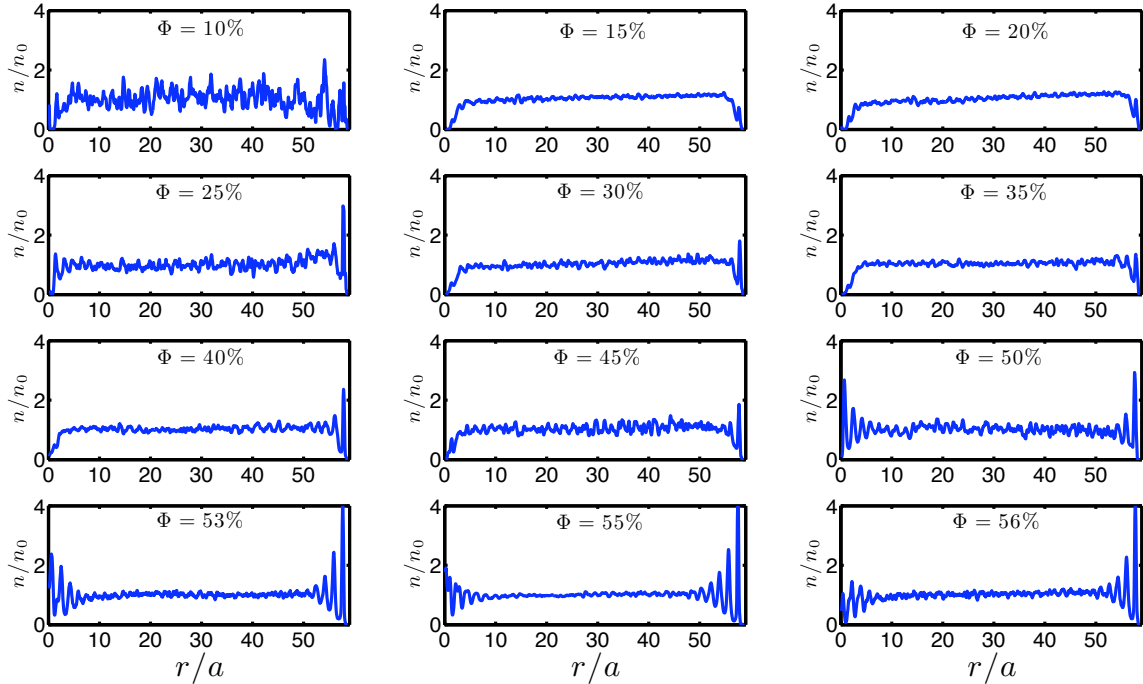


FIG. 5.17 – Nombre de particules par unité de surface en une position dans l'entrefer normalisé par le nombre de particules moyen par unité de surface, en fonction de la position dans l'entrefer et de la fraction volumique.  $r/a = 0$  correspond à la position du cylindre interne et  $r/a \approx 58.6$  à celle du cylindre externe.

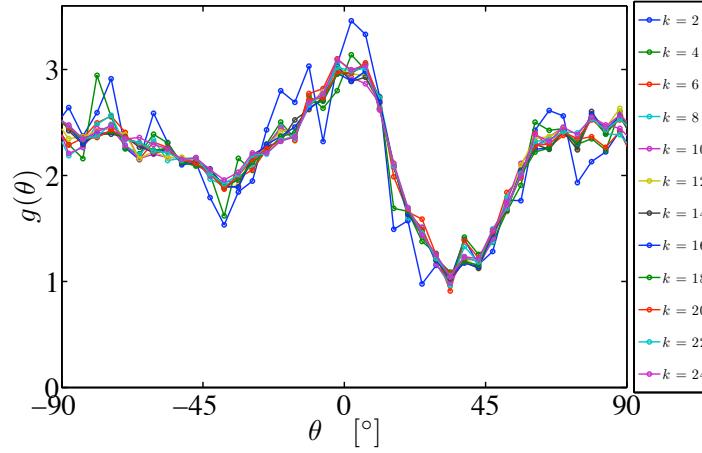


FIG. 5.18 – Influence de la taille de la zone de sélection des particules de références 1 sur une fonction de distribution de paires angulaire.  $\Phi = 0.53$ .  $g(\theta)$  est la moyenne radiale de  $g(\rho, \theta)$  pour  $\rho/a \in [1.87, 2.14]$ . Le paramètre  $\kappa$  est défini sur la fig. 5.12.

celle marquant l'émergence des différences de contraintes normales  $\Phi_c \approx 0.22$  (fig. 3.21) et de la viscosité structurale  $\Phi_c \approx 0.25$  (fig. 3.20).

Cette augmentation de  $\theta^*$  au-delà d'une fraction volumique critique semble en accord avec des simulations numériques de Drazer *et al.* (2002) et (2004). Leurs travaux consistent à mesurer numériquement l'impact de la portée des interactions de contact et de la fraction volumique sur la microstructure. Pour cela ils utilisent une force interparticulaire non hydrodynamique normalisée par la force hydrodynamique  $6\pi\eta a^2\dot{\gamma}$ , classique en dynamique stokésienne [Bossis & Brady 1984], de la forme :

$$\mathbf{F}_{\alpha\beta} = \frac{F_0}{r_c} \frac{e^{-\epsilon/r_c}}{1 - e^{-\epsilon/r_c}} \mathbf{e}_{\alpha\beta} \quad (5.2)$$

où  $\mathbf{F}_{\alpha\beta}$  est la force adimensionnée exercée par la sphère  $\alpha$  sur la sphère  $\beta$ ,  $F_0$  un coefficient adimensionné reflétant l'intensité de l'interaction,  $r_c a$  une longueur de portée caractéristique de la force<sup>3</sup>,  $\epsilon a$  la distance d'approche entre les surfaces des deux sphères et  $\mathbf{e}_{\alpha\beta}$  le vecteur unitaire pointant de  $\beta$  vers  $\alpha$ . Les fig. 5.19–(d. et g.) montrent l'influence de  $r_c$  et de  $\Phi$  sur le résultat de la PDF pour  $F_0 = 1$ . Les résultats de Drazer *et al.* indiquent clairement que pour une fraction volumique donnée, la portée  $r_c$  des interactions a une influence considérable sur la zone, et donc l'angle, de déplétion. Pour  $\Phi = 0.10$ , alors qu'avec  $r_c = 10^{-4}$  la PDF est symétrique en accord avec la PDF théorique de Batchelor et Green (1972) compte tenu de l'élimination des doublets permanents, l'asymétrie devient plus pro-

3. Cette portée caractéristique peut être interprétée comme une rugosité de surface.

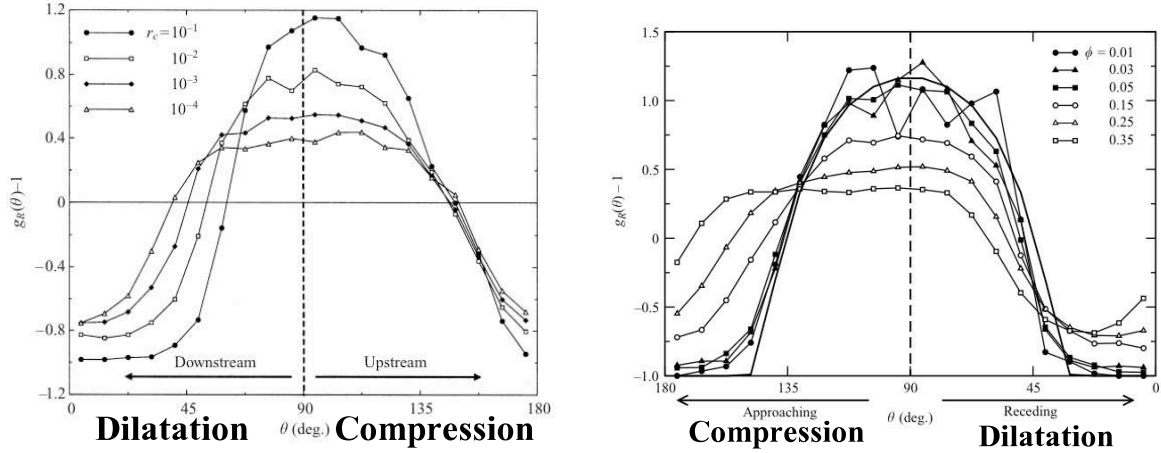


FIG. 5.19 – Fonctions de distribution de paires angulaires normalisées. Gauche : intégration radiale :  $2.0 < \rho/a < 2.1$ .  $\Phi = 0.10$ . Droite :  $r_c = 10^{-4}$ . Intégration radiale :  $2.0 < \rho/a < 2.01$ . Ligne continue : fonction théorique de Batchelor et Green (1972) pour la région en dehors des doublets permanents, zéro pour la région contenant les doublets. Résultats numériques d'après Drazer et al. (2002) et (2004).

noncée lorsque  $r_c$  augmente. De plus, pour  $r_c = 10^{-4}$ , la PDF semble faiblement dépendre de la fraction volumique lorsque  $\Phi \leq 0.05$ , alors que l'angle de déplétion augmente lorsque  $\Phi$  passe de 0.15 à 0.35. Ainsi, de manière similaire à nos observations, pour une portée d'interaction suffisante, l'angle de déplétion non nul de la PDF reste constant pour des fractions volumiques faibles, puis augmente avec la fraction volumique lorsque celle-ci est supérieure à une valeur critique. Remarquons que l'évolution de l'angle de déplétion vers  $\theta = 45^\circ$  lorsque la fraction volumique augmente peut peut-être s'expliquer par l'encombrement stérique qui grandit quand la fraction volumique augmente. On peut en effet imaginer que les interactions que subit une paire de particules avec des particules voisines lui interdisent de parcourir l'ensemble de la trajectoire qu'elle aurait si elle était *seule*. Pour des suspensions semi-diluées, les interactions à plusieurs corps sont limitées et le mouvement relatif des paires dans le champ de cisaillement simple n'est pas *interrompu*, laissant libre le mouvement des particules de l'amont vers l'aval de l'écoulement. La fréquence des interactions multiples augmentant avec la fraction volumique, l'écoulement relatif de deux sphères peut s'en trouver influencé, décalant l'angle de déplétion dans la direction de l'axe du gradient de vitesse.

Parallèlement à cette inclinaison de l'angle de déplétion, les PDF angulaires portées sur la fig. 5.10 mettent en évidence l'apparition d'une surintensité de la probabilité proche de la direction de la vitesse lorsque  $\Phi > 0.40$ . Ce pic traduit l'existence de doublets orientés préférentiellement dans la direction de l'écoulement moyen. Il est surprenant de constater

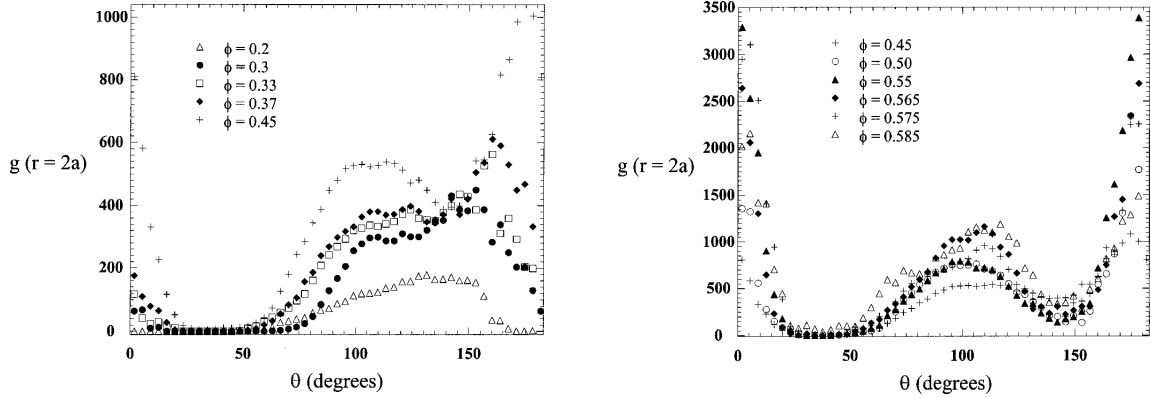


FIG. 5.20 – Évolution de la fonction de distribution de paires au contact ( $2 < \rho/a < 2.0005$ ) en fonction de la fraction volumique.  $Pe = 1000$ . Résultats en dynamique stokésienne d'après Morris et Katyal (2002).

que peu de résultats numériques en dynamique stokésienne font apparaître cet effet. Cependant, Morris et Katyal (2002) mentionnent l'existence d'une tel pic pour  $\Phi > 0.3$  lors de l'étude qu'ils mènent en dynamique stokésienne sur l'influence de la diffusion brownienne sur la forme de la fonction de distribution de paires au contact ( $2 < \rho/a < 2.0005$ ). Les courbes représentées sur la fig. 5.20 sont les PDF angulaires de leur travail pour différentes fractions volumiques à  $Pe = 1000$  (le plus grand de leur étude). Ces résultats montrent, à l'instar de ceux de notre étude, l'apparition progressive d'un pic de probabilité dans une direction proche de celle de la vitesse pour des fractions volumiques supérieures à 0.30. Notons cependant qu'aucune comparaison directe entre les résultats de Morris et Katyal n'est possible car les distances interparticulaires d'intégration des PDF sont très différentes :  $2 < \rho/a < 2.0005$  pour Morris et Katyal, contre  $1.9 < \rho/a < 2.1$  pour la présente étude. Les auteurs ne proposent pas d'explication sur l'origine du pic de probabilité observé, même s'ils notent que sa présence dépend légèrement de l'échantillonnage  $\Delta\rho$  utilisé pour le calcul de  $g(\theta)$ .

Yeo et Maxey (2010) ont étudié, par le biais de simulations en *Force coupling method*, l'influence de la largeur finie de l'entrefer sur la rhéologie et la microstructure de suspensions concentrées. Ils montrent que près des parois du rhéomètre, les sphères de la suspension s'organisent en bandes, d'autant mieux que la fraction volumique est importante (fig. 5.21). A la différence de nos mesures, cette structuration est symétrique sur les deux parois. Concernant la PDF, les auteurs présentent des résultats (fig. 5.22) qualitativement identiques à ceux des fig. 5.13–5.15. Même s'ils précisent que la structuration proche des parois est indépendante de la largeur de l'entrefer si celle-ci est supérieure à  $10a$ , ils n'indiquent pas clairement si la PDF calculée au centre de la cellule d'écoulement en dépend ou non. Ils



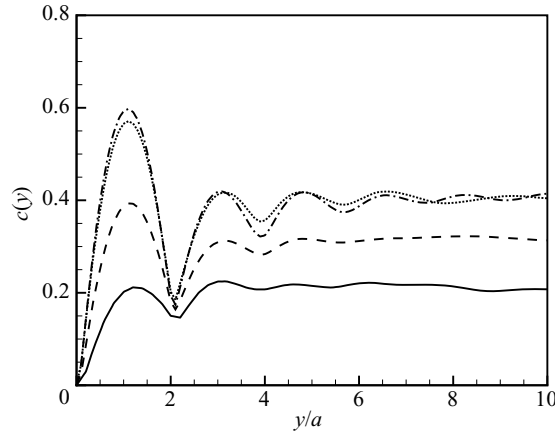


FIG. 5.21 – Profils de concentration pour différentes fractions volumiques : 0.20 (continue), 0.30 (brisée), 0.40 (point/brisée et pointillés). Largeur de l'entrefer :  $20a$ .

observent notamment un pic de probabilité en  $\theta \sim 0$  sur la PDF angulaire pour  $\Phi = 0.40$  et une largeur d'entrefer  $e = 20a$  (fig. 5.23–gauche). La fig. 5.23–droite met en exergue la ressemblance des allures de cette PDF<sup>4</sup> avec celle que nous avons mesurée pour  $\Phi = 0.53$  et un entrefer de  $e \approx 60a$ .

Alors que Yeo et Maxey ne donnent pas non plus d'explication à l'apparition de ce pic, nous nous demandons s'il ne peut pas être la manifestation d'un effet de taille finie. En effet, rappelons que nous avons montré que l'apparition d'une structuration aux parois (fig. 5.17) est concomitante avec celle des pics ( $\Phi > 0.45$ ). Cette explication serait, de plus, cohérente avec les résultats de dynamique stokésienne qui, comme nous l'avons dit, n'en font la plupart du temps, pas mention. Notons cependant que même si la dynamique stokésienne est supposée modéliser des suspensions en milieu infini, les conditions périodiques imposées à la cellule de calcul peuvent introduire des effets de tailles finies [Sierou & Brady 2002]. C'est pourquoi, nous envisageons par la suite, de faire varier la taille de l'entrefer pour répondre à la question de l'influence de la taille de l'écoulement sur la distribution spatiale de particules et en particulier sur l'apparition du pic de probabilité en  $\theta = 0^\circ$ .

Pour finir, et comme le soulignent Morris et Katyal (2002), l'apparition de ces pics semble être reliée à une particularité de l'évolution des coefficients de diffusion avec la fraction volumique. En effet, des simulations et des mesures expérimentales (fig. 5.24) montrent que les valeurs des coefficients de diffusion augmentent jusqu'à  $\Phi \approx 0.40$  pour décroître jusqu'à un plateau lorsque  $\Phi$  augmente. Or une étude de l'auto-diffusion basée sur des interactions de paires [Brady & Morris 1997] prédit que l'augmentation de l'accumulation de particules au contact lorsque  $\Phi$  croît, induit une augmentation de ces coefficients<sup>5</sup>. Cependant, cette

4. Par souci de comparaison, c'est  $g/3$  obtenue par Yeo et Maxey qui est représentée.

5. Notons que ce modèle n'est rigoureux que pour les basses fractions volumiques. Toutefois, les auteurs

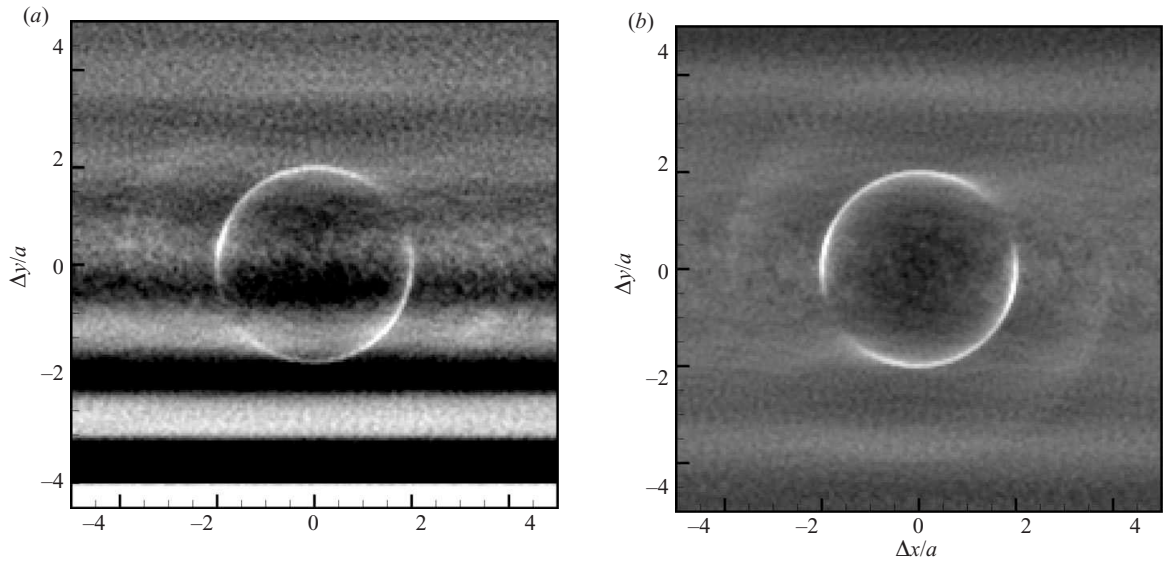


FIG. 5.22 – Fonction de distribution de paires d'une suspension de fraction volumique 0.40. Paramètres zone 1 (fig. 5.12) :  $r_c = 5a$  et  $\kappa = 0.5$  (gauche),  $r_c = 10a$  et  $\kappa = 2$  (droite). Les contours lumineux représentent les fortes probabilités. Résultats numériques d'après Yéo et Maxey (2010).

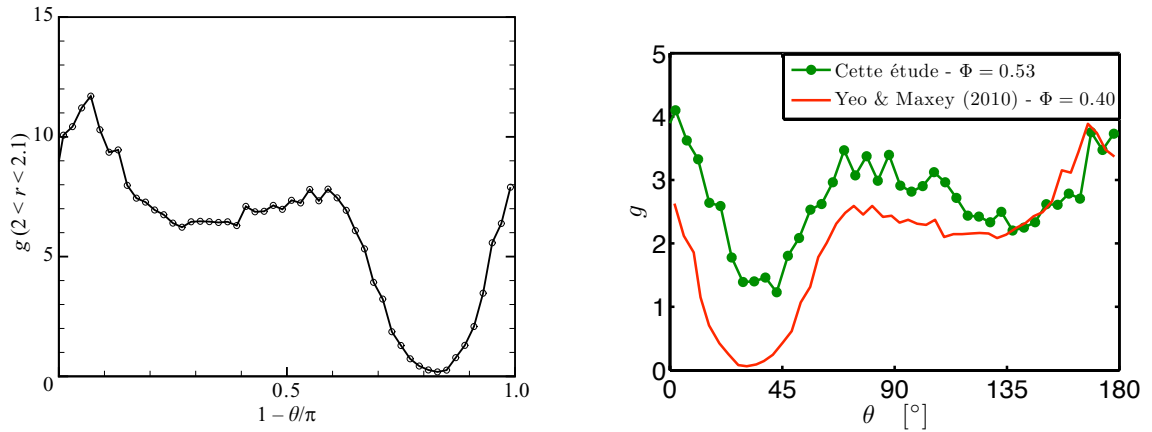


FIG. 5.23 – Gauche : fonction de distribution de paires angulaire calculée au centre de l'entrefer.  $\Phi = 0.40$ . Largeur d'entrefer :  $20a$ . Quadrant de compression :  $\pi/2 < \theta < \pi$ . Résultats numériques d'après Yeo et Maxey (2010). Droite : comparaison entre  $g(2 < \rho/a < 2.1)/3$  ( $\Phi = 0.40$ , entrefer :  $20a$ ) [Yeo et Maxey (2010)] et  $g(1.93 < \rho/a < 2.07)$  ( $\Phi = 0.53$ , entrefer :  $\sim 60a$ ).

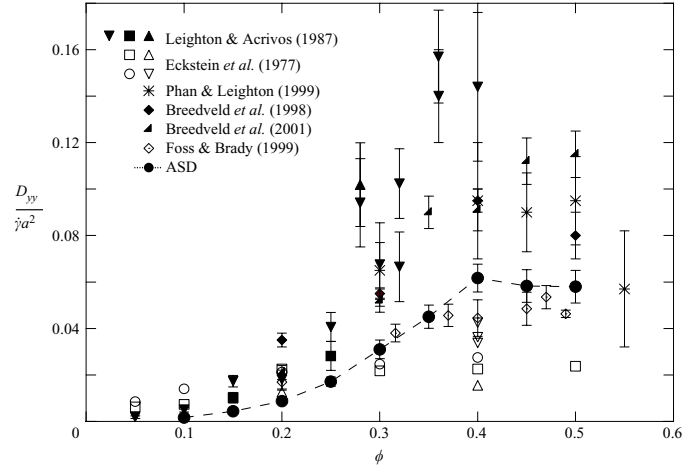


FIG. 5.24 – Coefficient de diffusion  $\widehat{D}_{yy}$  en fonction de  $\Phi$ . Résultats numériques et expérimentaux. D'après Sierou et Brady (2004).

théorie est basée sur l'hypothèse que le maximum de  $g(\rho/a = 2)$  se situe dans la direction de l'axe de compression où les fluctuations de vitesse d'une particule dues aux interactions de paires,  $u' \sim \dot{\gamma} a \widehat{r}(\widehat{r} \cdot \widehat{E} \cdot \widehat{r})$ , sont elles-mêmes maximum. L'existence de doublets orientés préférentiellement sur les lignes de courant a pour conséquence de réduire la fréquence à laquelle les particules subissent ces larges fluctuations de vitesse, et donc de diminuer d'autant les coefficients de diffusion. Cette hypothèse est renforcée par l'existence de la zone de déplétion secondaire dans le quadrant de compression (§5.3.1) dans laquelle  $\widehat{r} \cdot \widehat{E} \cdot \widehat{r}$  est le plus important.

On le voit, la compréhension de la microstructure est encore un sujet ouvert, où le rôle des contacts et de la rugosité, autant que des effets de taille finie de l'entrefer restent à éclaircir. Cependant, les mesures de fonction de distribution de paires présentées dans ce travail font apparaître, comme dans d'autres études, une accumulation de particules dans le quadrant de compression, mais aussi une structuration en doublets orientés dans la direction des lignes de courant au-delà d'une fraction volumique de 0.45. De plus, dans le quadrant de dilatation, j'ai clairement mis en évidence que l'angle de déplétion dû à des interactions de sphères dures rugueuses reste constant jusqu'à  $\Phi \approx 0.15$ , puis augmente continument avec  $\Phi \geq 20$ .

---

proposent de l'utiliser pour expliquer qualitativement certaines propriétés de suspensions plus concentrées.

## 5.4 Inversion de cisaillement

L'étude, par une technique de PIV, de la réponse locale d'une suspension lors d'une inversion de cisaillement a permis de mettre en évidence des lois d'échelles différentes pour  $\eta_{min}$  et  $\eta_{plateau}$ . Dans la discussion abordée au §3.5, nous avons pointé l'importance de mesurer la microstructure lors du passage au minimum de viscosité, et avons soulevé la question d'une éventuelle discontinuité de la viscosité au moment de l'inversion.

Dans cette section, en parallèle à des mesures de rhéologie locale, nous présentons donc des mesures de fonction de distribution de paires en régime transitoire. Notamment, nous mettons bien en évidence la symétrie des PDF mesurées lors d'un cisaillement dans un sens d'écoulement puis dans l'autre, ainsi que le caractère symétrique par rapport à  $\nabla v$  de la distribution de particules lorsque la viscosité transite par sa valeur minimum après l'inversion de cisaillement. Enfin, la bonne résolution en déformation du dispositif expérimental en PTV permet de montrer que la viscosité ne présente pas de discontinuité au moment de l'inversion de cisaillement.

### 5.4.1 Inversion de la microstructure

Dans cette partie sont présentées des mesures simultanées de la microstructure et de la rhéologie locale de suspensions concentrées soumises à une inversion de cisaillement. Notons que la sensibilité du dispositif expérimental n'a permis d'étudier les régimes transitoires que pour  $\Phi \geq 0.25$ .

La fig. 5.25 représente le régime transitoire de la viscosité réduite locale de la suspension  $\Phi = 0.35$  mesurée en  $r/R_e \approx 0.88$  lorsque la contrainte appliquée change instantanément de signe ( $|M| = 50 \mu Nm$ ). L'inversion a lieu une fois le régime stationnaire *aller* atteint. La vitesse de rotation du rotor au plateau est de l'ordre de 0.3 rpm (i.e.  $\dot{\gamma} \sim 0.1 s^{-1}$ ). Comme en PIV, l'étude des régimes transitoires pour une large gamme de fractions volumiques (présentés sur la fig. 5.26) permet de déterminer l'évolution de la viscosité structurale  $\eta_{plateau} - \eta_{min}$  (fig. 5.27). La droite de régression permet d'accéder à un "seuil"  $\Phi_c \approx 0.27$  proche de celui obtenu sur les suspensions de CA30 précédemment étudiées ( $\Phi_c \approx 0.25$ ) ou de celui de Boyer *et al.* (2011) ( $\Phi_c \approx 0.22$ ).

Comme on s'y attendait, les fonctions de distribution de paires calculées sur les plateaux *aller et retour* après l'établissement des régimes transitoires, représentées sur la fig. 5.28 ( $\Phi = 0.35$ ), présentent bien une symétrie miroir l'une par rapport à l'autre. Cette propriété est mieux vérifiée sur la fig. 5.29 où sont représentées les moyennes radiales  $g(\theta)$  des deux PDF *aller et retour* entre  $\rho/a \approx 1.8$  et  $\rho/a \approx 2.1$ . Sur la même figure, on porte aussi  $g(\theta)$  calculée autour du minimum de viscosité, entre  $\gamma_{moyen} \approx 0.5$  et  $\gamma_{moyen} \approx 1.3$ . On constate que cette fonction de distribution de paires n'est pas isotrope mais garde la *mémoire* de la microstructure développée au plateau. Aux fluctuations près, cette fonction est bien

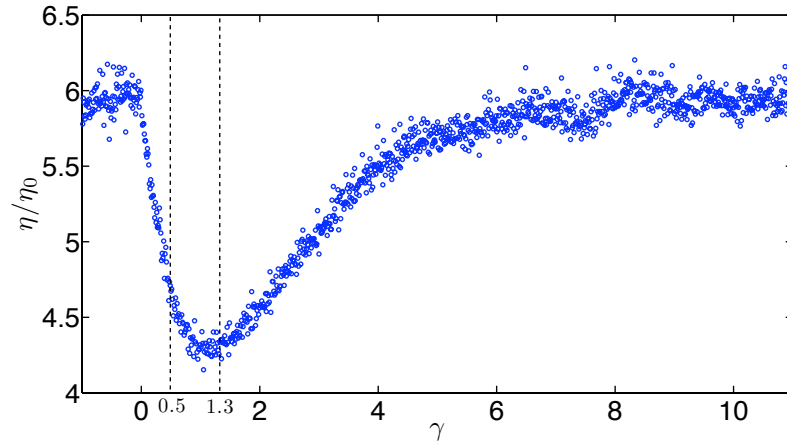


FIG. 5.25 – Réponse transitoire de la viscosité réduite locale ( $r/R_e = 0.88$ ) après une inversion de contrainte de cisaillement ( $\gamma < 0 : M = +50 \mu Nm$ ,  $\gamma > 0 : M = -50 \mu Nm$ ).  $\gamma = 0$  : instant de l'inversion.  $\Phi = 0.35$ .

symétrique par rapport au gradient de vitesse comme l'illustre aussi la fig. 5.30.

La propriété de symétrie miroir des PDF *aller et retour* est bien sur constatée pour l'ensemble des fractions volumiques comme l'atteste la fig. 5.31.

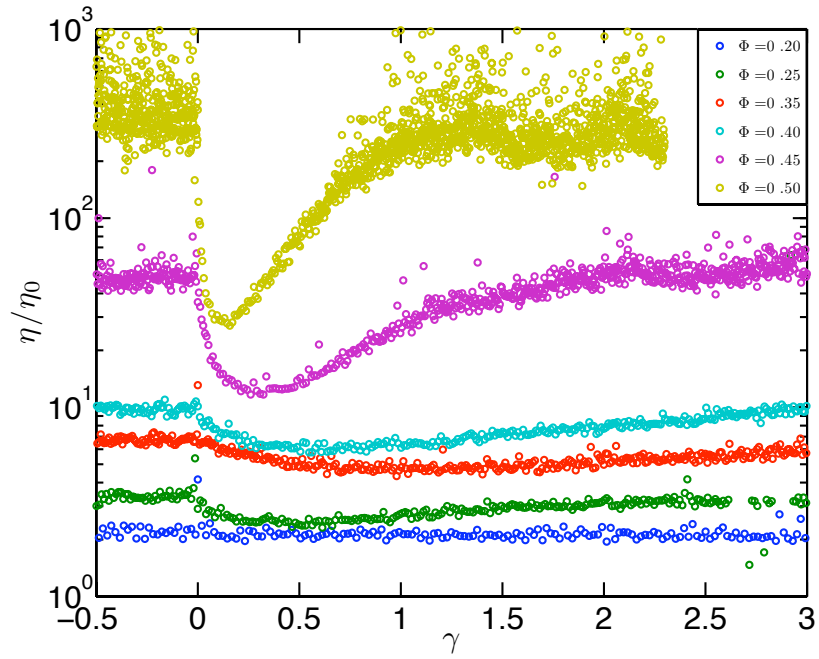


FIG. 5.26 – Régimes transitoires de la viscosité relative en fonction de la déformation et de  $\Phi$ . Mesures en PTV après une inversion de cisaillement.

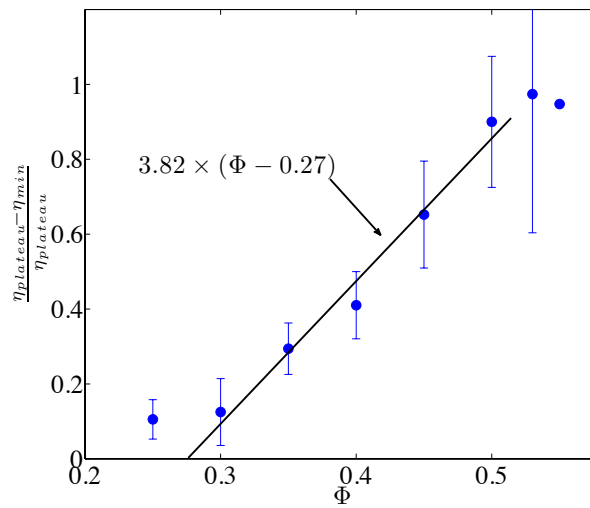


FIG. 5.27 – Viscosité structurale normalisée en fonction de la fraction volumique.

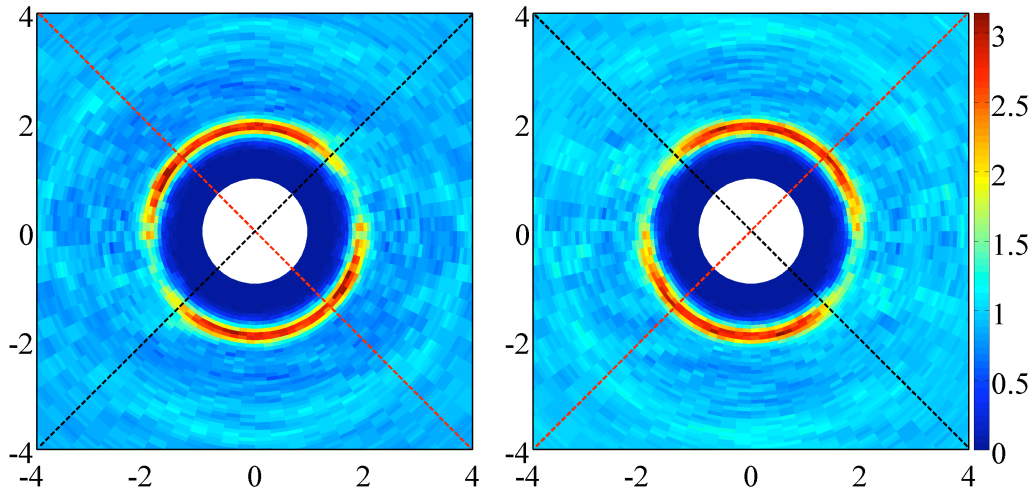


FIG. 5.28 – Fonctions de distribution de paires calculées sur les plateaux aller et retour après une inversion de cisaillement.  $\gamma < 0$ :  $M = +50 \mu Nm$ ,  $\gamma > 0$ :  $M = -50 \mu Nm$ .  $\Phi = 0.35$ .  $\Delta z/a = 0.8$ . Ligne pointillée rouge : axe de compression. Ligne pointillée noire : axe de dilatation.

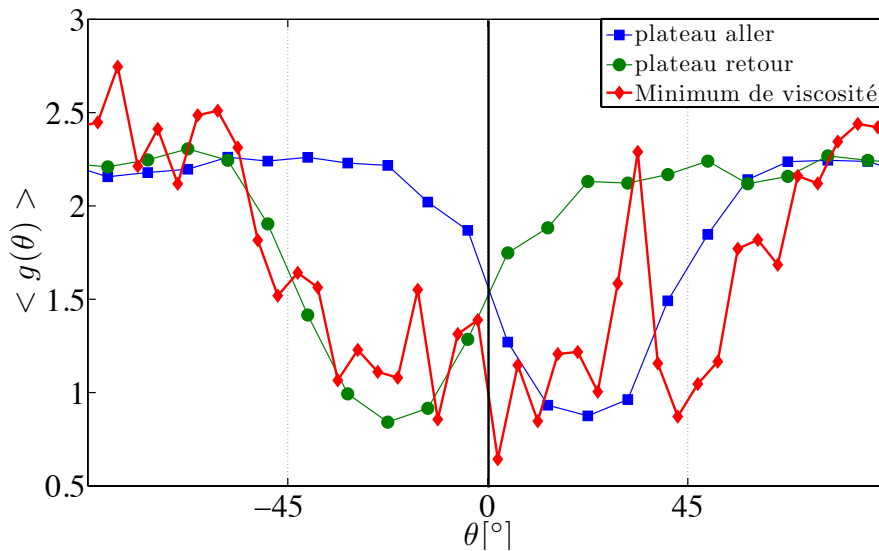


FIG. 5.29 – Fonctions de distribution de paires angulaires intégrée entre  $\rho/a \approx 1.8$  et  $\rho/a \approx 2.1$ . La PDF au minimum de viscosité est une moyenne de la PDF instantanée entre  $\gamma_{moyen} \approx 0.5$  et  $\gamma_{moyen} \approx 1.3$  (fig. 5.25).

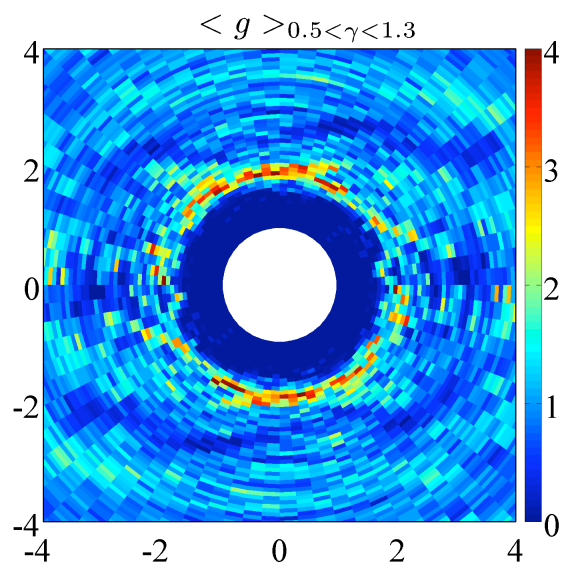


FIG. 5.30 – Fonction de distribution de paires autour du minimum de viscosité. Moyenne calculée entre  $\gamma_{moyen} \approx 0.5$  et  $\gamma_{moyen} \approx 1.3$  (fig. 5.25).  $\phi = 0.35$ . Quadrant de dilatation  $-90^\circ < \theta < 0^\circ$ . Quadrant de compression  $0^\circ < \theta < +90^\circ$ . Cette PDF n'est pas isotrope mais symétrique par rapport au gradient de vitesse.



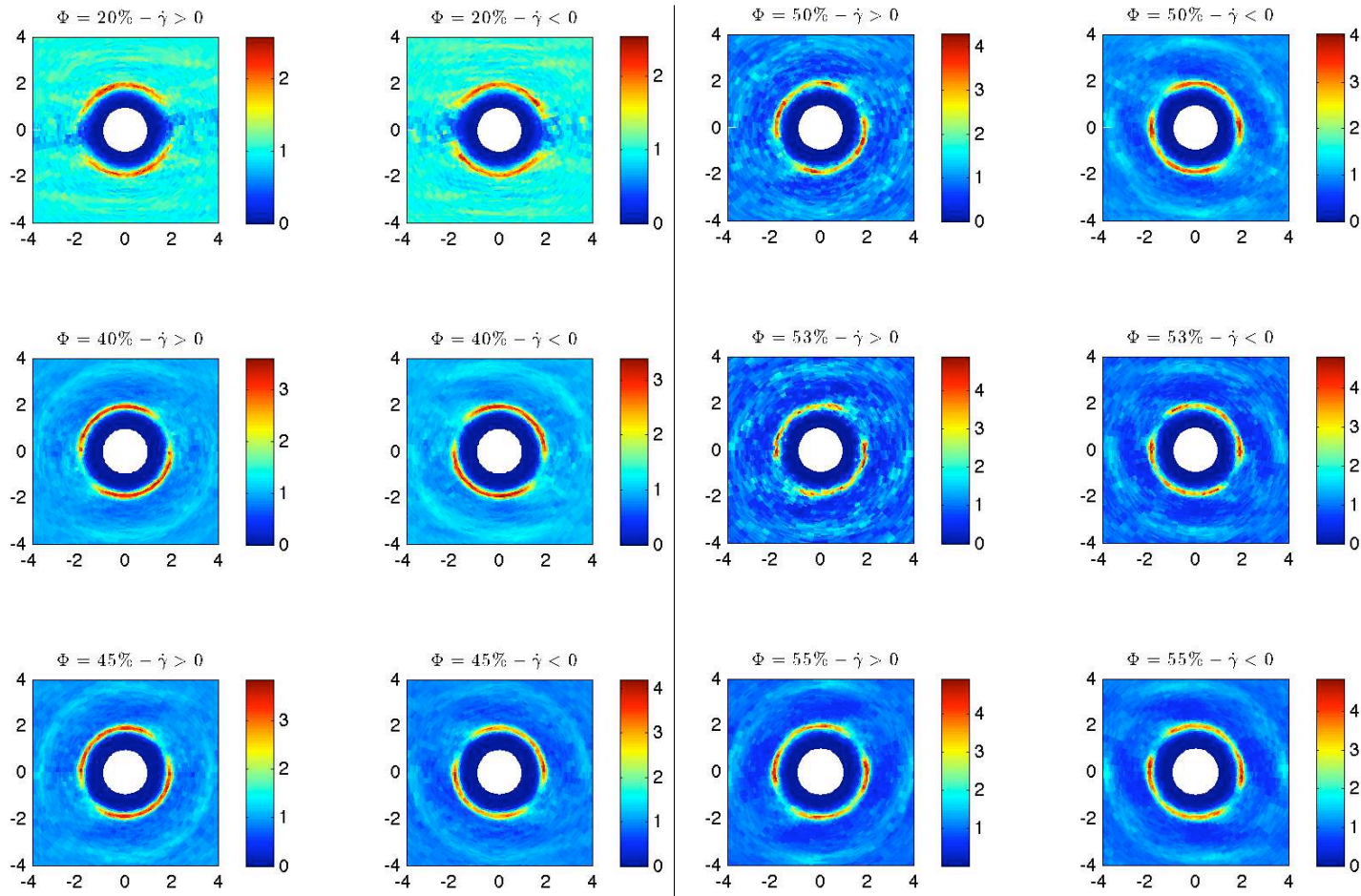


FIG. 5.31 – Fonctions de distribution de paires calculées aux plateaux des deux sens de cisaillement pour différentes fraction volumiques.  $\dot{\gamma} > 0$  – quadrant de compression :  $[-\pi/2, 0]$ ;  $\dot{\gamma} < 0$  – quadrant de compression :  $[0, \pi/2]$ .

### 5.4.2 Continuité des quantités rhéologiques locales au moment de l'inversion de cisaillement

La mesure d'une éventuelle discontinuité de la viscosité au moment de l'inversion du sens de l'écoulement est rendue possible par la bonne résolution en déformation du dispositif expérimental en PTV. Par souci de clarté, j'ai choisi de représenter la variation de la valeur absolue du taux de cisaillement, et non pas la viscosité, en fonction de la déformation. En effet les fluctuations autour des faibles valeurs des taux de cisaillement présentés sur les fig. 5.32 et 5.33 conduisent à d'importantes variations sur les viscosités, rendant l'interprétation plus difficile. De plus, pour éviter d'éventuels problèmes d'ajustement polynomial sur les profils de vitesse au moment de l'inversion,  $|\dot{\gamma}|$  est, à la différence de la procédure en PIV, calculé directement à partir des profils de vitesse  $V_\theta(r_i)$  par la relation :

$$|\dot{\gamma}| = r_i \left( \frac{V_\theta(r_{i+1})}{r_{i+1}} - \frac{V_\theta(r_i)}{r_i} \right) \quad (5.3)$$

où  $r_i$  est une position radiale échantillonnée dans l'entrefer. Le nombre d'échantillons est compris entre 10 et 15 et dépend de la fraction volumique.

Le tableau 5.2 indique le détail des protocoles expérimentaux ayant permis d'obtenir les résultats des fig. 5.32 et 5.33. Un couple  $M$  est appliqué au cylindre interne. Une fois le plateau atteint, le couple est inversé. Les profils de vitesse sont calculés à partir d'une série d'images enregistrées à la fréquence d'échantillonnage  $f = 8 \text{ Hz}$ .  $\gamma = 0$  est défini à l'instant de l'inversion. Les taux de cisaillement proposés sont obtenus après moyenne entre deux positions  $r_{inf}$  et  $r_{sup}$  de l'entrefer. Remarquons que pour l'ensemble des résultats le taux de cisaillement moyen le plus grand obtenu pendant le régime transitoire est toujours compris entre 0.1 et 0.2  $s^{-1}$ . Il correspond à la plus grande mesure du déplacement moyen des particules permis par la procédure de PTV (§4.4). Pour les plus grandes fractions volumiques, les variations de viscosité pendant le transitoire étant importantes, il est difficile de trouver une bonne condition expérimentale pour mesurer l'intégralité du profil de vitesse dans l'entrefer pendant tout le régime transitoire. C'est pourquoi les mesures présentées sont réalisées proche du cylindre externe où le déplacement moyen des particules est tel que la procédure de PTV permet bien le suivi pendant tout le transitoire. La résolution en déformation est évaluée à partir de l'écart-type calculé au plateau des différentes courbes :

$$\Delta\gamma = \frac{\sqrt{\dot{\gamma}^2 - \langle \dot{\gamma} \rangle^2}}{f} \quad (5.4)$$

A titre indicatif, la dernière colonne du tableau 5.2 présente les mesures des déformations caractéristiques moyennes entre deux instants successifs pris sur le plateau  $|\dot{\gamma}_{plateau}|/f$ .

Pour l'ensemble des fractions volumiques, la mesure de la réponse transitoire depuis

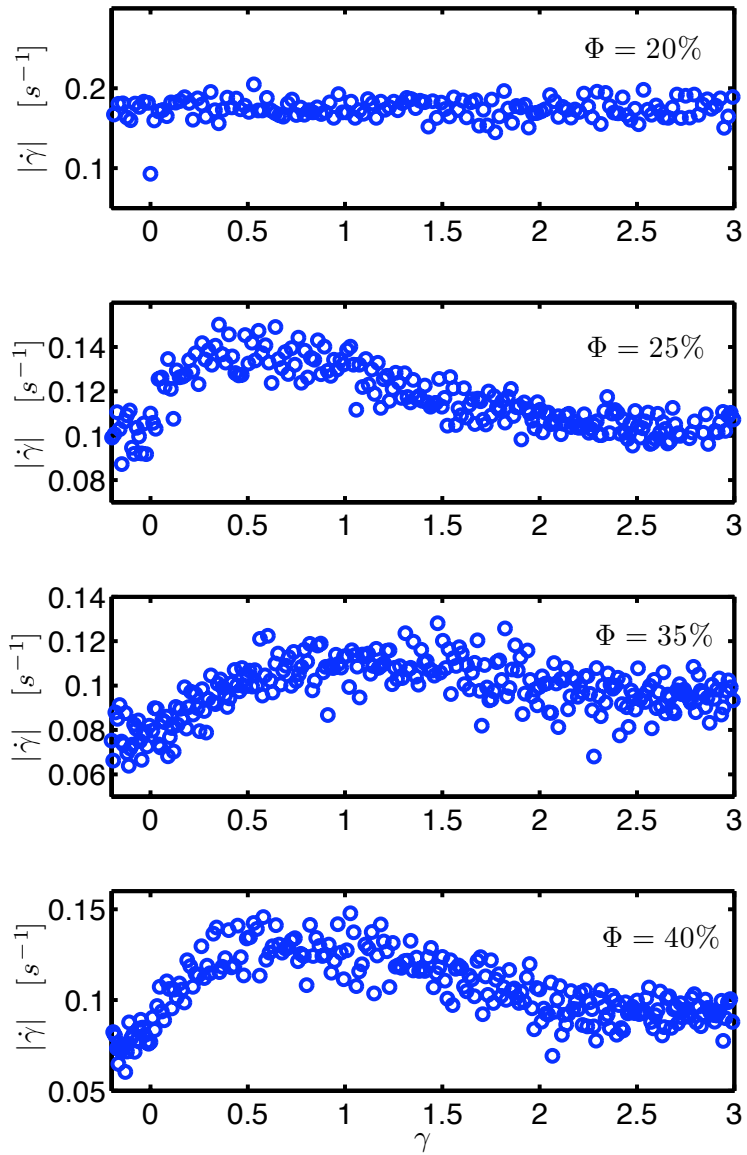


FIG. 5.32 – Taux de cisaillement moyen en fonction de la déformation moyenne après inversion de la contrainte de cisaillement pour différentes fractions volumiques.  $\gamma = 0$  : instant de l'inversion.

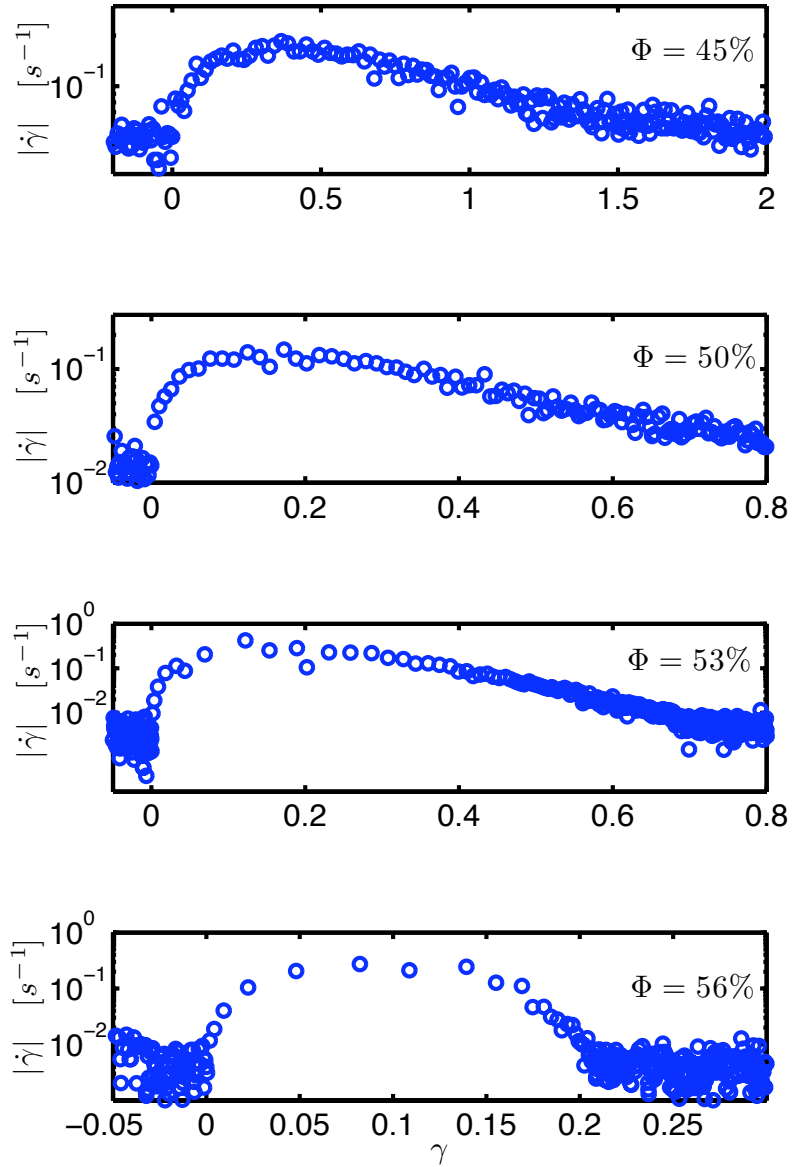


FIG. 5.33 – Taux de cisaillement moyen en fonction de la déformation moyenne après inversion de la contrainte de cisaillement pour différentes fractions volumiques.  $\gamma = 0$  : instant de l'inversion. Ordonnées : échelle log.

$\Phi$	$ M $ ( $\mu Nm$ )	Limite radiale de la moyenne $r_{min}/R_e - r_{max}/R_e$	Résolution en déformation $\Delta\gamma$	$ \dot{\gamma}_{plateau} /f$
0.2	45	0.86 – 0.91	$10^{-3}$	$2.0 \times 10^{-2}$
0.25	30	0.86 – 0.89	$4.10^{-4}$	$1.2 \times 10^{-2}$
0.35	50	0.87 – 0.88	$4.10^{-4}$	$7.9 \times 10^{-3}$
0.40	80	0.87 – 0.88	$4.10^{-4}$	$9.4 \times 10^{-3}$
0.45	210	0.87 – 0.88	$4.10^{-4}$	$4.1 \times 10^{-3}$
0.50	410	0.87 – 0.88	$2.10^{-4}$	$1.2 \times 10^{-3}$
0.53	2000	0.91 – 0.92	$2.10^{-4}$	$4.9 \times 10^{-4}$
0.56	10000	0.91 – 0.92	$2.10^{-4}$	$4.1 \times 10^{-5}$

TAB. 5.2 – Détails des protocoles expérimentaux permettant les mesures de taux de cisaillement locaux au cours des régimes transitoires.  $+|M|$  est le couple imposé au rotor avant l'inversion  $-|M|$ . Chacun des signaux présentés sur les fig. 5.32 et 5.33 est moyenné entre  $r_{min}/R_e - r_{max}/R_e$ .  $\Delta\gamma$  est l'écart quadratique moyen calculé au plateau de chacune des courbes présentées sur les fig. 5.32 et 5.33 divisé par la fréquence d'échantillonnage  $f = 8 Hz$  des flashes laser.  $|\dot{\gamma}_{plateau}|/f$  indique la déformation caractéristique entre deux points de mesures au plateau.

le plateau *aller* vers le minimum de viscosité est bien résolue. Quelle que soit la fraction volumique il n'existe pas de discontinuité du taux de cisaillement, donc de la viscosité, au moment de l'inversion du sens de l'écoulement. Notons ici que l'inertie du rhéomètre ne peut être rendu responsable d'un lissage du transitoire qui masquerait une éventuelle discontinuité. En effet, à partir de l'équation d'évolution de la vitesse de rotation  $\Omega$  :

$$I \frac{d\Omega}{dt} + \alpha\Omega = M \quad (5.5)$$

où  $M$  est le couple appliqué,  $I$  le moment d'inertie du rotor et  $\alpha = \frac{M}{\Omega_{plateau}}$  un coefficient proportionnel à la viscosité de la suspension, on peut écrire le temps caractéristique d'inertie du rotor :

$$\tau = \frac{I}{\alpha} \quad (5.6)$$

En supposant la suspension newtonienne,  $\alpha$  s'écrit :

$$\alpha = \frac{M}{\Omega_{plateau}} = \frac{4\pi L\eta}{\frac{1}{R_i^2} - \frac{1}{R_e^2}} \quad (5.7)$$

où  $L$  est la hauteur de fluide cisailée,  $\eta$  la viscosité de la suspension,  $R_i$  et  $R_e$  les rayons des cylindres. Le problème de la discontinuité se posant essentiellement pour les fractions volumiques importantes, nous prendrons  $\eta = \eta_{min}(\Phi = 0.45) \sim 10 Pa.s$ . Avec  $L = 50 mm$  et sachant que le moment d'inertie du cylindre mesuré sur le rhéomètre est  $I = 2.5 \times 10^{-5} kg.m^{-2}$ ,

on obtient  $\tau \sim 4 \times 10^{-3} \text{ s} < 1/f \sim 10^{-1} \text{ s}$ .

De même, le temps de diffusion de la quantité de mouvement sur l'ensemble du gap

$$\frac{e^2}{\nu} \sim \frac{(5 \cdot 10^{-3})^2}{10^{-2}} \sim 2.5 \times 10^{-3} \text{ s} \quad (5.8)$$

bien inférieur à la période d'échantillonnage du dispositif expérimental  $\frac{1}{f} \sim 10^{-1} \text{ s}$  ne peut être incriminé dans la continuité de la viscosité observé lors de l'inversion du sens de cisaillement.

### 5.4.3 Discussion

Comme Gadala-Maria et Acrivos (1980) l'ont suggéré, le régime transitoire observé après une inversion du sens de cisaillement s'explique par le passage d'une microstructure asymétrique vers la microstructure miroir par rapport au gradient de vitesse. Une étude en surface d'une suspension de fraction volumique 0.40 [Parsi & Gadala-Maria 1987] avait déjà qualitativement confirmé cette affirmation mais la résolution de cette expérience n'avait permis ni une analyse pendant le transitoire ni une description quantitative de la structure stationnaire. Les mesures des fonctions de distribution de paires après une inversion de cisaillement présentées au §5.4, menées en parallèle à des mesures de rhéologie locale, ont montré que l'établissement d'une microstructure développée vers la microstructure miroir transite par une microstructure symétrique par rapport au gradient de vitesse associée au passage de la viscosité par un minimum.

Des fonctions de distributions de paires angulaires mesurées au contact ( $2 < \rho/a < 2.001$ ) après une inversion de cisaillement (cf. fig. 5.34) obtenues par simulation numérique [Bricker & Butler 2007] montrent un comportement différent de nos résultats lorsque la viscosité passe par sa valeur minimum ( $\gamma \approx 1$ ). Alors que la PDF intermédiaire présentée sur la fig. 5.29 et calculée pour ( $1.8 < \rho/a < 2.1$ ) semble garder la mémoire de la structure au plateau, celle obtenue au contact par Bricker et Butler montre au contraire une quasi absence de particules. Ces résultats semblent indiquer que la physique du transitoire se passe dans la zone de lubrification proche de la surface des particules. Donc que l'essentiel de la contribution de la microstructure à la viscosité met en jeu des interactions entre les particules lorsque celles-ci sont très proches les unes des autres. On peut donc supposer qu'après l'inversion, au cours de la baisse de viscosité, les particules quittent la zone de lubrification et se distribuent *loin* les unes des autres, rendant la dissipation visqueuse plus faible. Dans cette situation, les différences de contraintes normales s'annulent comme le suggère le résultat numérique de la fig. 5.35–(droite) et la mesure de Kolli *et al.* (2002) (fig. 3.18).

La bonne résolution en déformation du dispositif expérimental en PTV a aussi per-

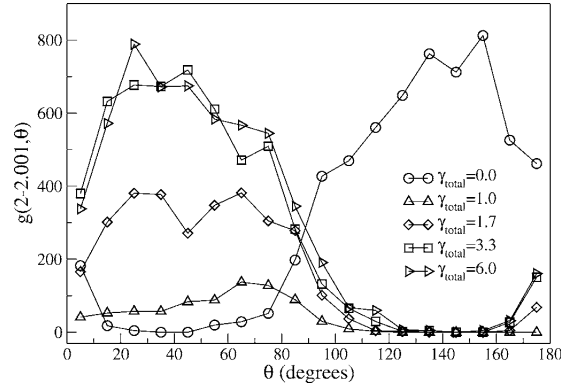


FIG. 5.34 – Fonction de distribution radiale au contact entre particules calculée au centre de l'entrefer en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement.  $\gamma_{total} = 0$  définit le moment de l'inversion. Quadrant de compression :  $0^\circ < \theta < 90^\circ$ .  $\gamma = 1$  correspond environ à la déformation pour laquelle la viscosité est minimum.  $\Phi = 0.60$ . D'après Bricker et Butler (2007).

mis pour la première fois de mettre en évidence qu'au moment de l'inversion, la viscosité ne subit pas de discontinuité. Cette observation semble confirmée par les simulations de Bricker et Butler (2007). La fig. 5.35–(gauche) représentent les contraintes de cisaillement après une inversion de cisaillement pour différentes fractions volumiques. Les courbes sont qualitativement identiques à celles de la fig. 5.26, malgré des variations d'ordres de grandeurs différents<sup>6</sup>. Cette absence de discontinuité montre qu'il n'y a pas de relaxation des contraintes dans la suspension au moment de l'inversion. Pour autant, ce résultat seul ne nous permet pas de conclure à l'absence de contraintes de contacts entre particules. En effet, si au moment de l'inversion de cisaillement, une force de lubrification compensait exactement les interactions de contact qui relaxent, alors la contrainte resterait vraisemblablement inchangée. De plus, en toute rigueur, s'il y a continuité, les contraintes normales devraient prendre une valeur exactement opposée au changement de sens. Cette observation n'est pas faite expérimentalement par Kolli *et al.* (2002) (fig. 3.18), mais on peut légitimement mettre en cause les temps de réponses importants des rhéomètres pour mesurer les forces normales. Remarquons pour finir que Bricker et Butler (fig. 5.35–droite) ne mesurent pas non plus de continuité pour  $N_1$ . On peut ici incriminer un éventuel bruit numérique comme le montre les fluctuations sur leurs résultats. Pour permettre de trancher cette question et valider ou non la continuité, il serait intéressant de mesurer directement les contraintes normales avec des capteurs locaux de pression [Singh & Nott 2003] [Dbouk 2011] pendant des expériences d'inversion de cisaillement.

6. Probablement dues à la limitation en monocouche de l'étude numérique.

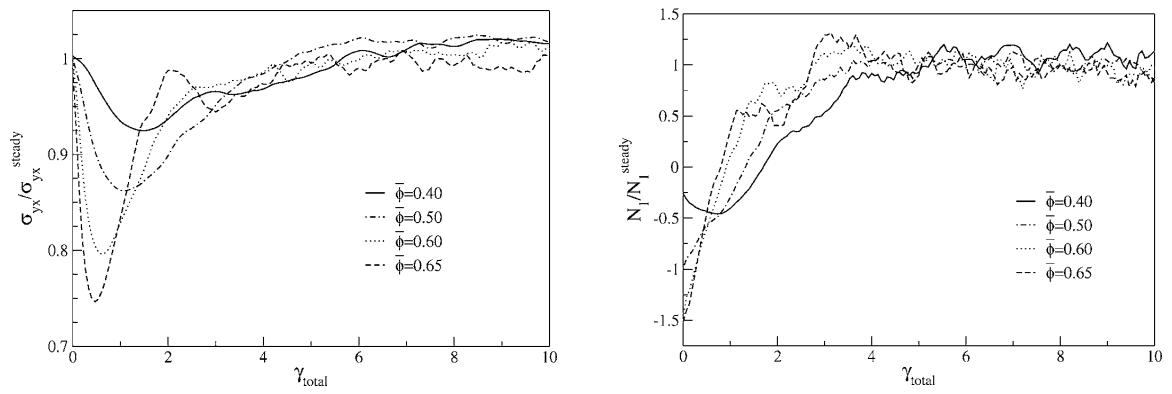


FIG. 5.35 – Gauche : contrainte de cisaillement en fonction de la déformation après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Largeur de l'entrefer :  $30a$ . Droite : première différence de contrainte normale après une inversion de cisaillement. Résultats obtenus après moyenne sur 10 simulations. Largeur de l'entrefer :  $30a$ . Résultats numériques d'une monocouche de particules d'après Bricker et Butler (2007).





# Conclusion

Ce manuscrit présente une étude expérimentale de la microstructure des suspensions de sphères non-browniennes en écoulement et de son lien avec leur réponse rhéologique. Il explore notamment le rôle important joué par les contacts à la fois sur la réponse mécanique de ces matériaux et sur leur microstructure. Deux dispositifs expérimentaux sont pour cela mis au point. Le premier, dit de rhéométrie locale, accède aux champs de vitesse de l'écoulement et aux quantités rhéologiques du matériau par le biais d'une technique non intrusive de vélocimétrie par imagerie de particules. Le second permet, grâce au suivi individuel des sphères solides, de réaliser une mesure directe de la microstructure de la suspension par le calcul des fonctions de distribution de paires (PDF).

Une étude en rhéométrie locale du régime transitoire qui fait suite à une inversion de cisaillement montre que la viscosité d'une suspension chute avant de revenir à la valeur qu'elle a en régime permanent. Alors que la viscosité à l'état stationnaire ( $\eta_{\text{plateau}}$ ) diverge avec une loi de puissance d'exposant (-2) lorsque la concentration s'approche de la concentration de blocage, la viscosité minimale ( $\eta_{\text{min}}$ ) diverge avec un exposant (-1). Ces deux états qui correspondent à des histoires de cisaillement différentes, sont associés à des microstructures différentes. Lorsqu'une suspension atteint le régime permanent (la migration n'est pas ici discutée), la microstructure est pleinement développée et les mesures indiquent clairement que la fonction de distribution de paires est anisotrope et asymétrique par rapport au gradient de vitesse. Après l'inversion du sens de cisaillement, cette microstructure établie doit se reformer en une microstructure miroir. Pour cela, la distribution spatiale des particules doit se modifier avec la déformation et j'ai montré que lorsque la viscosité passe par le minimum, la microstructure perd l'asymétrie du régime permanent. La divergence de la viscosité au minimum en puissance (-1) lorsque la concentration en particules tend vers la concentration de packing rappelle les résultats théoriques de Mills et Snabre (2010), et numériques de Sierou et Brady (2001) qui calculent la viscosité d'une suspension de particules distribuées aléatoirement n'interagissant qu'au travers de forces hydrodynamiques. Cependant, la PDF, mesurée lorsque la viscosité passe par le minimum, n'apparaît pas isotrope mais seulement symétrique par rapport au gradient de vitesse. Il est probable que l'anisotropie de la PDF soit le reflet d'une structuration "à grande échelle" de la suspension mais que sa structure à l'échelle des distances inter-particulaires soit isotrope. En effet, compte tenu de la résolution radiale du dispositif de suivi de particules, nous n'accédons pas à la distribution statistique très proche du contact au contraire de Bricker et Butler (2007) qui calculent en dynamique stokésienne une PDF pour des distances inter-particulaires inférieures à  $10^{-3}a$  et montrent que la structure est quasi-isotrope au minimum de viscosité (contrairement au cas du cisaillement permanent). Cette différence indique bien que la microstructure dépend

de l'échelle de mesure considérée et que la réponse mécanique de la suspension pendant le régime transitoire est due à des interactions dans une zone proche de la surface des particules.

Pour mesurer l'importance de la microstructure sur la rhéologie des suspensions et en suivant le travail de Morris et Brady (2002), j'ai introduit la viscosité structurale ( $\eta_{\text{plateau}} - \eta_{\text{min}}$ ). La comparaison entre des mesures de différences de contraintes normales [Boyer *et al.* 2011] [Dbouk 2011] et de viscosité structurale suggère le rôle important joué par les contacts dans la réponse mécanique des suspensions. Notamment, la contribution de la microstructure à la rhéologie apparaît de manière significative pour  $\Phi > 0.20$  et gagne en importance à mesure que la concentration augmente.

Une preuve directe de contact entre les sphères via les rugosités est présentée à travers la mesure de la microstructure d'une suspension diluée. En effet, la mesure de l'asymétrie amont-aval et de l'inclinaison de la zone de déplétion de la fonction de distribution de paires d'une suspension de concentration 0.05 est très bien reproduite par un modèle à deux particules. Un ajustement entre le modèle numérique et la mesure expérimentale (bien résolue) permet de retrouver la rugosité de surface des particules.

Une étude systématique des fonctions de distribution de paires de suspensions en régime permanent en fonction de la fraction volumique montre que toutes les PDF présentent une asymétrie amont-aval avec en particulier une zone de déplétion proche du contact, dans une direction donnée. Pour  $\Phi \leq 0.15$ , la concentration ne modifie pratiquement pas les mesures de la PDF et la direction de la zone de déplétion, proche de l'axe de la vitesse, reste inchangée. Pour de telles fractions volumiques, le modèle à deux particules semble ainsi suffisant pour décrire la microstructure. Pour  $\Phi > 0.20$ , on observe une inclinaison de la zone de déplétion vers l'axe de dilatation accompagné d'une rotation globale de la microstructure.

L'ensemble de ces résultats indique qu'il existe une fraction volumique de transition  $\Phi_c$  de l'ordre de 0.20 en-dessous de laquelle les contacts jouent un rôle mineur sur la rhéologie des suspensions (bien qu'ils soient responsables de l'apparition d'une microstructure asymétrique et anisotrope), et au-dessus de laquelle les contacts apparaissent comme non négligeables à la fois sur la viscosité de cisaillement et les différences de contraintes normales.

Il apparaît donc important pour mieux comprendre la réponse mécanique d'une suspension concentrée de sphères dures non-browniennes d'explorer dans l'avenir le lien entre la rugosité des sphères et cette fraction volumique de transition  $\Phi_c$ .

En plus d'une inclinaison de la zone de déplétion vers l'axe de dilatation, il apparaît, sur les fonctions de distribution de paires des suspensions très concentrées, une zone d'accumulation dans la direction de la vitesse. Cette accumulation, qui traduit une plus forte probabilité de trouver des paires dans la direction de l'écoulement, trouve probablement son origine dans un effet de taille finie. En effet, ce pic de probabilité apparaît de manière concomitante avec une structuration en bandes près des parois de la cellule d'écoulement. Cette

observation nécessite toutefois une étude plus détaillée dans laquelle il s'avérera important de modifier la largeur de l'entrefer. Ce résultat, s'il était confirmé, pointerait une difficulté expérimentale supplémentaire pour déduire le comportement rhéologique intrinsèque d'une suspension très concentrée de mesures macroscopiques.

Ce travail a été rendu possible par un financement de l'ANR (ANR-08-BLAN-0048-CSD2).



# Correction du glissement par comparaison entre des transitoires en rhéologie locale et macroscopique

---

Toutes les mesures présentées dans cette section sont effectuées sur une suspension de fraction volumique  $\Phi = 0.47$ . Des mesures macroscopiques en entrefer étroit sont comparées à des mesures locales en entrefer large et une correction de glissement est proposée.

Les mesures de rhéologie en faible entrefer sont réalisées avec une géométrie de Couette cylindrique (Z40Ti, Thermofisher) sur un rhéomètre à contrainte imposée Mars II (Haake, Thermofisher). Le diamètre du rotor est  $2R'_i = 41.42 \text{ mm}$ , l'entrefer est  $e' = R'_e - R'_i = 0.99 \text{ mm}$  et la hauteur est  $L = 55 \text{ mm}$ . Les mesures en entrefer large sont réalisées en  $r = 0.77 \times e$  ( $e = 10 \text{ mm}$ ).

Une fois la suspension introduite dans la cellule d'écoulement faible entrefer, une contrainte est appliquée sur une déformation de 365 puis son signe est inversée. Les mesures de viscosité locale et macroscopique effectuées au moment de l'inversion du sens de rotation pour deux contraintes de cisaillement, 4.25 Pa (ligne pleine) et 5.95 Pa (ligne brisée), sont présentées sur la figure A.2. La viscosité macroscopique apparente est systématiquement inférieure à la viscosité locale de la suspension suggérant un glissement aux parois de la cellule Z40Ti. En effet, à cause du glissement aux parois, le taux de cisaillement réel dans la suspension est plus petit que celui mesuré (fig. A.1-a). Macroscopiquement, la viscosité apparente est donc sous-évaluée par rapport à la viscosité réelle, et la déformation est surévaluée.

Par des mesures locales effectuées en vélocimétrie par Doppler Laser, Jana *et al.* (1995) ont montré que le glissement à une paroi peut être modélisé par une vitesse de glissement proportionnelle au taux de cisaillement à cette paroi :

$$v_s = \frac{\eta_r}{q} \dot{\gamma} a \quad (\text{A.1})$$

où  $a$  est le rayon de la particule,  $\eta_r$  la viscosité réduite de la suspension et  $q$  une constante déterminée expérimentalement sur une série de suspensions qui ont été précisailées et dont par conséquent les particules ont migré. Jana et collaborateurs trouvent  $q = 8$ . On peut

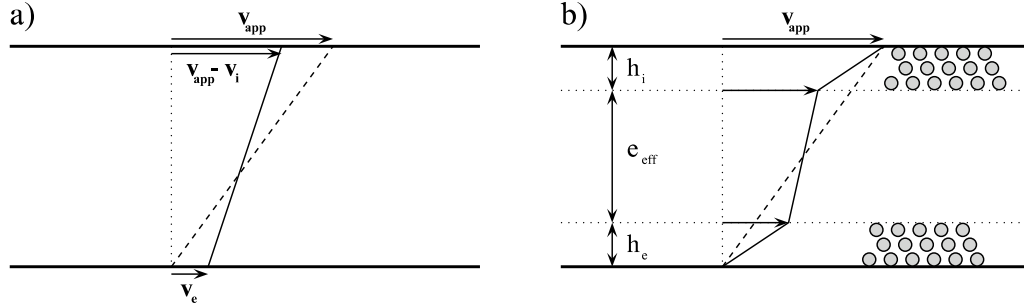


FIG. A.1 – a) Glissement aux parois. Les vitesses de glissement aux parois  $v_i$  et  $v_e$ , induisent un taux de cisaillement apparent (ligne brisée) plus grand que le taux de cisaillement réel (ligne pleine). b)  $h_i$  et  $h_e$  sont les longueurs de glissement non prises en compte dans le modèle de Jana et al.. Le gap effectif  $e_{eff}$  est plus petit que le gap réel.

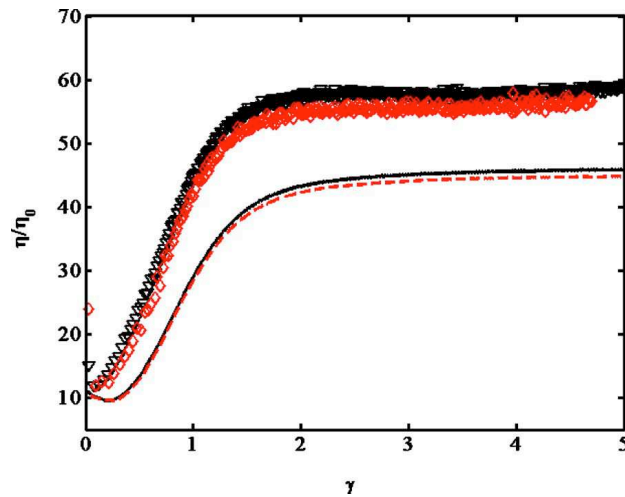


FIG. A.2 – Réponse de la viscosité d'une suspension  $\Phi = 0.47$  à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large :  $\sigma = 4.25$  Pa ( $\nabla$ ) -  $\sigma = 5.95$  Pa ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit :  $\sigma = 4.25$  Pa (ligne pleine) -  $\sigma = 5.95$  Pa (ligne brisée).

noter que dans notre cas, contrairement à l'étude de Jana, les suspensions peuvent être considérées comme homogènes<sup>1</sup>. En s'inspirant de Jana *et al.*, introduisons les vitesses de glissement au rotor et au stator :  $v_{si}$  et  $v_{se}$ . Dans l'hypothèse d'un matériau visqueux et homogène et avec les conditions aux limites suivantes,

$$v(r = R'_i) = \Omega R'_i - v_{si} \quad (\text{A.2})$$

$$v(r = R'_e) = v_{se} \quad (\text{A.3})$$

où  $\Omega$  est la vitesse angulaire du rotor. Le profil de vitesse dans l'entrefer s'écrit alors :

$$\frac{v}{r} = \frac{R'_e - r^2}{R'_e - R'^2_i} \left( \frac{R'_i}{r} \right)^2 \left( \Omega - \left( \frac{v_{si}}{R'_i} + \frac{v_{se}}{R'_e} \right) \right) + \frac{v_{se}}{R'_e} \quad (\text{A.4})$$

et le taux de cisaillement,

$$|\dot{\gamma}| = \left| r \frac{d}{dr} \left( \frac{v}{r} \right) \right| = \left( 2 \frac{R'^2_e}{R'^2_e - R'^2_i} \left( \frac{R'_i}{r} \right)^2 \right) \left( \Omega - \left( \frac{v_{si}}{R'_i} + \frac{v_{se}}{R'_e} \right) \right) \quad (\text{A.5})$$

Des équations (A.1) et (A.5) on déduit

$$\frac{v_{si}}{v_{se}} = \frac{R'^2_e}{R'^2_i} \quad (\text{A.6})$$

En utilisant (A.5) et (A.6), on calcule le taux de cisaillement au rotor

$$\dot{\gamma}(R'_i) = \frac{2R'^2_e \Omega}{R'^2_e - R'^2_i} \frac{1}{1 + \frac{2}{R'^2_e - R'^2_i} \left( \frac{R'^2_e}{R'_i} + \frac{R'^2_i}{R'_e} \right) \frac{\eta_r a}{q}} \quad (\text{A.7})$$

$$= \dot{\gamma}^{app} \frac{1}{1 + \frac{2}{R'^2_e - R'^2_i} \left( \frac{R'^2_e}{R'_i} + \frac{R'^2_i}{R'_e} \right) \frac{\eta_r a}{q}} \quad (\text{A.8})$$

avec  $\dot{\gamma}^{app}$  le taux de cisaillement apparent au rotor.

En utilisant (A.8) et en notant que la contrainte de cisaillement s'écrit

$$\sigma = \eta_0 \eta_r \dot{\gamma} = \eta_0 \eta_r^{app} \dot{\gamma}^{app} \quad (\text{A.9})$$

on obtient les expressions du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  et de la viscosité relative  $\eta_r$  en fonction

---

1. Voir §3.2 pour une preuve expérimentale.



de leurs valeurs apparentes  $\dot{\gamma}^{app}$  et  $\eta_r^{app}$

$$\dot{\gamma} = \dot{\gamma}^{app} \left( 1 - \frac{2\eta_r^{app}}{q} \frac{a}{R_e'^2 - R_i'^2} \left( \frac{R_e'^2}{R_i'} + \frac{R_i'^2}{R_e'} \right) \right) \quad (\text{A.10})$$

$$\eta_r = \frac{\eta_r^{app}}{1 - \frac{2\eta_r^{app}}{q} \frac{a}{R_e'^2 - R_i'^2} \left( \frac{R_e'^2}{R_i'} + \frac{R_i'^2}{R_e'} \right)} \quad (\text{A.11})$$

ainsi que la déformation

$$\gamma = \int_0^{\gamma_{app}} \left( 1 - \frac{2\eta_r^{app}(u)}{q} \frac{a}{R_e'^2 - R_i'^2} \left( \frac{R_e'^2}{R_i'} + \frac{R_i'^2}{R_e'} \right) \right) du \quad (\text{A.12})$$

La figure A.3 montre les mesures locales en PIV et les mesures en entrefer étroit corrigées par la relation (A.11) avec  $q = 6.8$  pour laquelle la viscosité au plateau est corrigée de façon optimale. Cette valeur de  $q$  n'est pas celle trouvée par Jana *et al.* ( $q=8$ ), mais il existe plusieurs raisons à cette différence. D'abord, on s'attend à ce que le glissement dépende de la rugosité et de la nature du matériau composant la cellule d'écoulement. Par ailleurs, Jana *et al.* ont mené leur étude sur une suspension dont les particules avaient migré tandis que nos mesures sont effectuées sur une suspension homogène. En revanche, la fig. A.3 montre que la correction de glissement proposé par Jana *et al.* ne permet pas de rendre compte des mesures effectuées en régime transitoire, la viscosité en gap étroit étant alors inférieure à la viscosité locale. Ceci sous entend probablement que la correction de glissement dépend de la structure de la suspension et n'est valable que lorsque la microstructure a atteint son état stationnaire.

Remarquons, sans toutefois pouvoir l'expliquer, qu'en remplaçant dans (A.1)  $\eta_r(\gamma)$  par la valeur de plateau  $\eta_r(\gamma \rightarrow \infty)$ , l'accord entre les mesures est bien meilleur (fig. A.4).

Enfin, rappelons qu'une série de mesures en entrefer étroit à permis d'obtenir la loi de constitution

$$\sigma_{r\theta} = 38.7 \times \dot{\gamma}_{app}^{0.92} \quad (\text{A.13})$$

La valeur de  $q = 6.8$  dans la relation (A.10) permet de corriger les valeurs de taux de cisaillement apparent et ainsi d'extrapoler la relation (fig.3.1)

$$\sigma_{r\theta} = 45.9 \times \dot{\gamma}^{0.90} \quad (\text{A.14})$$

En comparant (A.13) et (A.14), on note que le glissement induit une sous-évaluation à la fois de la viscosité, et du caractère rhéofluidifiant de la suspension.

Pour conclure sur le glissement, et apporter une limitation au modèle de Jana *et al.*, notons que la loi (A.1) est difficile à appliquer pour toute valeur de  $\eta_r$  et  $a/e$ . En effet, pour

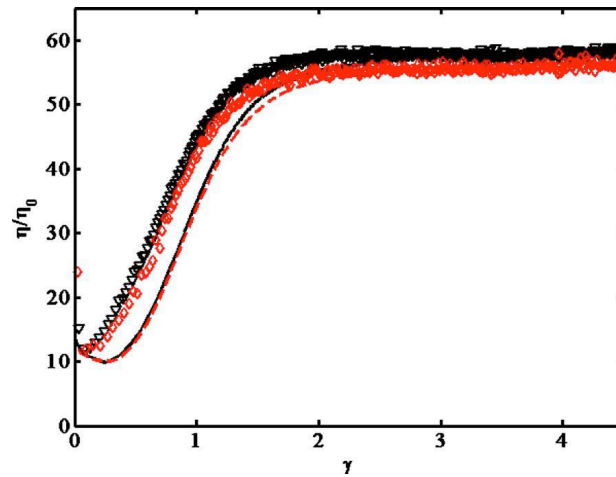


FIG. A.3 – Réponse de la viscosité d'une suspension  $\Phi = 0.47$  à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large :  $\sigma = 4.25 \text{ Pa}$  ( $\nabla$ ) -  $\sigma = 5.95 \text{ Pa}$  ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit corrigées en glissement :  $\sigma = 4.25 \text{ Pa}$  (ligne pleine) -  $\sigma = 5.95 \text{ Pa}$  (ligne brisée).

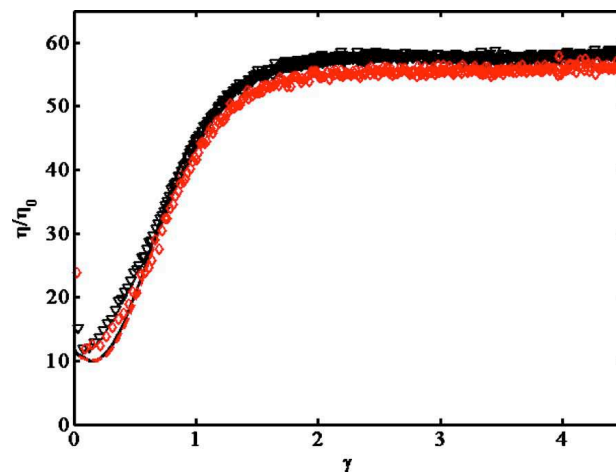


FIG. A.4 – Réponse de la viscosité d'une suspension  $\Phi = 0.47$  à une inversion de contrainte de cisaillement. Mesures en PIV entrefer large :  $\sigma = 4.25 \text{ Pa}$  ( $\nabla$ ) -  $\sigma = 5.95 \text{ Pa}$  ( $\diamond$ ). Mesures en entrefer étroit corrigées en glissement :  $\sigma = 4.25 \text{ Pa}$  (ligne pleine) -  $\sigma = 5.95 \text{ Pa}$  (ligne brisée). La correction est effectuée en utilisant la viscosité de plateau  $\eta_r(\gamma \rightarrow \infty)$

$R'_i \approx R'_e$ , la relation (A.11) s'écrit

$$\eta_r = \frac{\eta_{r_{app}}}{1 - \frac{\eta_{r_{app}}}{q} \frac{2a}{e}} \quad (\text{A.15})$$

$$\eta_{r_{app}} = \frac{\eta_r}{1 + \frac{\eta_r}{q} \frac{2a}{e}} \quad (\text{A.16})$$

Lorsque

$$\frac{\eta_r}{q} \frac{2a}{e} \gg 1 \iff \frac{e}{2a} \ll \frac{\eta_r}{q} \quad (\text{A.17})$$

alors,

$$\eta_{r_{app}} \approx \frac{qe}{2a} \quad (\text{A.18})$$

Dans ces conditions  $\eta_{r_{app}}$  est indépendante de  $\eta_r$ , et directement reliée au nombre de particules dans l'entrefer. De plus, d'après la relation (A.15), les valeurs de  $\eta_r$  seront très sensibles aux erreurs expérimentales. Autrement dit, lorsque  $\frac{\eta_{r_{app}}}{q} \frac{2a}{e} \sim 1$ , une petite erreur sur  $\eta_{r_{app}}$  peut induire d'importantes erreurs pour  $\eta_r$  (notamment des changements de signes). Pour fixer les idées, pour  $\eta_r \sim 50$  et  $q = 8$ ,  $\frac{\eta_r}{q} \sim 6 \sim \frac{e}{2a}$ . La loi (A.1) ne peut donc être utilisée lorsque l'entrefer ne contient qu'un nombre limité de couches de particules. Ceci est compréhensible si l'on se rappelle que le modèle de Jana néglige toute longueur de glissement (fig. A.1-b), décrivant l'extension spatiale de l'influence des parois sur l'écoulement, qu'on évalue à quelques particules ( $\sim 5$  cf. chapitre 5). Ainsi, en ne tenant pas compte de cette réduction effective de largeur d'entrefer ( $e_{eff}$ ), en plus d'être sensible aux erreurs de mesures, la viscosité déduite du modèle est systématiquement sur-évaluée.

# Explication de la faible valeur de la fraction volumique d'empilement maximum des suspensions de CA30 dans le Cargille

---

La valeur  $\Phi^* = 0.534$  déduite des mesures de viscosité est inférieure aux données de la littérature [Stickel & Powell 2005][Ovarlez *et al.* 2006] qui sont plutôt situées autour de 0.60 pour des suspensions non-colloïdales (notée  $\Phi_{nc}$ ). Cependant, certaines publications font références à des fractions volumiques maximum de l'ordre de 0.58 [Acrivos *et al.* 1994] [Zarraga *et al.* 2000]. Il semble que cette large disparité de valeur dépende fortement des types de matériaux et liquides suspendants utilisés, de la méthode de cisaillement des suspensions, ainsi que de la loi  $\eta(\Phi)$  par laquelle les courbes expérimentales sont ajustées. Quoiqu'il en soit, la valeur que nous mesurons est bien trop faible et semble être la signature d'interactions entre particules. Ceci est surprenant car des particules de diamètre  $31 \mu m$  sont généralement considérées comme non-colloïdales. Ayant contacté le fabricant (Microbeads SA) des particules CA30, nous avons appris que lors de la synthèse des particules, de la cellulose était ajoutée afin de stabiliser les gouttes de polymère avant réticulation. Il semblerait qu'une couche de cellulose reste à la surface des particules et puisse être à l'origine d'interactions stériques entre particules. Notons qu'un lavage des particules à l'eau distillée ou à l'éthanol ne change pas la valeur de  $\Phi^*$ .

La longueur caractéristique  $\delta$  des interactions entre particules est estimée en considérant le volume exclu créé par la répulsion entre chaque particules :

$$\left(\frac{a + \delta}{a}\right)^3 \approx \frac{\Phi_{nc}}{\Phi^*} \quad (\text{B.1})$$

En prenant  $\Phi_{nc} = 0.61$ , l'éq. (B.1) donne  $\delta \approx 1 \mu m$

La présence d'interactions répulsives est corroborée par une réponse élastique des suspensions comme le montre le test de recouvrance présenté sur la fig. B.1 pour une fraction volumique  $\Phi = 0.444$ . Pour  $t < 0$ , on impose un couple et donc une vitesse de rotation

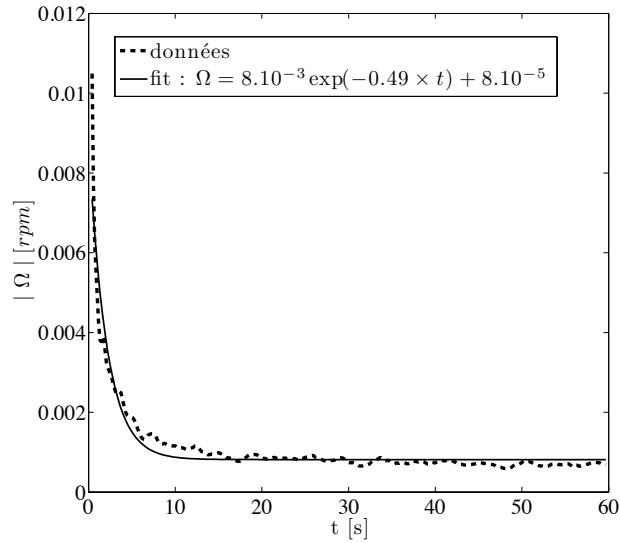


FIG. B.1 – *Transitoire de recouvrance après annulation du couple.  $\Phi = 0.444$*

constante. A  $t = 0$ , on annule le couple, le rotor tourne alors dans le sens opposé, puis sa vitesse angulaire relaxe vers zéro. La relaxation est bien ajustée par une fonction exponentielle de temps caractéristique  $\tau \approx 2 \text{ s}$  qui, d'après le modèle de Maxwell, correspond a un module élastique d'environ  $\eta/\tau \approx 8 \text{ Pa}$ .

Par ailleurs, une telle interaction répulsive est responsable d'une perturbation de la microstructure induite par l'écoulement. En effet, des créneaux de couple séparés par des périodes de repos de plus en plus longue (fig. B.2-a), on observe à chaque reprise du cisaillement une survitesse du rotor par rapport à la vitesse de plateau (i.e. une viscosité plus petite). De plus, l'amplitude de la survitesse croît avec la durée de la pause (fig. B.2-b). Cette observation peut être interprété de la manière suivante ; pendant les périodes de cisaillement, les particules ont tendance à se rapprocher et à s'aligner suivant l'axe de compression hydrodynamique. Une fois la contrainte relâchée, les particules s'éloignent les unes des autres sous l'effet de l'interaction répulsive. Après une période de recouvrance suffisante, la microstructure devient plus lâche et la viscosité retrouve une valeur proche de la viscosité minimum observée lors d'une inversion de cisaillement (§3.4).

Ainsi cette succession d'observations, qui montre clairement qu'il existe une composante élastique dans le comportement de la suspension associée à la mesure d'une faible valeur de compacité maximale, peut sans doute être interprétée par la présence d'interactions interparticulaires répulsives.

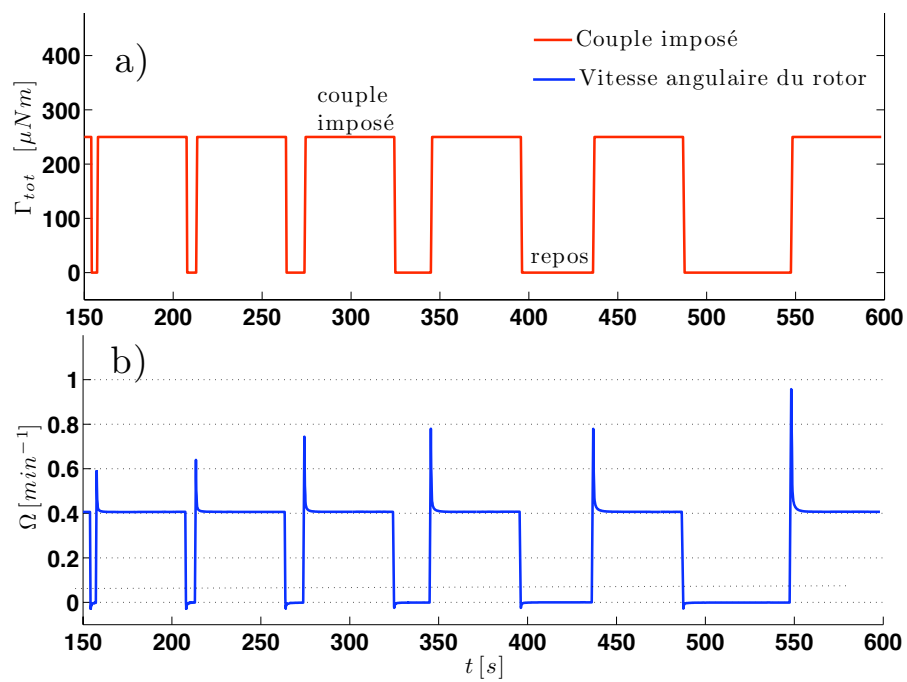


FIG. B.2 – Étude de la réponse élastique d'une suspension. a) Créneaux de couple imposé séparés par des périodes de repos de durées croissantes. b) Vitesse angulaire du rotor. L'amplitude de la survitesse croît avec la durée de la pause.  $\Phi = 0.444$ .



# Procédure de contrôle des profils de fractions volumiques lors d'une grande déformation

---

En suivant la procédure décrite au §2.3 et en utilisant la relation 3.11, on déduit les profils de concentration des profils de viscosité réduite (fig. 3.9)

$$\Phi(r, t) = \Phi^* \left( 1 - \eta_r(r, t)^{-\frac{1}{n}} \right) \begin{cases} n & = & 2 \\ \Phi^* & = & 0.534 \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

Rappelons qu'à la différence d'une technique RMN qui mesure directement la concentration locale de particules, les profils de concentration ici obtenus sont déduits :

- d'un ajustement de la vitesse de la forme  $ar + \frac{b}{r} + \frac{c}{r^2}$  (§2.3.3).
- des paramètres  $n$  et  $\Phi^*$ , également tirés d'un fit.

Pour vérifier la pertinence des profils obtenus, on calcule pour chacun d'entre eux la fraction volumique moyenne dans le gap

$$\bar{\Phi}(t) = \frac{1}{R_e - R_i} \int_{R_i}^{R_e} \Phi(r, t) dr \quad (\text{C.2})$$

qu'on compare à  $\Phi_{moyen}$  de la suspension. La fig.C.1 représente  $\bar{\Phi}$  en fonction du nombre de révolutions du rotor. La fraction volumique moyenne préparée est 0.444. La moyenne temporelle de  $\bar{\Phi}(t)$  est 0.445. Les variations observées de  $\bar{\Phi}(t)$  sont de l'ordre de 0.3%.

Ainsi, bien que dépendant de multiples étapes d'extrapolation de données, les profils de fractions volumiques obtenus conservent le nombre de particules dans le gap et valident l'ensemble de la procédure de détermination de la concentration locale.



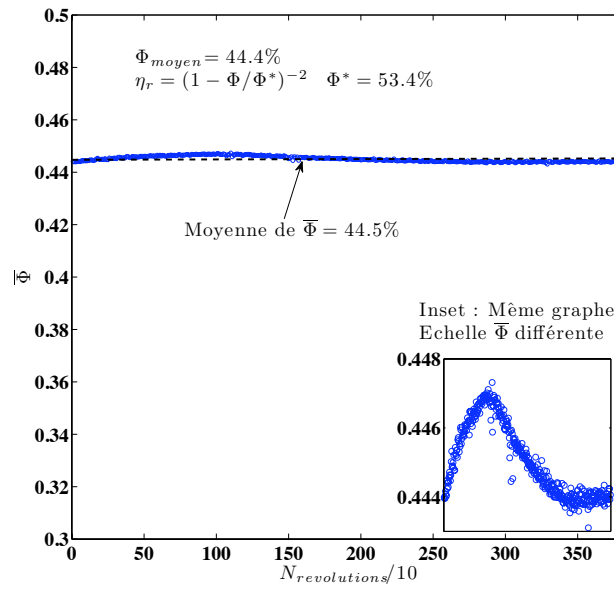


FIG. C.1 – Évolution de la moyenne de la fraction volumique calculée à partir des profils expérimentaux. Ligne brisée : moyenne temporelle de  $\bar{\Phi}(t)$ .  $\Phi_{moyen} = 0.444$ .

ANNEXE D

Particle Image Velocimetry in  
Concentrated Suspensions :  
Application to Local Rheometry

---



## Particle Image Velocimetry in Concentrated Suspensions: Application to Local Rheometry

Frédéric Blanc      François Peters      Elisabeth Lemaire\*

CNRS, Université de Nice, LPMC-UMR 6622, 06108 Nice Cedex 2, France

### Abstract

This paper presents an experimental facility that allows simultaneous viscosimetric and Particle Image Velocimetry measurements on concentrated suspensions in a wide-gap Couette rheometer. The experimental procedure is detailed: the optical characteristics of the index-matched suspension are carefully studied, the bottom end effect on both the viscosimetric measurements and the recorded velocity profiles are analysed. First the experimental procedure is tested on a Newtonian fluid whose viscosity is known. The spatial and time resolutions of our device are shown to be  $200 \mu\text{m}$  and  $100\text{ms}$  respectively. The precision of the local viscosity measurement is evaluated to better than 4%.

Then we show that the device can be used to characterize the rheological behaviour of a 47%-concentrated suspension of  $30 \mu\text{m}$  spheres. According to the particles large size, the Brownian motion can be neglected. However, colloidal interaction are still noticeable.

### Introduction

The knowledge of the rheological behaviour of concentrated suspensions of solid particles is an important issue since suspensions are involved in many domains like industrial processes or geophysical phenomena. A theoretical understanding of the mechanical behaviour of concentrated suspensions is difficult because of the particle interactions and its experimental characterization is complicated by numerous disturbing effects such as shear induced particle migration or wall slip. During these last decades, a significant effort has been made to develop non-invasive techniques that ensure that the measured properties are actually

\*Author to whom all correspondence should be addressed

the bulk properties of the suspensions. Among these techniques, we may cite the Ultrasound Doppler Velocimetry (UDV)[1], the Laser Doppler Velocimetry (LDV)[2][3][4], the Magnetic Resonance Imaging (MRI)[5][6][7], the Particle Tracking Velocimetry (PTV) [8] [9] and the Particle Image Velocimetry (PIV)[10][11][12][13]. UDV use is restricted to rather low concentrated suspensions especially when the particle size is not very small compared to the acoustic wavelength. The MRI is a very powerful technique [14] that allows measuring both the particle concentration and the velocity profiles. Unfortunately, the MRI technique does not allow carrying out the measurements directly inside a commercial viscometer and, usually, the rheological measurements have to be made separately. If one wants to compare simultaneously macroscopic and local rheological measurements, the LDV or PIV techniques are suitable since they are easily implemented on a rheometer but they require to use an index-matched suspension (for a recent review, see [15]). The LDV allows very accurate measurements of the mean and fluctuating parts of the velocity [4] but, since it is a pointwise method, the instantaneous velocity profile cannot be determined. The PIV and PTV are now broadly used techniques in flow measurements [10] but they remain challenging techniques in concentrated heterogeneous media[8][16]. Nevertheless they have been successfully employed to measure velocity fields in concentrated suspensions [11][12][17][18] .

In this paper we describe the PIV facility that we have developed in order to study the rheological behaviour of concentrated suspensions in a wide-gap Couette viscosimeter. We first present the suspension characteristics and detail the experimental device. Then, we validate our experimental procedure with a Newtonian liquid whose viscosity is known and, at last, we present the local rheological measurements performed on a concentrated suspension ( $\Phi=47\%$ ).

## Transparent concentrated suspension

The suspensions that we study here are composed of monodisperse spherical PMMA particles (manufactured by Microbeads, diameter  $31\mu m \pm 4\mu m$ , density 1.178) immersed in a mineral oil (manufactured by Cargille,  $\eta_0 = 1.03 \pm 0.01$  Pa.s at  $34^\circ\text{C}$ ) which is Newtonian. We have prepared suspensions of various concentrations between 30% and 50%. The fluid is chosen to match both the refractive index and density of the particles. At  $25^\circ\text{C}$ , its refractive index  $n = 1.4900 \pm 0.0005$ , its density is 1.18 and its thermal expansion is  $3.6 \cdot 10^{-3}/^\circ\text{C}$ . Thus no sedimentation is observed in the suspensions which are almost transparent, as required by the PIV measurements.

In order to improve the transparency of the suspensions we have to match as closely as possible the refractive index of the particles and of the suspending liquid. This is achieved by controlling the temperature of the suspensions thanks to the Christiansen effect [19][20]. Indeed, the refractive indices of the particles and of the host liquid do not vary in the same way with the temperature. Thus it is possible to improve the index matching at a given wavelength upon varying the temperature. The optimal temperature has been determined by measuring the transmittance of a  $\Phi=50\%$  suspension as a function of the temperature. Figure 1 shows the results obtained with a spectrophotometer (Varian Cary 500). The transmittance is therefore maximum for a temperature  $T=34^\circ\text{C}$ . All the PIV measurements will be performed at this temperature.

At last, a small amount of the particles (between 0.15% and 0.25%) from the same batch are tagged with a fluorescent dye (Nile Blue A) and serve as PIV-tracers. To dye the particles, we disperse them in a dye-saturated ethanol solution which is heated at  $50^\circ\text{C}$  during one hour. The particles are then rinsed in ethanol until the liquid is clear. They are dried and sieved to eliminate possible clusters. The procedure of immersing the particles in ethanol was not found to have any discernible effect on the PMMA particles. Using Scanning Electron Microscopy, we have been able to observe that their size and surface have not been modified.

We have checked that at  $T=34^\circ\text{C}$ , no sedimentation was observed for several tens of hours. To this purpose, the positions of the fluorescent particles in the laser sheet have been recorded and no displacement was observed.

[Figure 1 about here.]

## Description of the flow cell

The rheology of the suspensions is studied in a wide-gap Couette geometry mounted on a controlled-stress rheometer Mars II (Haake). The particles and the fluid are mixed together in the viscosimeter cup which is removable. During the mixing, many air bubbles are trapped in the suspension. They are removed by vacuum degassing after the mixing has stopped. The outer cylinder is then fixed on the reference plane of the rheometer with four screws. The inner cylinder is then slowly moved down until it is located 1 mm above the bottom of the cup. We have chosen such a small distance between the bob and the cup to limit the particle migration from or toward the region situated below the rotor [21]. In turn, we expect to observe significant end effects even though the rotor has been specially designed to reduce the bottom viscous friction. A cavity has been

made in the lower part of the rotor so that an air bubble is trapped between the rotor and the cup and the wall around the bubble has been bevelled (see Figure 2). The inner rotating cylinder ( $2R_{in} = 28mm$  in diameter, 60 mm in height) and the outer stationary cup ( $2R_{out} = 48mm$  in diameter, 60 mm in height) are made of PMMA, so that their refractive index is approximately matched with the suspension one. The front face has been polished in the form of a rectangular window that lets the laser sheet enter the gap between the cylinders almost without refraction. The inner cylindrical walls have been roughened (except the cup bottom which, on the contrary, has been polished) to minimize the suspension slip.

[Figure 2 about here.]

## Description of the experimental device

Figure 3 offers a schematic view of the device. An externally triggered horizontal laser sheet (Lasiris TEC Laser, Stockeryale, 635 nm, 35mW), roughly 100  $\mu m$  thick, illuminates the transparent suspension located in the wide-gap Couette cell. A camera (PLB 741 U, Pixelink, 1280x1024  $pix^2$ ) records successive images of the fluorescent tagged particles. The laser sheet and the camera are fixed on an arc which can be vertically translated. We can thus measure the particles displacement at any height in the suspension.

The laser light excites the dyed tracers which emit isotropically around 650 nm. A high pass filter in front of the camera allows only the fluorescent light to be detected. Thus the scattered and refractive light from the laser is cut off. Linear and tilt stages (Newport) allow positioning the camera and setting the laser sheet horizontally. In order to control the temperature, the device is placed in an isothermal box made of wood covered with 2 cm thick polyurethane sheets. The box is heated by a radiator connected to an heating circulator bath, which is controlled by a Pt 100 resistance thermometer located near the Couette cell. To improve the homogeneity of the temperature in the box, a fan is placed behind the radiator. The temperature is set to  $34 \pm 0.1^\circ C$ .

Figure 4 shows a typical picture (inverted contrast) taken 14 mm above the bottom of the cup in a  $\phi = 40\%$  suspension.

[Figure 3 about here.]

[Figure 4 about here.]

## PIV procedure

The image processing is performed by the open source software DPIVsoft (<https://www.irphe.fr/meunier/>) developed under Matlab environment. PIV is a technique for measuring velocity fields in a plane. Each image is first divided into overlapping subsets named correlation windows. The cross correlation function of the corresponding windows from two successive images is computed (see Figure 5). The mean displacement in this window is given by the location of the maximum of the cross-correlation function. The same procedure performed on all windows gives the displacement field in the illuminated plane. The FFT-based correlation function algorithm is performed in two steps [22]. A first displacement field is computed, making it possible to compute the local 2D displacement gradient in the suspension. During the second run, the windows are first deformed according to the previously computed displacement gradient, before the definitive displacement field to be determined. The size B of the correlation window for the first run plays an important role in the issue of the velocity field calculation. It should fit two criteria : the number of particles in the window has to be larger than typically 4 and the larger particle displacement should be lower than B/3 [22]. The former is necessary to obtain a sufficiently peaked correlation function, while the latter avoids that too many particles exit the window. The first criterion gives the amount of dyed tracers. A quantity of 0.25% of dyed particles experimentally corresponds to around 5 particles in a B=64 pixels correlation window and allows measurement to be performed high enough above the bottom of the geometry. A larger amount of dyed tracers increases light absorption and degrades the velocity measurement accuracy. The length scale on our image is about 1000 pixels/cm. We can thus rewrite the second criterion evaluated at the inner cylinder surface in terms of rotation speed  $\Omega$  (in rpm) and frame rate f (in Hz):  $\frac{\Omega}{f} \lesssim 10^{-1} rpm.Hz^{-1}$ . As the faster rate of our camera is 10Hz, the rotor speed should be smaller than 1 rpm. Finally, we obtain a  $60 \times 60$  Cartesian velocity field, i.e. a spatial resolution around  $200 \mu m$ . The time resolution is given by the camera frame rate, at most 10Hz in our case.

[Figure 5 about here.]

## Local measurement

### Determination of the local shear rate

We calibrate our image plane by fitting two circles to the cylinders surfaces and then find the center of the geometry and the length scale factor from the known gap value. It is thus possible to deduce the velocity components in the cylindrical coordinate system  $(r, \theta)$ , that are then averaged over the azimuthal angle  $\theta$ . The mean radial velocity is always very close to zero, and the local shear rate is computed from the mean azimuthal velocity  $V_\theta(r, t)$  by :  $\dot{\gamma}(r) = r \frac{\partial V_\theta}{\partial r}$ . To avoid numerical fluctuations of the spatial derivative, a function is fitted to the experimental velocity profile  $V_\theta(r, t)$ :

$$V_{fit}(r) = V_{Newtonian} + f(r) = ar + \frac{b}{r} + \frac{c}{r^2} \quad (1)$$

where a,b and c are free parameters. The shear rate is deduced from the differentiation of the fitting function.

### Determination of the local shear stress

In the hypothesis of an infinitely high cylinder, it is possible to deduce the shear stress  $\sigma_{r\theta}(r, t)$  from the torque on the rotating cylinder  $\Gamma_{inf}(t)$  by

$$\sigma_{r\theta}(r, t) = \frac{\Gamma_{inf}(t)}{2\pi r^2 L} \quad (2)$$

where L is the height of the sheared fluid. This hypothesis does not hold since L is not very large compared to the gap width. A significant bottom end effect exists and has to be accounted for. To this purpose, we perform experiments on the suspending liquid alone. We measure the torque  $\Gamma_{total}$  and the rotor angular velocity  $\Omega$  for different values of the sheared liquid height. All results are displayed in Figure 6. It shows a linear behaviour for each height L of sheared Newtonian liquid in the gap. This linear behaviour can also be seen in Figure 7 where  $\frac{\Gamma_{total}}{\Omega}$  is plotted versus L. In this representation, all data collapse in a single linear curve. We deduce :

$$\frac{\Gamma_{total}}{\Omega} = a_1 L + a_2 \quad (3)$$

with  $a_1 = 0.397 \mu Nm.rpm^{-1}.mm^{-1}$  and  $a_2 = 4.44 \mu Nm.rpm^{-1}$ .  $\Gamma_{total}$  is the sum of two terms,  $\Gamma_{inf} = a_1 L \Omega$  which corresponds to the torque when  $L \rightarrow \infty$  and  $\Gamma_{bottom} = a_2 \Omega$  which can be interpreted as the bottom contribution to the



torque. In particular, we can deduce the viscosity from the value of  $a_1$ . Indeed, for a newtonian liquid sheared between two infinite cylinders, the relation between the torque on the inner rotating cylinder and its angular velocity reads:

$$\frac{\Gamma_{inf}}{\Omega L} = \frac{4\pi R_{in}^2 R_{out}^2}{R_{out}^2 - R_{in}^2} \eta \quad (4)$$

From the value of  $a_1$  together with equ. (4), the viscosity is measured to be  $\eta_0 = 1.02$  Pa.s.

Concerning the bottom end correction, we can write,

$$\frac{\Gamma_{bottom}}{\Gamma_{total}} = \frac{1}{1 + \frac{\Gamma_{inf}}{\Gamma_{bottom}}} = \frac{1}{1 + 8.96 \cdot 10^{-2} L(mm)} \quad (5)$$

In a typical experiment  $L=50$  mm, so  $\frac{\Gamma_{bottom}}{\Gamma_{total}} = 18.2\%$ , meaning that the bottom end influence should not be neglected in this geometry. In the following, this bottom contribution is subtracted from the total torque, in order the shear stress to be computed from equ.(2).

[Figure 6 about here.]

[Figure 7 about here.]

## Validation of the procedure

First we want to check the validity of the local PIV measurement for a Newtonian liquid, namely the host liquid of the suspension. It is seeded with some fluorescent PMMA particles ( $2a=31\mu m$ ) that amount to 0.25% of the total volume. Figure 8 shows the azimuthal velocity profile in the gap at different heights  $z$  above the bottom of the outer cylinder in the pure suspending liquid. The velocity is normalized by the inner cylinder velocity. The experimental data (symbols) are compared to finite element (f.e.m.) computations performed by Comsol Software (solid lines), and to the expected Newtonian flow profile between infinite cylinders (dashed line). This last (non-normalized) profile has the well known expression:

$$V_{inf} = \Omega \left( \frac{R_{in}^2 R_{out}^2}{R_{out}^2 - R_{in}^2} \frac{1}{r} - \frac{R_{in}^2}{R_{out}^2 - R_{in}^2} r \right) \quad (6)$$

and the corresponding shear rate is given by:

$$|\dot{\gamma}| = 2\Omega \frac{R_{in}^2 R_{out}^2}{R_{out}^2 - R_{in}^2} \frac{1}{r^2} \quad (7)$$

Experimental and numerical data are in very good agreement. As expected, the end effect is noticeable up to an height of  $z \simeq 10mm$ , which is the gap width. This is obviously the origin of the bottom end effect displayed in Figure 6 and 7. Above 10 mm, the relative discrepancy from a Newtonian profile calculated for infinite cylinders is less than 4%.

[Figure 8 about here.]

The normalized velocity profile measured at a height  $z=14mm$  above the bottom is plotted on Figure 9. The height of liquid in the gap is  $h=26.4mm$  (the sum of  $L=25.4$  mm and 1mm which is the distance between the bob and the cup). Also displayed is the fitting function, equ.(1), and the infinite cylinder theoretical profile, equ.(6). The shear rate profile from the velocity fit is shown on Figure 10 together with the expected profile from equ.(7). Again the agreement is very good. The viscosity profile calculated from one single shear rate profile  $\eta(r) = \frac{\sigma(r)}{\dot{\gamma}(r)}$ , that is displayed on Figure 11, is clearly characteristic of a Newtonian liquid. The dashed lines take into account the standard error calculated from 80 profiles. The overall mean viscosity value  $\eta_{micro} = 1.07 \pm 0.01 Pa.s$  is in good agreement with the value  $\eta_0 = 1.02 Pa.s$  that has been deduced from the macroscopic measurement shown in the previous section. Furthermore, both values are consistent with the measurement carried out with the Mars II equipped with a narrow-gap cylinder geometry Z20 DIN Ti,  $\eta_0 = 1.03 \pm 0.01 Pa.s$ .

[Figure 9 about here.]

[Figure 10 about here.]

[Figure 11 about here.]

## Viscous behaviour of a 47% concentrated suspension

Now that we have validated the experimental apparatus for pure liquid measurements, we test it in the field of concentrated suspensions. We mainly perform local measurements on a  $\phi = 47\%$  suspension. This volume fraction seems at first sight moderate. Actually, as it will appear below, the packing fraction  $\phi^*$  of our suspensions is around 0.53, and not 0.61-0.63 as usual, so that  $\phi \sim 0.9\phi^*$ .

First, we have measured the flow curve of the suspension in a narrow-gap Couette cell Z20 DIN Ti (inner radius 10 mm, outer radius 10.85 mm) in the range  $2 \cdot 10^{-2} s^{-1} < \dot{\gamma} < 2.5 s^{-1}$ . It fits well to a power law:

$$\sigma_{r\theta} = 40 \dot{\gamma}^{0.875} \quad (8)$$

This slight shear-thinning behaviour is classically observed in such non-brownian suspensions and the value of the exponent is consistent with that found by Gadala-Maria and Acrivos [23] or by Narumi et al .[24].

Concerning the local measurements, we have performed the same experiment as in the case of the pure suspending liquid to check the influence of the vertical position on the velocity profile. The results are shown in Figure 12. As in the previous section, the bottom influence on the velocity profiles is negligible above 10 mm. In the following, all local measurements are performed 14mm above the bottom.

The measurement of the suspension viscosity are performed just after the shear flow has begun without any pre-shear. Thus no or very weak migration is expected to have occurred. Nevertheless, since there is no real consensus about the characteristic time of the shear-induced migration, the assumption of a homogeneous suspension has to be checked. To this purpose, we have measured the time evolution of the instantaneous velocity at different locations in the gap. As it can be seen in Figure 13, after a transient decrease, the velocity stabilizes to a plateau value and does not change anymore at the time scale of our experiment. Such a transient has already been related in previous papers [23][25] and is supposed to be due to the formation of a shear-induced microstructure[23]. In particular, Gadala-Maria and Acrivos [23] showed that the steady viscosity is reached after a characteristic strain of about 1. This is consistent with our measurements: taking  $V_m = 1 cm.s^{-1}$  for the mean bob velocity during the transient, and  $\tau = 10s$  for the typical transient time, we deduce the characteristic strain  $\gamma = V_m \tau / (R_{out} - R_{in}) \sim 1$ . The velocity profiles that are presented in the following are the result of a time average over approximately 12s once the plateau has been reached. Thus no significant migration is expected to take place at the time scale of one experiment. It should be stressed that at longer times, a significant variation of the velocity is measured, which should be related to a change in the particle concentration profile. The velocity change is typically 1% per revolution of the bob. However, in the experiments reported in this paper, a suspension was never sheared for more than 4 revolutions before it was completely mixed again, so that it can be considered homogeneous.

We have measured the velocity profiles for the  $\phi = 47\%$  suspension for several values of the torque applied on the bob. The bob angular velocity was also recorded. Since the constitutive law of the suspension has been determined as a power law, we expect the normalized velocity profiles  $v_\theta/\Omega R_{in}$  obtained for different torques to collapse onto a single curve:

$$\frac{V_\theta}{\Omega R_{in}} = \frac{\left(\frac{R_{out}}{r}\right)^{\frac{m}{2-m}} - \frac{r}{R_{out}}}{\left(\frac{R_{out}}{R_{in}}\right)^{\frac{m}{2-m}} - \frac{R_{in}}{R_{out}}} \quad (9)$$

This is observed in Figure (14) where the normalized velocity profiles obtained for the torque values  $\Gamma = 100, 250, 500, 700 \mu\text{Nm}$  are displayed.

The experimental normalized velocity profile measured for a torque  $\Gamma = 500 \mu\text{Nm}$  is displayed on Figure (15) together with the expected profile from the law (8). For comparison, the Newtonian profile has also been plotted. The agreement is fairly good, except close to the inner and outer cylinders. The discrepancy observed near the outer cylinder originates in the fact that the PIV software can not measure displacements smaller than approximately 0.5 pixel, due to the middling quality of the images and to the small number of particles in a correlation window. In addition, near the inner cylinder, the first two velocity values are underestimated due to the overlapping of the correlation windows with the inner cylinder that lacks tracers. As a consequence, our PIV device does not allow for an accurate determination of the wall slip.

From the velocity profile, the viscosity profile is computed and compared to the expected profile from Eqs. (2), (5) and (8) on Figure 16. Since no significant migration has occurred during the experiment time, and since the viscosity variation across the gap is weak, the bottom end correction (5) which has been determined for a newtonian fluid should be still valid. The agreement is quite good again, especially if we keep in mind that macroscopic rheometric measurements suffer some uncertainty. Measuring the absolute viscosity of a liquid with a precision higher than a few percents is a hard task. The case of concentrated suspensions is even more tricky due to a possible wall slip at the interface between the suspension and the container. As shown on Figure 16, a minute change in the parameter  $k$  substantially reduces the 5 % gap between experimental and expected profiles. By the way, the PIV bulk measurement of the viscosity is not altered by the wall slip, except near the walls.

Finally, we measure the viscosity profile of the suspension for different values of the solid volume fraction. The mean shear rate was kept approximately constant whatever the volume fraction by adjusting the torque on the bob in

such a way that  $\Omega \sim 0.4\text{rpm}$ , resulting in  $\dot{\gamma} \sim 5.10^{-2}\text{s}^{-1}$ . Figure (17) displays the relative viscosity measured at the position  $r/R_{out} = 0.77$  as a function of the solid volume fraction. The experimental points are fitted to a Maron-Pierce law [26]:

$$\frac{\eta}{\eta_0} = \frac{1}{\left(1 - \frac{\Phi}{\Phi^*}\right)^2} \quad (10)$$

which gives the packing volume fraction  $\Phi^* = 0.534$ . This seems lower than the usual values measured for non-colloidal suspensions around 0.6. We conjecture some residual colloidal interactions between the particles. As a consequence, the volume fraction that we chose for most of the local measurements displayed in this paper, namely  $\Phi = 0.47$ , corresponds to a fairly concentrated suspension. We can note the exponent 2 in equ.(10) is well appropriate to our experimental data. However, more experimental points, in particular close to  $\phi^*$ , would be necessary to be more conclusive.

[Figure 12 about here.]

[Figure 13 about here.]

[Figure 14 about here.]

[Figure 15 about here.]

[Figure 16 about here.]

[Figure 17 about here.]

### Conclusion

We have presented an experimental protocol that allows for determining simultaneously the macroscopic and the local rheological properties of a concentrated suspension. A  $\phi=47\%$  suspension is sheared in a wide-gap Couette cell ( $R_{in} = 14\text{mm}$  and  $R_{out} = 24\text{mm}$ ) mounted on controlled shear stress rheometer. The average viscosity of the suspension is determined from the variation of the rotor spin rate with the applied torque while the local viscosity is deduced from the PIV measurement of the velocity profile in the flowing suspension together with the torque data. The PIV measurement in such a concentrated suspension has been made possible by a close index-matching of the particles and host liquid, that allows to record satisfactory images 1.5 cm deep in the suspension.

First we have checked the validity of the experimental procedure with a Newtonian simple liquid. The influence of the bottom end on both the velocity profiles and the macroscopic measurements has been carefully studied. Upon varying the liquid height, the torque correction that is to be introduced to account for the bottom friction has been determined. The bottom end effect on the velocity profiles has been analysed upon measuring the flow profiles at different positions above the cup bottom. We noted that above roughly 10 mm, i.e. the gap thickness, the velocity profiles only slightly depend on the vertical position. The local viscosity can be deduced from the velocity profiles measured at heights larger than 10 mm together with the torque data, corrected for the bottom end effect. Its value agrees within 4% with the macroscopic viscosity. The spatial and time resolution for the determination of the velocity profiles have been evaluated to respectively 200  $\mu\text{m}$  and 100 ms, and the statistical precision of the viscosity measurement, about 1%.

Once the procedure had been checked with a Newtonian liquid, local measurements on concentrated suspensions have been performed. We have been able to measure viscosity profiles over the 1cm gap with a 4 % statistical resolution. These local measurements are in good agreement with the macroscopic measurements. In particular, the shear-thinning behaviour of the suspension evidenced by the macroscopic flow curve has been observed and the expected 10% variation of the viscosity over the gap has been measured.

The experimental facility that we have presented here allows to measure the variation of the viscosity with the particle concentration. Since the divergence law of the viscosity near the packing volume fraction is still an open problem, we plan to perform some more measurements in this concentration range.

Finally, one difficult but interesting and open problem that arises in such measurements of suspension properties in a wide-gap Couette cell is the shear-induced migration (for a recent review, see [27]). Thanks to the good time resolution of our apparatus, we have been able to check that the migration was sufficiently slow in our case to induce only weak variations of the velocity profiles at the time scale of one experiment. However, we clearly understand that the main drawback of our experimental device is the lack of a quantitative concentration profile measurement, that will be necessary in order to deal with the open question of the shear-induced migration models [28][29][30][31][32]. At this time, we were not able to measure concentration profiles due to the large uncertainties linked with the small concentration of tracers, but some experiments are in progress, with particles larger than the laser sheet thickness, where we try to slightly tag the host liquid in place of some tracer particles.

### Acknowledgments

This work was supported by the Agence Nationale pour la Recherche (Program ANR-08-BLAN-0048-CSD 2). We are grateful to Laurent Lobry for his help with f.e.m. computations and Laurence Bergognoux for helpful discussions concerning PIV.

### References

- [1] Manneville S, Bécu L, Colin A: High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids, *Eur. Phys. J. App. Phys.* 28(3) (2004) 361–373.
- [2] Muller S: Velocity measurements in complex flows of non-newtonian fluids, *Korea-Aust. Rheo. J.* 14 (2002) 93–105.
- [3] Jana S, Kapoor B, Acrivos A: Apparent wall slip velocity coefficients in concentrated suspensions of noncolloidal particles, *J. Rheol.* 39 (1995) 1123.
- [4] Shapley N, Armstrong R, Brown R: Laser doppler velocimetry measurements of particle velocity fluctuations in a concentrated suspension, *J. Rheol.* 46 (2002) 241.
- [5] Abbott J, Tetlow N, Graham A, Altobelli S, Fukushima E, Mondy L, Stephens T: Experimental observations of particle migration in concentrated suspensions: Couette flow, *J. Rheol.* 35 (1991) 773.
- [6] Raynaud J, Moucheron P, Baudez J, Bertrand F, Guilbaud J, Coussot P: Direct determination by nuclear magnetic resonance of the thixotropic and yielding behavior of suspensions, *J. Rheol.* 46 (2002) 709.
- [7] Ovarlez G, Bertrand F, Rodts S: Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging, *J. Rheol.* 50 (2006) 259.
- [8] Breedveld V, van den Ende D, Bosscher M, Jongschaap R, Mellema J: Measurement of the full shear-induced self-diffusion tensor of noncolloidal suspensions, *J. Chem. Phys.* 116 (2002) 10529.
- [9] Nicolai H, Herzhaft B, Hinch E, Oger L, Guazzelli E: Particle velocity fluctuations and hydrodynamic self-diffusion of sedimenting non-brownian spheres, *Phys. Fluids* 7 (1995) 12.

- [10] Adrian R: Twenty years of particle image velocimetry, *Exp. Fluids* 39(2) (2005) 159–169.
- [11] Lenoble M, Snabre P, Pouligny B: The flow of a very concentrated slurry in a parallel-plate device: Influence of gravity, *Phys. Fluids* 17 (2005) 073303.
- [12] Wiederseiner S, Ancey C, Rentschler M, Andreini N: Rheophysics of highly concentrated coarse-particle suspensions in a wide-gap couette rheometer, *AIP Conference Proceedings* 1145 (2009) 1063.
- [13] Zachos A, Kaiser M, Merzkirch W: Piv measurements in multiphase flow with nominally high concentration of the solid phase, *Exp. Fluids* 20(3) (1996) 229–231.
- [14] Huang N, Ovarlez G, Bertrand F, Rodts S, Coussot P, Bonn D: Flow of wet granular materials, *Phys. Rev. Lett.* 94(2) (2005) 4.
- [15] Wiederseiner S, Andreini N, Epely-Chauvin G, Ancey C: Refractive-index and density matching in concentrated particle suspensions: a review. To be published in *Exp. Fluids*.
- [16] Hassan Y, Dominguez-Ontiveros E: Flow visualization in a pebble bed reactor experiment using piv and refractive index matching techniques, *Nucl. Eng. and Des.* 238(11) (2008) 3080–3085.
- [17] Lenoble M: Écoulement et ségrégation dans des pâtes granulaires modèle, Ph.D. thesis, Université Bordeaux I (2005).
- [18] Wiederseiner S: Rheophysics of Concentrated Particle Suspensions in a Couette Cell using a Refractive Index Matching Technique, Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (2010).
- [19] Christiansen C: Untersuchungen über die optischen eigenschaften von fein vertheilten körpern, *Ann. Phys.* 439 (1885) 298.
- [20] Christiansen C: Untersuchungen über die optischen eigenschaften von fein vertheilten körpern, *Ann. Phys.* 259 (1884) 298.
- [21] Leighton D, Acrivos A: The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions, *J. Fluid Mech.* 181 (2006) 415–439.
- [22] Meunier P, Leweke T: Analysis and treatment of errors due to high velocity gradients in particle image velocimetry, *Exp. Fluids* 35(5) (2003) 408–421.



- [23] Gadala-Maria F, Acrivos A: Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres, *J. Rheol.* 24 (1980) 799.
- [24] Narumi T, See H, Suzuki A, Hasegawa T: Response of concentrated suspensions under large amplitude oscillatory shear flow, *J. Rheol.* 49 (2005) 71.
- [25] Narumi T, See H, Honma Y, Hasegawa T, Takahashi T, Phan-Thien N: Transient response of concentrated suspensions after shear reversal, *J. Rheol.* 46 (2002) 295.
- [26] Maron S, Pierce P: Application of ree-eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles, *J. Coll. Sci.* 11 (1956) 80–95.
- [27] Morris J F: A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow, *Rheol. Acta* 48(8) (2009) 909–923.
- [28] Phillips R, Armstrong R, Brown R, Graham A: A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration, *Phys. Fluids A* .
- [29] Nott P, Brady J: Pressure-driven flow of suspensions: simulation and theory, *J. Fluid Mech.* 275 (1994) 157–199.
- [30] Mills P, Snabre P: Rheology and structure of concentrated suspensions of hard spheres. shear induced particle migration, *J. Phys. II* 5(10) (1995) 1597–1608.
- [31] Buyevich Y: Particle distribution in suspension shear flow, *Chem. Eng. Sci.* 51(4) (1996) 635–647.
- [32] Morris J, Boulay F: Curvilinear flows of noncolloidal suspensions: The role of normal stresses, *J. Rheology* 43 (1999) 1213.

## List of Figures

1	Spectrophotometer measurement of the transmittance of a $\Phi = 50\%$ suspension of $31 \mu\text{m}$ PMMA particles in Cargille mineral oil versus temperature. The particle liquid index matching is thus found to be optimal for a temperature $T = 34^\circ\text{C}$ and $\lambda = 635\text{nm}$ .	18
2	Schematic drawing of the Couette geometry that is used for the PIV measurements. Both cylinders are made of plexiglas. Their surfaces in contact with the suspension have been roughened to minimize wall slip when the suspension is sheared. . . . .	19
3	PIV set-up: A laser sheet (Lasiris TEC Laser, Stockeryale, $635 \text{ nm}$ , $35\text{mW}$ ), roughly $100\mu\text{m}$ thick, illuminates an horizontal plane of the transparent suspension located in the wide-gap Couette cell. A camera (PLB 741 U, Pixelink, $1280 \times 1024 \text{ pix}^2$ ) situated under the bottom of the cup records successive images of the fluorescent tagged particles. The laser sheet and the camera are both fixed on an arc which can be vertically translated. . . . .	20
4	Typical image (inverted contrast) obtained $14 \text{ mm}$ from the bottom of the geometry in a $40\%$ suspension - Rotor and stator are fitted with two circles - Square: correlation window . . . . .	21
5	Typical cross-correlation function obtained from our images . . . . .	22
6	Measured torque vs rotor angular velocity for different heights of the Newtonian liquid . . . . .	23
7	The ratio of the applied torque (in $\mu\text{Nm}$ ) to the measured bob spin rate (in rpm) is plotted versus the sheared liquid height, $L$ , in the Couette cell gap (in mm). The extrapolation of the curve for $h=0$ gives the bottom correction that is to be taken into account for the determination of the shear stress in the gap. . . . .	24
8	Dimensionless azimuthal velocity profile in the Newtonian liquid. Each profile is the result of an average over 80 instantaneous profiles ( $\sim 10\text{s}$ ). The different profiles are determined at different heights from the bottom of the cup-Symbols: experimental data -Solid lines: f.e.m. numerical data- Dashed line: infinite cylinder.	25
9	Velocity profile in the Newtonian liquid-Height of liquid: $h=26.4\text{mm}$ -Laser position: $z=14\text{mm}$ above the bottom. Also represented: fitting function and infinite cylinder profile . . . . .	26
10	Shear rate profile in the Newtonian liquid-Height of liquid: $h=26.4\text{mm}$ -Laser position: $z=14\text{mm}$ above the bottom. Also represented: infinite cylinder profile . . . . .	27
11	Viscosity profile in the Newtonian liquid-The dashed lines represent the standard error over 80 profiles that is about $1\%$ . . . . .	28
12	Dimensionless azimuthal velocity profile in a $47\%$ concentrated suspension- The different profiles are determined at different heights from the bottom of the cup. Each profile is the result of an average over 100 instantaneous profiles. Height of the suspension: $h=20.1\text{mm}$ . . . . .	29
13	Time evolution of the velocity at various locations in the gap for a $47\%$ concentrated suspension. Height of the suspension: $h=45\text{mm}$ . The imposed torque on the inner cylinder is $500\mu\text{Nm}$ and the plateau angular velocity of the bob is $4.4 \cdot 10^{-2}\text{rad.s}^{-1}$ . . . . .	30

14	Velocity profiles for different values of the torque for a 47% concentrated suspension. Each profile is the result of an average over 100 instantaneous profiles. Height of the suspension: h=45mm.	31
15	Normalized time averaged azimuthal velocity profile in a 47% concentrated suspension- h=45mm. Dashed line: velocity profile expected for a Newtonian liquid sheared between infinite cylinders. Solid Line: velocity profile deduced from the power law $\sigma_{r\theta} = 40 \dot{\gamma}^{0.875}$	32
16	Viscosity profile in a 47% concentrated suspension- Laser position above the bottom of the cup: z=14mm. Height of the suspension h=45mm - The dashed lines represent the standard error over 100 profiles that is at most 4% - $\sigma_{r\theta} = 40\dot{\gamma}^{0.875}$ is the fitting curve to the macroscopic flow curve.	33
17	Variation of the relative viscosity deduced from PIV measurements with the particle volume fraction. The measurement has been performed at $r=0.77R_{out}$ and the applied torque has been controlled for the bob angular velocity to be approximately 0.4rpm- Laser position above the bottom of the cup: z=14mm. Height of the suspension h=45mm	34

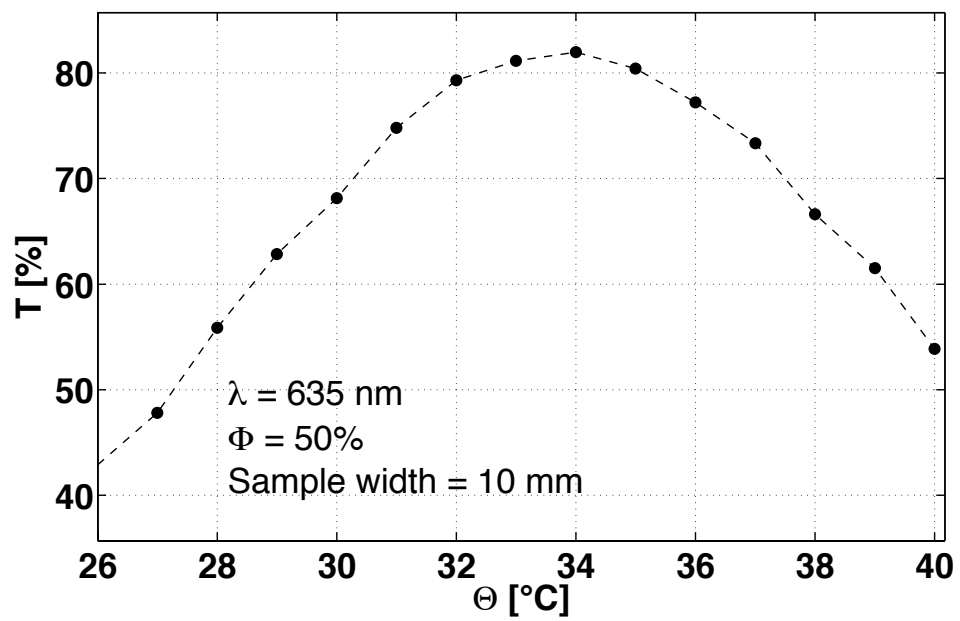


Figure 1: Spectrophotometer measurement of the transmittance of a  $\Phi = 50\%$  suspension of  $31 \mu\text{m}$  PMMA particles in Cargille mineral oil versus temperature. The particle liquid index matching is thus found to be optimal for a temperature  $T = 34^\circ\text{C}$  and  $\lambda = 635\text{nm}$

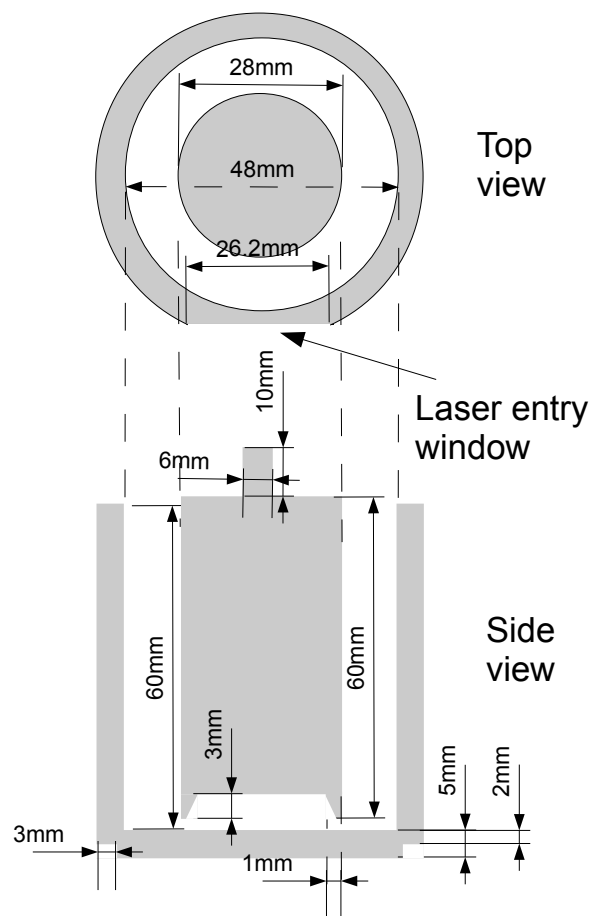
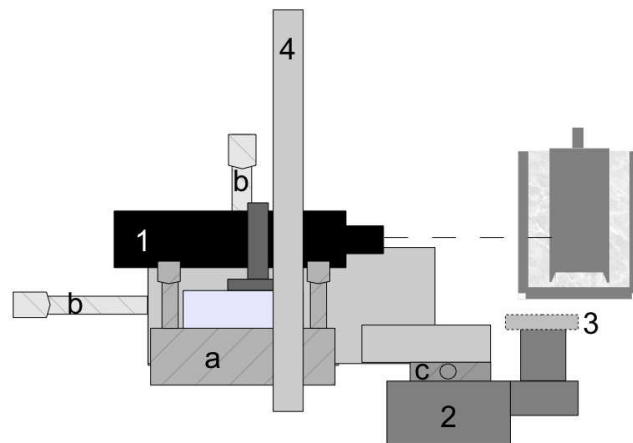


Figure 2: Schematic drawing of the Couette geometry that is used for the PIV measurements. Both cylinders are made of plexiglas. Their surfaces in contact with the suspension have been roughened to minimize wall slip when the suspension is sheared.



- |  |   |
|--|---|
| <b>1</b> – Laser Sheet                 | <b>a</b> – Tilt and rotation platform controlling laser horizontality |
| <b>2</b> – Camera                      | <b>b &amp; c</b> – Linear stage controlling camera position           |
| <b>3</b> – High pass filter            |   |
| <b>4</b> – vertically translatable arc |   |

Figure 3: PIV set-up: A laser sheet (Lasiris TEC Laser, Stockeryale, 635 nm, 35mW), roughly  $100\mu\text{m}$  thick, illuminates an horizontal plane of the transparent suspension located in the wide-gap Couette cell. A camera (PLB 741 U, Pixelink,  $1280 \times 1024 \text{ pix}^2$ ) situated under the bottom of the cup records successive images of the fluorescent tagged particles. The laser sheet and the camera are both fixed on an arc which can be vertically translated.

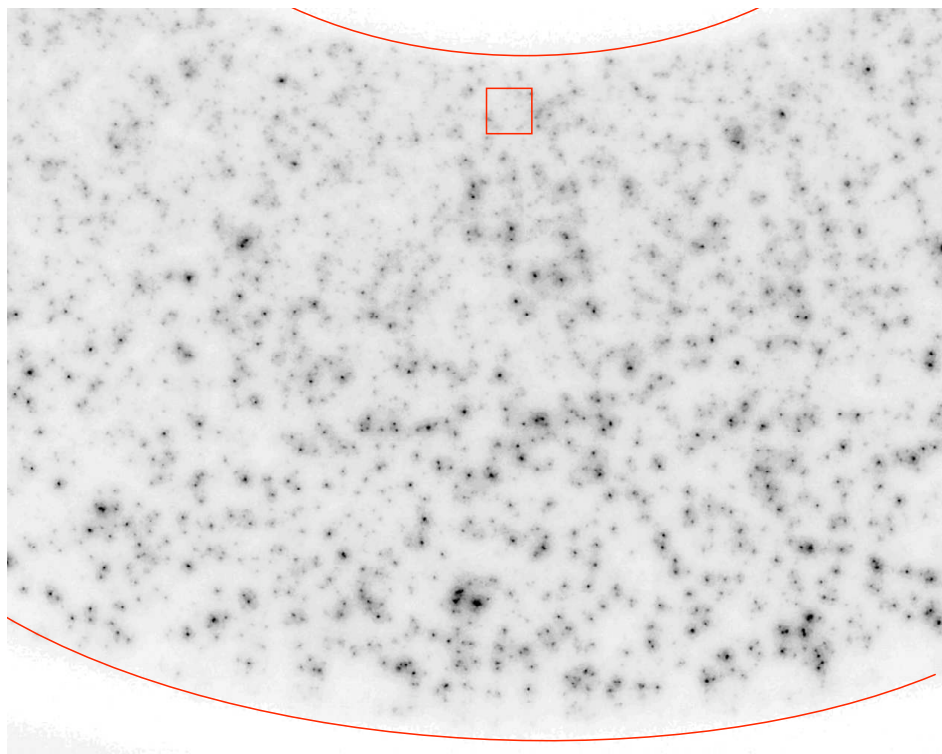


Figure 4: Typical image (inverted contrast) obtained 14 mm from the bottom of the geometry in a 40% suspension - Rotor and stator are fitted with two circles - Square: correlation window

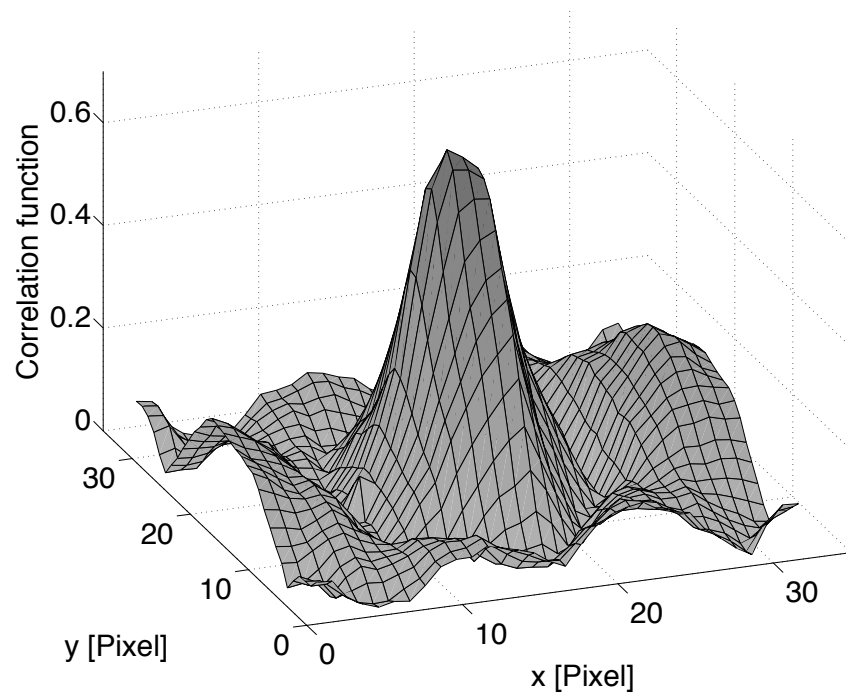


Figure 5: Typical cross-correlation function obtained from our images



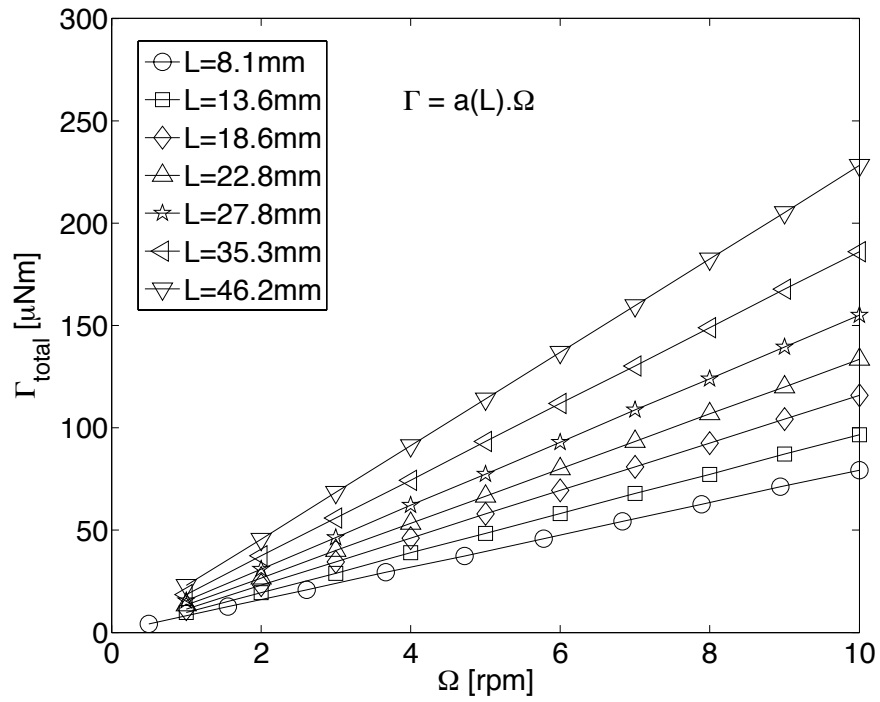


Figure 6: Measured torque vs rotor angular velocity for different heights of the Newtonian liquid

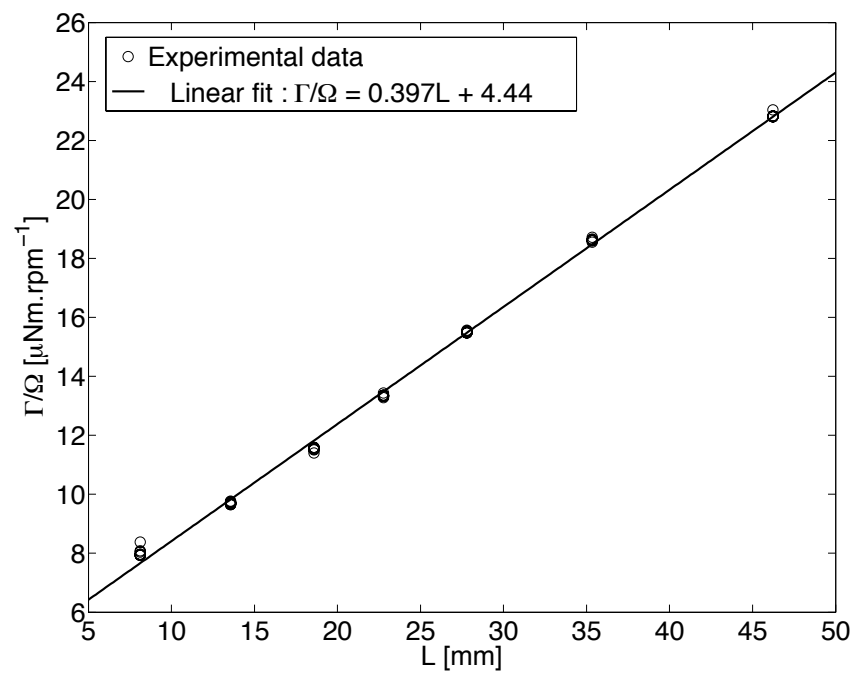


Figure 7: The ratio of the applied torque (in  $\mu\text{Nm}$ ) to the measured bob spin rate (in rpm) is plotted versus the sheared liquid height,  $L$ , in the Couette cell gap (in mm). The extrapolation of the curve for  $h=0$  gives the bottom correction that is to be taken into account for the determination of the shear stress in the gap.

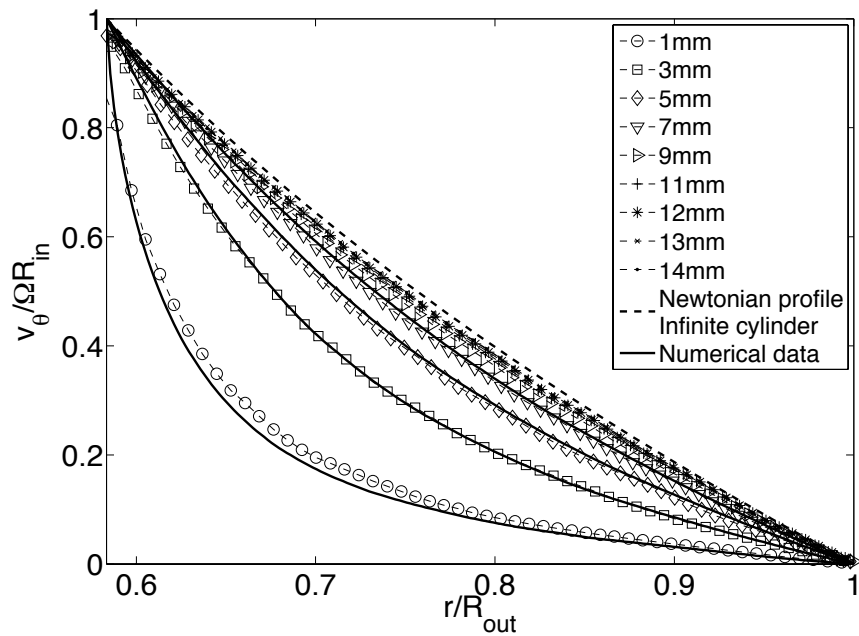


Figure 8: Dimensionless azimuthal velocity profile in the Newtonian liquid. Each profile is the result of an average over 80 instantaneous profiles ( $\sim 10$ s). The different profiles are determined at different heights from the bottom of the cup-Symbols: experimental data -Solid lines: f.e.m. numerical data- Dashed line: infinite cylinder.

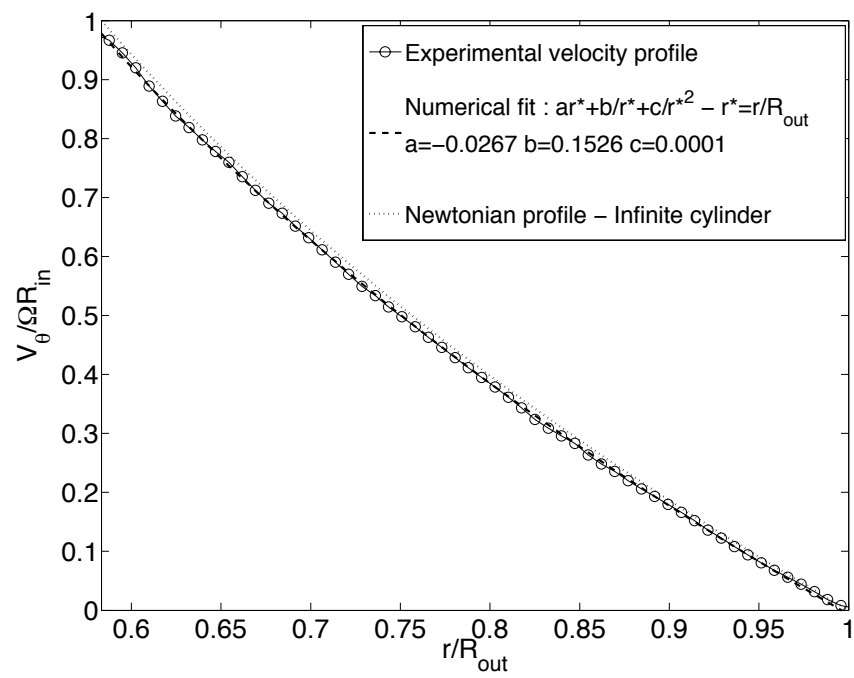


Figure 9: Velocity profile in the Newtonian liquid-Height of liquid:  $h=26.4\text{mm}$ -Laser position:  $z=14\text{mm}$  above the bottom. Also represented: fitting function and infinite cylinder profile

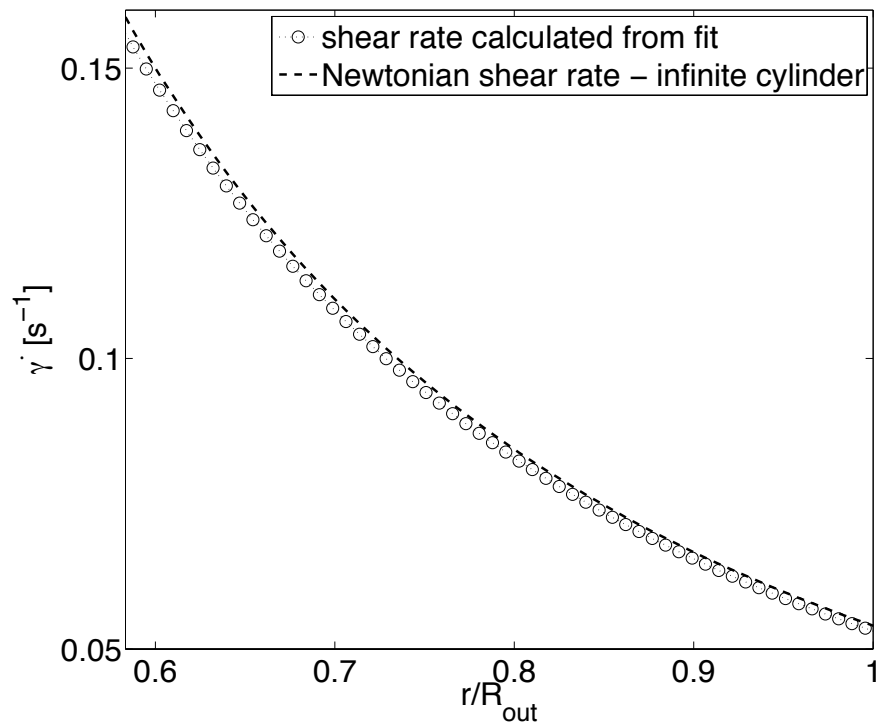


Figure 10: Shear rate profile in the Newtonian liquid-Height of liquid:  $h=26.4\text{mm}$ -Laser position:  $z=14\text{mm}$  above the bottom. Also represented: infinite cylinder profile

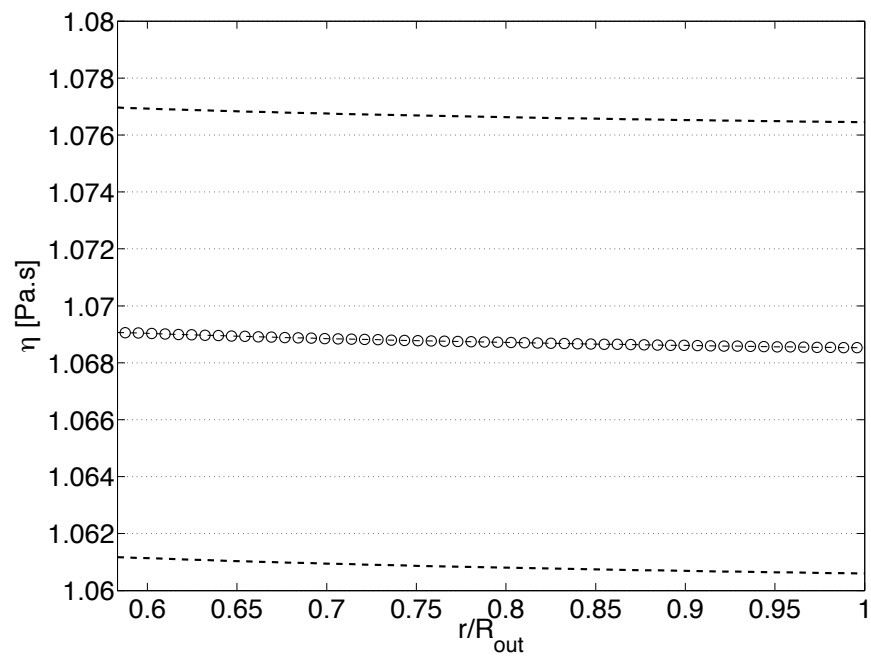


Figure 11: Viscosity profile in the Newtonian liquid-The dashed lines represent the standard error over 80 profiles that is about 1%

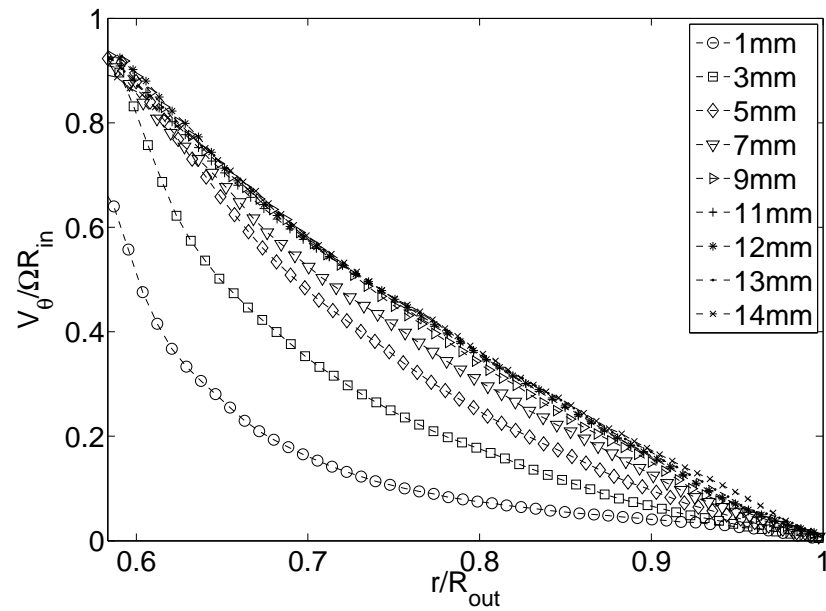


Figure 12: Dimensionless azimuthal velocity profile in a 47% concentrated suspension- The different profiles are determined at different heights from the bottom of the cup. Each profile is the result of an average over 100 instantaneous profiles. Height of the suspension:  $h=20.1\text{mm}$ .

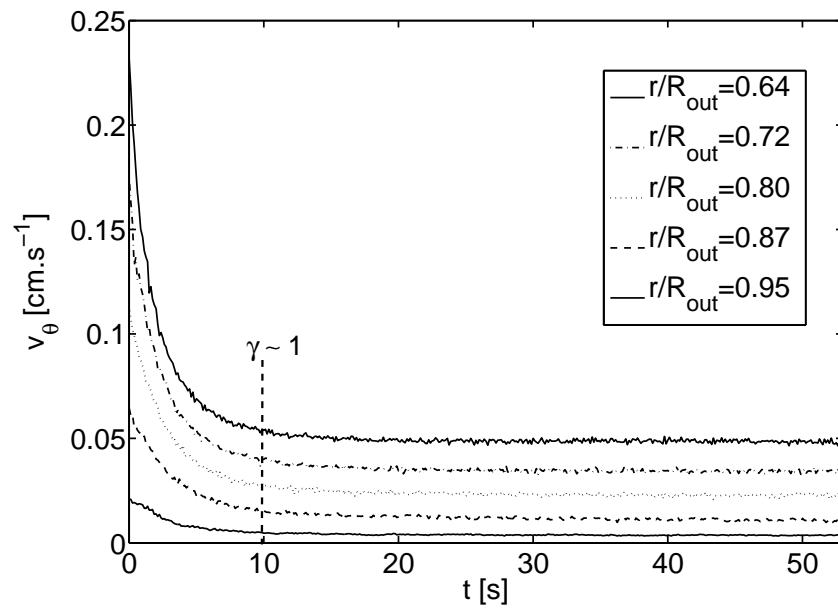


Figure 13: Time evolution of the velocity at various locations in the gap for a 47% concentrated suspension. Height of the suspension:  $h=45\text{mm}$ . The imposed torque on the inner cylinder is  $500\mu\text{Nm}$  and the plateau angular velocity of the bob is  $4.4 \cdot 10^{-2}\text{rad}\cdot\text{s}^{-1}$



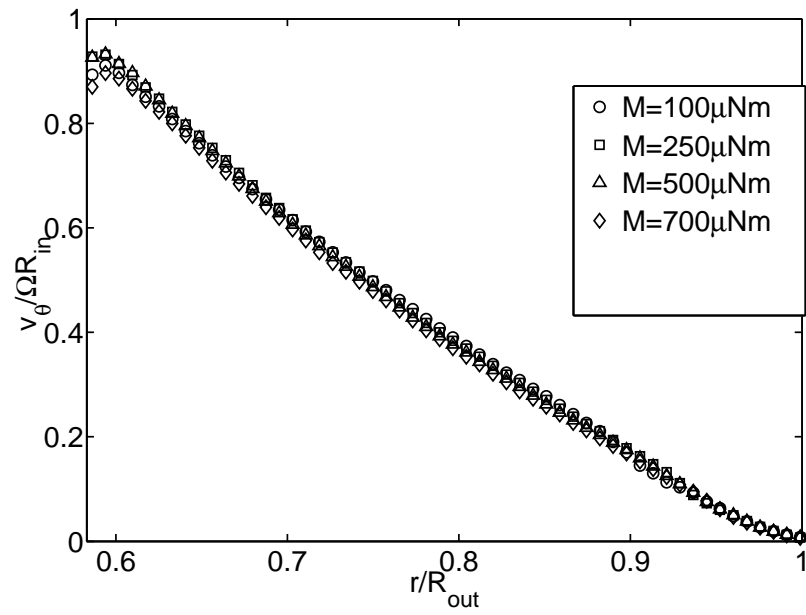


Figure 14: Velocity profiles for different values of the torque for a 47% concentrated suspension. Each profile is the result of an average over 100 instantaneous profiles. Height of the suspension:  $h=45\text{mm}$ .

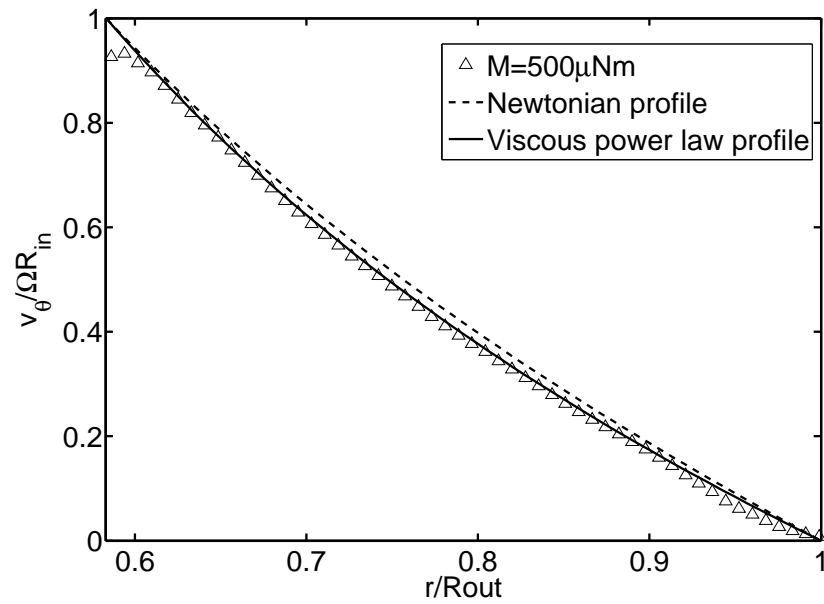


Figure 15: Normalized time averaged azimuthal velocity profile in a 47% concentrated suspension-  $h=45\text{mm}$ . Dashed line: velocity profile expected for a Newtonian liquid sheared between infinite cylinders. Solid Line: velocity profile deduced from the power law  $\sigma_{r\theta} = 40 \dot{\gamma}^{0.875}$

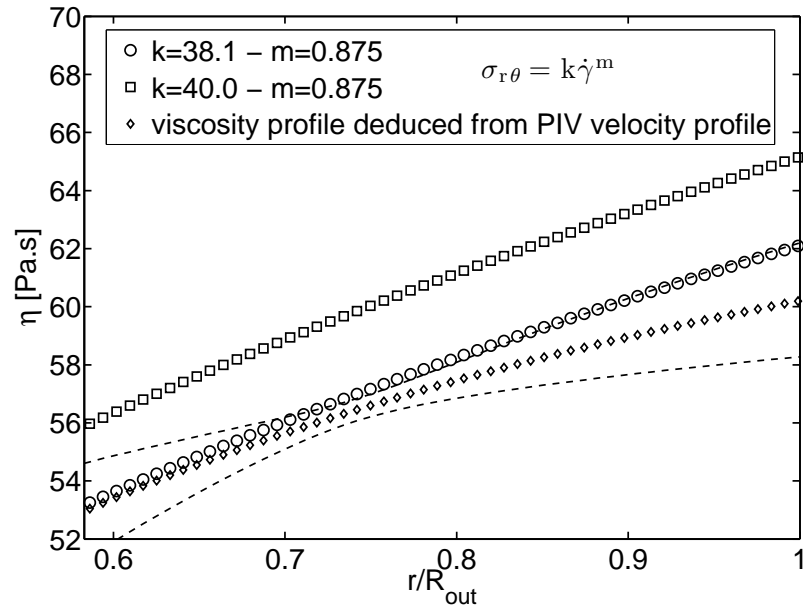


Figure 16: Viscosity profile in a 47% concentrated suspension- Laser position above the bottom of the cup:  $z=14\text{mm}$ . Height of the suspension  $h=45\text{mm}$  - The dashed lines represent the standard error over 100 profiles that is at most 4% -  $\sigma_{r\theta} = 40\dot{\gamma}^{0.875}$  is the fitting curve to the macroscopic flow curve.

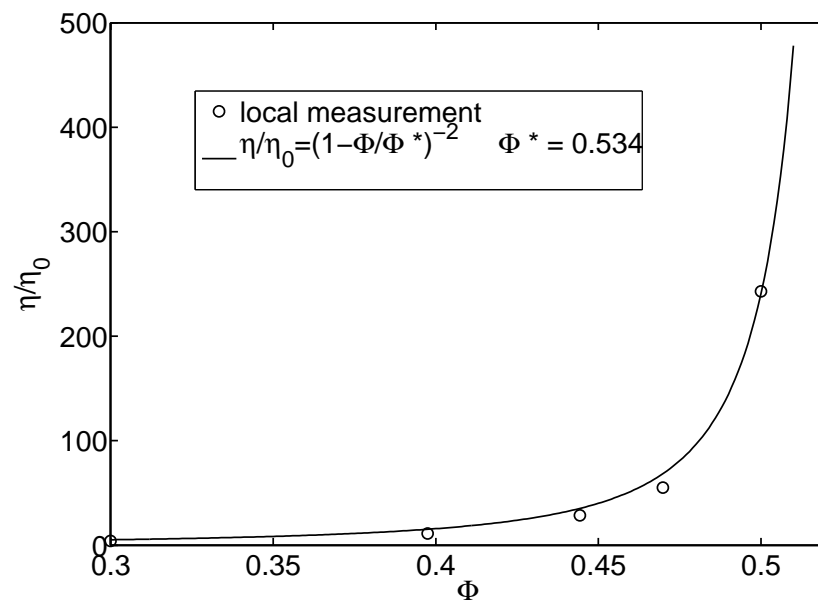


Figure 17: Variation of the relative viscosity deduced from PIV measurements with the particle volume fraction. The measurement has been performed at  $r=0.77R_{out}$  and the applied torque has been controlled for the bob angular velocity to be approximately 0.4rpm- Laser position above the bottom of the cup:  $z=14\text{mm}$ . Height of the suspension  $h=45\text{mm}$



# Local transient rheological behavior of concentrated suspensions

---

## Local transient rheological behavior of concentrated suspensions

F. Blanc, F. Peters and E. Lemaire  
CNRS - Université de Nice  
LPMC - UMR 6622  
Parc Valrose 06108 Nice cedex 2 – France

**Synopsis**

This paper reports experiments on the shear transient response of concentrated non-Brownian suspensions. The shear viscosity of the suspensions is measured using a wide-gap Couette rheometer equipped with a Particle Image Velocimetry (PIV) device that allows measuring the velocity field. The suspensions made of PMMA particles (31 $\mu$ m in diameter) suspended in a Newtonian index- and density-matched liquid are transparent enough to allow an accurate measurement of the local velocity for particle concentrations as high as 50%. In the wide-gap Couette cell, the shear induced particle migration is evidenced by the measurement of the time evolution of the flow profile. A peculiar radial zone in the gap is identified where the viscosity remains constant. At this special location, the local particle volume fraction is taken to be the mean particle concentration. The local shear transient response of the suspensions when the shear flow is reversed is measured at this point where the particle volume fraction is well defined. The local rheological measurements presented here confirm the macroscopic measurements of Gadala-Maria and Acrivos (1980). After shear reversal, the viscosity undergoes a step-like reduction, decreases slower and passes through a minimum before increasing again to reach a plateau. Upon varying the particle concentration, we have been able to show that the minimum and the plateau viscosities do not obey the same scaling law with respect to the particle volume fraction. These experimental results are consistent with the scaling predicted by Mills and Snabre (2009) and with the results of numerical simulation performed on random suspensions [Sierou and Brady (2001)]. The minimum seems to be

associated with the viscosity of an isotropic suspension, or at least of a suspension whose particles do not interact through non-hydrodynamic forces, while the plateau value would correspond to the viscosity of a suspension structured by the shear where the non-hydrodynamic forces play a crucial role.

## **I. INTRODUCTION**

Concentrated suspensions are very common in several engineering fields such as civil engineering, food or pharmaceutical industry or geophysical situations such as debris flows, sediment transport, and submarine avalanches. In order to understand their flowing behavior, it is desirable to know their response to imposed forces and motions at their boundary. A broad variety of complex rheological behaviors such as shear thinning or shear thickening, yield stress, normal stress differences or shear banding are exhibited. This diversity issues from the diversity of the interactions (Brownian, Van der Waals, steric, electrostatic...) and of the particles properties (size, shape, polydispersity...) that are possibly involved in the flow behavior. Nevertheless even a suspension whose physicochemical characteristics are very simple (non-Brownian spherical particles, negligible colloidal interactions, Newtonian suspending liquid) can exhibit a complex rheological behavior. For instance, non-Brownian concentrated suspensions are usually shear thinning [Stickel and Powell (2005)] and, if the particle and fluid density are not carefully matched, a yield stress has been shown to develop [Fall et al. (2009)]. The transient response of such suspensions is also of interest as reported by Gadala-Maria and Acrivos (1980), Kolli et al. (2002) and Narumi et al. (2002). As emphasized by Stickel and Powell (2005) and Morris (2009) in their review articles on the rheology of dense suspensions, such a complexity of the rheological behavior is most likely due to the formation of a microstructure induced by the shear flow together with the non-



hydrodynamic forces and the key problem is to understand the relationship between the macroscopic or bulk properties of the medium and its microscopic structure.

The first direct experimental evidence of the shear-induced anisotropic microstructure has been provided by Parsi and Gadala-Maria (1987) who measured the pair distribution function for a suspension whose particle volume fraction was 0.4. They note a maximum of the pair distribution function in a direction which is roughly that of the compression axis. Furthermore, they show that when the direction of the shear is reversed, the particles rearrange into the mirror image of the structure. This direct observation of the microstructure confirms the hypothesis advanced by Gadala-Maria and Acrivos (1980), a few years before, to explain the transient shear stress response of a suspension when it undergoes a shear reversal. The suspension viscosity was shown to depend only on the strain after the shear reversal. In 2002, these results were supplemented by the measurement of the transient normal stresses [Kolli et al. (2002), Narumi et al. (2002)] which present the same kind of behavior, i.e. a collapse of the recovery normal stresses if plotted against the strain, whatever the shear rate step magnitude.

The characterization of the microstructure has also motivated a lot of numerical studies based on various numerical techniques such as Stokesian Dynamics [Singh and Nott (2000), Sierou and Brady (2002), Drazer et al. (2004), Bricker and Butler (2007)] or Force Coupling Method [Yeo and Maxey (2010), Abbas et al. (2007)] which all conclude to the formation of an anisotropic shear-induced microstructure.

Achieving accurate rheological measurements with a non colloidal suspension is quite challenging because perturbative effects such as wall slip [Jana et al. (1995)], shear localization [Huang et al. (2005)] or particle migration [Leighton and Acrivos (1987), Chow et al. (1994)] can arise during the experiment. The local rheological measurements have been shown to be very powerful to measure the true rheological response of a dense suspension.

---

For instance, in 2002 Shapley et al. use Laser Doppler Velocimetry to measure particle velocity fluctuations and velocity profiles in concentrated suspensions sheared in a narrow-gap Couette cell. Another powerful technique to visualize both the velocity and the concentration profiles in suspensions is the Magnetic Resonance Imaging. In 2006, Ovarlez and his collaborators used such MRI techniques to perform local measurements on very concentrated suspensions sheared in a wide-gap Couette viscosimeter. They have been able to measure both the velocity and the particle concentration profiles in the suspension sheared between two concentric cylinders. They have obtained very impressive results on the stationary behavior of suspensions with particle concentration as high as 60%. One of their main results is that contrarily to what is observed with macroscopic rheological measurements, i.e. a pseudo yield stress, suspensions have a purely viscous behavior. Furthermore, they measured the particle concentration profiles and showed that for such high concentrated suspensions, the migration is almost instantaneous. It should be stressed that all their measurements have been performed after a period of pre-shear.

On the opposite, the present paper is focused on the transient shear rate response of rather concentrated suspensions ( $0.3 < \phi < 0.5$ ) of non-Brownian spheres (diameter  $31\mu\text{m}$ ) when a shear stress is suddenly applied or reversed. Suspensions of various concentrations are sheared between two concentric cylinders so that the shear stress field is controlled in the gap. The suspensions are designed to be almost transparent allowing to determine the velocity field in the gap using PIV measurements. The local transient response of the suspension is then deduced from the local shear stress and shear rate. The main characteristics of the suspensions are presented in section II. The third section is devoted to the description of the experimental procedure. The results are displayed in section IV where two transient regimes with two different characteristic times are studied. The long time variation of the velocity profile coming from the shear induced particle migration is presented in Sec. IV.A while the rapid

changes happening after the shear reversal are described in Sec. IV.B. All these results are discussed in Section V.

## II. SUSPENSION CHARACTERISTICS

The suspension is made of monodisperse spherical PMMA particles (Microbeads CA30), 31 $\mu\text{m}$  in diameter, dispersed in a Newtonian fluid that has been specially designed for our application (Cargille Laboratories, Immersion Liquid Code 11295101160). The fluid has both the same density ( $d=1.18$ ) and the same refractive index ( $n=1.49$ ) as the PMMA particles in order to perform the PIV measurements detailed below. To improve the index matching, the temperature is controlled and the best matching is obtained for  $T=34^\circ\text{C}$ . At this temperature, the suspending fluid has been found to be fully Newtonian and its viscosity has been measured to be  $\eta_0=1.02$  Pa.s. [Blanc et al. (2011)]. The particle volume fraction varies from 0.3 to 0.5. The shear viscosity measurements have been performed for shear rates,  $\dot{\gamma}$ , between  $10^{-2}$  and  $1$   $\text{s}^{-1}$ . Therefore, given the above characteristics of the suspension, the Peclet number that measures the ratio of convection to thermal diffusion is very large:

$$\text{Pe} = \frac{6\pi\eta_0 a^3 \dot{\gamma}}{kT} \sim 10^5 - 10^7$$

and the Reynolds number based on the particle size is very small:

$$\text{Re}_p = \frac{\rho \dot{\gamma} a^2}{\eta_0} \sim 10^{-9} - 10^{-7}$$

where  $\rho$  is the density of the suspending fluid and  $a$ , the radius of the suspended particles. Thus, our measurements were carried out in the creeping flow regime with negligible Brownian motion.

The viscosity of the suspensions has been studied either in a narrow- or in a wide-gap Couette geometry mounted on a rheometer Mars II (Haake, Thermofisher). The possible variation of the viscosity of the suspension with the shear rate was first studied in a narrow-

---

gap Couette cell (inner radius, 10 mm, outer radius, 10.85 mm). After the suspension had been poured in the cup and degassed, the shear stress was increased step by step. At each step, the steady value of the shear rate was recorded and the value of the viscosity deduced. The measurements have then been performed upon increasing or decreasing the stress, and gave the same results, suggesting that no migration had occurred. Figure 1 shows the flow curve obtained for a  $\phi=0.47$  suspension. The data are well fitted by a power law:  $\sigma = 40\dot{\gamma}^{0.88}$  where  $\sigma$  and  $\dot{\gamma}$  are measured in Pa and  $s^{-1}$ , respectively. Such a slight shear thinning behavior is often observed in concentrated non-Brownian suspensions [Gadala-Maria and Acrivos (1980), Zarraga et al. (2000)]. Acrivos and coworkers [Acrivos et al. (1994)] have shown that such a shear thinning could occur when the host liquid and the particles do not have the same density, due to the viscous resuspension of the particles. Nevertheless we never noticed any evidence for sedimentation in our experiments and the origin of the low shear thinning observed in our experiments remains unclear.

As it is well known [Jana et al. (1995)] and shown again in Appendix B, the viscosity measurements are difficult to perform in narrow-gap Couette cell because of the wall slip that significantly changes the value of the apparent viscosity. For that reason and since the observed shear thinning is rather weak (when the shear stress is multiplied by two, the viscosity decreases by only 9%), we decided to perform the further viscosity measurements in the wide-gap Couette cell that will be used for the PIV experiments even though the shear stress is not constant in the gap.

The inner and outer cylinder radii are  $R_{in}=14$  mm and  $R_{out}=24$  mm respectively, their height is 60 mm. The rotor basis is hollowed out and is positioned one millimeter above the cup (Fig. 2). We have chosen to set the rotor close to the cup in order to limit shear-induced migration from or toward the bottom [Leighton and Acrivos (1987)]. Nevertheless, since the rotor is close to the cup and its immersed height is not very large compared to the gap between the

coaxial cylinders, the usual relation between the torque and the shear stress does not hold and a correction has to be introduced:

$$\Gamma = 2\pi r^2 L \sigma(r) + \Gamma^{\text{bot}} \quad (1)$$

Upon varying the height  $L$  of the sheared liquid, we measure  $\Gamma^{\text{bot}}$ , the torque that results from the presence of the bottom [Blanc et al. (2011)] and we deduce the shear stress field in the gap between the coaxial cylinders:

$$\sigma(r) = \frac{\Gamma - \Gamma^{\text{bot}}}{2\pi L r^2} = \frac{\Gamma^{\text{cor}}}{2\pi L r^2} \quad (2)$$

Neglecting the slight shear thinning behavior of the suspension, the shear rate in the gap is obtained from the spin rate of the inner cylinder,  $\Omega$ :

$$\dot{\gamma}(r) = 2\Omega \frac{R_{\text{in}}^2 R_{\text{out}}^2}{R_{\text{out}}^2 - R_{\text{in}}^2} \frac{1}{r^2} \quad (3)$$

And the viscosity is given by the ratio of the shear stress to the shear rate:

$$\eta_{\text{app}} = \frac{\Gamma^{\text{cor}}}{4\pi\Omega L} \frac{R_{\text{in}}^2 - R_{\text{out}}^2}{R_{\text{in}}^2 R_{\text{out}}^2} \quad (4)$$

The variation of the apparent viscosity as a function of the particle volume fraction is shown on Fig. 3. These measurements have been performed for an average shear rate,  $\langle \dot{\gamma} \rangle = (\dot{\gamma}(R_{\text{in}}) + \dot{\gamma}(R_{\text{out}})) / 2$ , of about  $0.02\text{s}^{-1}$ .

The data represented in Fig. 3 are fit to a Krieger-Dougherty law (solid line) with a maximum packing fraction  $\phi^*=0.536$  and an exponent  $n=2$ :

$$\eta = \eta_0 \frac{1}{\left(1 - \frac{\phi}{\phi^*}\right)^n} \quad (5)$$

This value of  $\phi^*$  is very small compared to the values usually found in the literature [Ovarlez et al.(2006), Stickel and Powell (2005)] that are around 0.60-0.63. It should be mentioned that Zarraga et al. (2000) have also found a rather low value for the packing fraction ( $\phi^*=0.58$ ). As discussed in Appendix A, we attribute this low value to polymeric forces between particles. Indeed, we noticed a viscoelastic behavior of the suspensions which is not expected for a suspension of truly hard, non-Brownian spherical particles.

### III. EXPERIMENTAL PROCEDURE

PIV is a now widespread non-invasive technique that allows for flow profile measurements (see [Adrian (2005)] for a review). However, even if it has been already used in the field of concentrated suspensions [Lenoble et al. (2005)], [Wiederseiner et al. (2009)], PIV is still a challenging technique in such heterogeneous media. The experimental facility and methods are described in detail elsewhere [Blanc et al. (2011)]. The present section summarizes the main information.

A transparent wide-gap Couette cell is mounted on a controlled-stress rheometer (Haake Mars II, Thermo Scientific). The measurement of the rotor spin rate provides macroscopic rheometric data while the velocity profile in the gap between the cylinders is deduced from PIV analysis. A schematic drawing of the set-up is shown on Fig.2. The inner rotating cylinder (28 mm in diameter, 60 mm in height) and the outer stationary cup (48 mm in diameter, 60 mm in height) are made of PMMA, in order that their refractive index is approximately matched with the index of the suspension. The front face has been polished in the form of a rectangular window that lets the horizontal laser sheet (Lasiris TEC Laser 635 nm, 35mW, Stockeryale) enter the gap between the cylinders. The inner cylindrical walls

have been roughened to minimize the suspension slip. The whole apparatus is placed in a thermostated box, and the temperature is set to  $T=34^{\circ}\text{C}$ .

A small quantity of the particles, that amounts to 0.25% of the whole suspension in volume, is colored with a fluorescent dye, the Nile Blue A (excitation peak at 635 nm, broad emission peak at 650 nm). Those particles serve as flow tracers. A CCD USB camera (Pixelink PLB 741 U,  $1280 \times 1024 \text{ pix}^2$ ) is placed under the cup and records sequential images of the illuminated part of the suspension through the polished bottom of the cup. The laser sheet and the camera are triggered by an external oscillator. In order to enhance the contrast of the images, the reflected and scattered light is filtered out by an optical high pass filter ( $\lambda_{\text{HP}}=650\text{nm}$ ) placed in front of the camera, so that only the fluorescing light is detected. The laser sheet illuminates the horizontal plane 14 mm above the bottom of the cup, where it has been shown [Blanc et al. (2011)] that the influence of the bottom on the velocity profile could be neglected. Fig.4 displays a typical image of the illuminated plane obtained with a  $\phi=44.4\%$  suspension.

The image processing is performed using an open source software DPIV Soft available on the web (<https://www.irphe.fr/~meunier/>). Each image is divided into overlapping subsets named correlation windows ( $64 \times 64$  pixels). The cross correlation of the corresponding windows from two successive images yields the mean velocity of the particles in the window. The same procedure performed on all windows gives the velocity field ( $60 \times 30$  2D vectors) in the illuminated plane. The concentration of colored particles has been chosen such that the number of particles in a window is sufficient (approximately 5), while keeping acceptable light absorption. Given the size of the image plane (approximately  $1\text{cm} \times 1.5\text{cm}$ ), the spatial resolution is around  $200 \mu\text{m}$ . The camera acquires frames at a maximum rate of 10Hz, resulting in a temporal resolution of 100ms.

The radial and azimuthal components of the velocity are then computed, and averaged over the azimuthal angle  $\theta$ . The mean radial velocity  $v_r(r,t)$  is always very close to zero ( $v_r/v_\theta \sim O(10^{-2})$ ). The local shear rate is extracted from the mean azimuthal velocity  $v_\theta(r,t)$ : the best fit of the function  $f(r,t) = a(t)r + \frac{b(t)}{r} + \frac{c(t)}{r^2}$  to the velocity data is sought and the shear rate is deduced from the well-known expression:

$$\dot{\gamma} = r \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{f(r,t)}{r} \right) \quad (6)$$

As explained previously, the local shear stress is deduced from the torque on the rotating cylinder (eq.(2)) that is corrected for the influence of the bottom of the cup [Blanc et al. (2011)] and the viscosity profile is computed:

$$\eta(r,t) = \frac{\sigma(r,t)}{\dot{\gamma}(r,t)} \quad (7)$$

The statistical error in the viscosity measurement has been estimated lower than 4% [Blanc et al. (2011)] and the uncertainty in the determination of the bulk volume fraction is less than 0.1%.

## IV. TRANSIENT RESPONSE

### A. long time migration

The main goal of this paper is the measurement of the local transient response of a concentrated suspension to a shear reversal. One parameter plays a major role in this mechanical response, namely the particle volume fraction. As a consequence, we need to efficiently control this parameter. However, it is well known that the particles in a sheared



suspension tend to migrate toward regions where the shear rate is lower [Phillips et al. (1992)]. This migration is all the more rapid as the particle concentration is higher and can have significant effects after even a few revolutions of the bob. For example, the velocity profile change obtained for a continuously sheared suspension whose mean volume fraction is  $\phi_{\text{mean}}=0.444$  is displayed in Fig.5. This curve has been obtained upon controlling the rotor spin rate at a value 1 rpm which corresponds to an average shear rate of  $2\text{s}^{-1}$ . Figure 5 suggests that wall slip is present near the inner cylinder but, due to the finite size of the correlation windows, we are not able to measure accurately the velocity close to the boundaries. So, we cannot conclude anything about the wall slip velocity. After ten revolutions, the velocity profile has changed significantly due to outward migration. From eq. (2), (6) and (7), we can compute the time evolution of the viscosity profile that is shown in Fig.6. We note that around a special value of  $r=r_c$ , the viscosity remains approximately constant. We have chosen  $r_c/R_{\text{out}}=0.77$ , which is the position where the viscosity variation is the lowest at the beginning of the migration, even though in Fig.6, where very long time variation are displayed, a higher value seems more appropriate. Since the viscosity mostly depends on the particle volume fraction through a monotonic increasing function, the volume fraction around the position  $r=r_c$  should also be constant. The existence of this radial zone where the particle concentration varies slightly throughout the migration process was observed experimentally by Phillips et al. in 1992 and is predicted either by the suspension balance model [Morris and Boulay (1999)] or by the diffusive flux model [Phillips et al. (1992)]. We have observed that the value of  $r_c$  depends only very weakly on the mean volume fraction. As a consequence, in the following, all local measurements are performed at this particular radial position in the gap, giving the properties of the suspension at the volume fraction  $\phi_{\text{mean}}$ .

## B. Transient response after shear reversal

Besides this long time evolution of the velocity profiles, we have observed a fast transient response of the suspension when the shear is reversed. Figure 7 shows the evolution of the normalized velocity profiles in a suspension with  $\phi=44.4\%$  when the direction of the torque applied on the inner cylinder is reversed. The measurement has been performed right after that the suspension had been mixed and poured in the Couette cell, so that an approximately homogeneous spatial distribution of the particles was expected at the beginning of the experiment. A negative torque of  $250 \mu\text{Nm}$  is applied to the inner cylinder until it has rotated quarter turn which corresponds to a mean deformation of 3.5 in the suspension. At time zero, the magnitude of the torque passes from  $-250 \mu\text{Nm}$  to  $250 \mu\text{Nm}$  which, according to expression (2) corresponds to a shear stress of 2 Pa at the bob. In Fig. 7, the dashed line represents the velocity profile expected for a Newtonian fluid. The solid lines are the measured profiles at various times,  $t$ , after the torque reversal. The very first ones are nearly Newtonian, the next profiles deviate from this Newtonian curve before returning to it for longer times. From each curve, following the procedure described in section III, we can deduce the viscosity profiles ( $\eta(r,t)$ ) as well as the total strain ( $\gamma(r,t)$ ):

$$\gamma(r, t) = \int_0^t \dot{\gamma}(r, t') dt' \quad (8)$$

In particular, we can measure the viscosity and the strain at the special point  $r=r_c$  where we are assured that the particle volume fraction has almost not changed.

If we plot the viscosity  $\eta(r_c,t)$  as a function of the strain,  $\gamma(r_c,t)$ , we obtain the curve that is shown on Fig. 8. Just after the shear reversal, the viscosity undergoes a step-like decrease. When the strain increases further, the viscosity first decreases, passes through a minimum and increases again to reach a plateau value.

First, we can note that such a strain-dependent viscosity is consistent with the time evolution of the normalised velocity profile shown in Fig. 7 since, in a wide-gap Couette cell, the shear rate is larger close to the bob and so is the strain. Thus as long as the plateau viscosity has not been reached everywhere in the gap, the viscosity is not uniform and the velocity profile is not Newtonian.

Second, it should be stressed that the characteristic total strain for such an experiment is 3.5 which corresponds to approximately 1/4 revolution of the bob. According to Fig. 6, for such a strain, the effect of the particle migration on the viscosity profile is negligible. All further experiments were conducted for an accumulated strain lower than 50 (corresponding to 4 revolutions of the bob) so that the particle migration was weak. Moreover, to minimize further the effect of migration, all viscosity measurements were performed at the radial position  $r=r_c$ .

The shear reversal experiment is repeated for other values of the applied torque corresponding to shear stresses of 0.85, 2.12, 4.25 and 5.95 Pa and the results obtained with a  $\phi=0.47$  suspension are presented on Fig. 9. The first observation is that the viscosity mainly depends on the strain amplitude even though, in accordance with the slight shear thinning behavior of the suspension (Fig.1), the value of the plateau decreases as the shear rate increases. On the contrary, the value of the minimum of the viscosity seems not to depend on the value of the applied torque.

The same experiment is carried out for other values of the particle concentration and the results are displayed on Fig. 10. For each particle volume fraction, the value of the applied torque is chosen in order that the angular velocity of the internal cylinder at the plateau is roughly the same (around 0.5 rpm which corresponds to an average shear rate of  $0.1s^{-1}$ ). As the particle concentration increases, the minimum is more pronounced and the strain necessary to reach the plateau value of the viscosity decreases.

A striking result shown on Fig. 11 is that the minimum of the viscosity scales as  $(\phi_m^* - \phi)^{-1}$  with  $\phi_m^* = 0.537$  while the plateau viscosity scales as  $(\phi_p^* - \phi)^{-2}$  with  $\phi_p^* = 0.534$ . This result is discussed in the following section.

## V. DISCUSSION.

The transient response of a concentrated suspension after shear reversal has already been studied through macroscopic rheological measurements either in narrow-gap Couette [Gadala-Maria and Acrivos (1980)] or in parallel plate geometry [Kolli et al. (2002), Narumi et al. (2002)]. In particular, it has been shown that the transient viscosity is a function of the strain only. Gadala-Maria and Acrivos (1980) proposed to explain the transient response by the development of a shear-induced microstructure. This microstructure has been observed by Parsi and Gadala-Maria (1987) and is characterized by the asymmetry of the pair distribution function with an excess of particles in the compressional quadrant. When the direction of the shear is reversed, the microstructure is broken and the particles rearrange into the mirror image of this microstructure.

In 2002, Kolli et al. studied the transient shear and normal force response to a shear reversal in non-Brownian suspensions in an annular plate-plate geometry. They observed that the normal force exhibited a transient behavior too. It abruptly went to a negative small value before increasing again to its positive value. They connected the initial value of both shear and normal stresses with the hydrodynamic contribution (in a structured state) and the plateau value with a mixed contribution of hydrodynamic and contact forces. They noted that the hydrodynamic contribution compared to the plateau value decreased as the concentration increased. Haan and Steif (1998) found previously the same type of behavior for the particle

pressure in numerical simulations of 2D suspensions of cylinders.

Thus both shear-induced microstructure and relative contributions of the hydrodynamic and non-hydrodynamic effects are presumably involved in the transient rheological response of non-Brownian suspensions.

Basically, the local response of the suspension presented in the current paper displays the same features as those obtained through conventional viscosimetric measurements. The main contribution of our work is to confirm that the transient response is actually a bulk property of the flowing suspension and cannot originate from a boundary problem such as the development of a Vand zone [Vand (1948)] or of a slip layer [Jana (1995)].

A more precise comparison between our results and those obtained by Gadala-Maria and Acrivos reveals a small difference: while all their results collapse into a single curve when the viscosity divided by its plateau value is plotted versus the strain, our results are slightly different. Indeed, Figure 9 shows that, as the applied torque increases, the plateau viscosity decreases while the minimum remains almost unchanged. This effect is rather weak so we do not want to give too much importance to this observation but it would mean that the shear thinning behavior of the suspension is related to a change of its microstructure together with the non-hydrodynamic interactions with the magnitude of the shear rate. Indeed, we speculate that the viscosity passes through the minimum when the microstructure has disappeared and the suspension is almost isotropic before the particles have rearranged into the steady-state structure when the viscosity plateau is reached again. In this latter state, the particles are very close together along the compression axis and it is plausible that their arrangement and the non-hydrodynamic interactions depend slightly on the value of the shear rate that causes the plateau viscosity to vary. On the opposite, if the minimum viscosity is reached when the suspension is unstructured and when non-hydrodynamic forces have relaxed, the value of the minimum should not depend on the shear rate magnitude. The results

reported in Fig. 11 are more pronounced and have more implications. The minimum viscosity and the plateau value do not scale in the same way with the particle concentration. Both diverge when the particle concentration approaches approximately the same value,  $\phi^*=0.535$  but with different power laws of  $(\phi^*-\phi)$ . The minimum viscosity diverges when  $\phi$  tends to  $\phi^*$  with an exponent (-1) while the plateau viscosity follows a (-2) power law. Following our speculation that the suspension is almost isotropic when the viscosity is minimum and that an anisotropic structure has formed at the plateau, two different behaviors were indeed expected. As for the plateau, the (-2) power law is usually observed both in experiments and in numerical simulations. From a theoretical point of view, Mills and Snabre (2009) have proposed to explain this scaling with a model that accounts for the solid friction between particles in dynamic clusters. In the same paper, they also provide a scaling of the viscosity with the solid volume fraction for an isotropic random suspension where the dissipation is purely hydrodynamic. The viscosity is shown to scale as  $\phi^{1/3} \cdot (\phi^* - \phi)^{-1}$ . Thus they predict the same divergence of the viscosity with the particle concentration as that we measured although we have not observed the  $\phi^{1/3}$  - dependence.

In the particle concentration range that we consider here, our results are in close agreement with Stokesian Dynamics simulation of unstructured non-Brownian suspensions [Sierou and Brady (2001)]. Their results together with our experimental data are displayed in Fig. 12 where the inverse of the minimum reduced viscosity,  $\eta_0/\eta_{\min}$ , is plotted versus the reduced particle volume fraction,  $\phi/\phi^*$  (in our case,  $\phi^*=0.535$  and in the case of Stokesian Dynamics results,  $\phi^*=0.64$ ). For relatively moderate solid volume fractions ( $0.55 < \phi/\phi^* < 0.93$ ), the linear scaling is satisfactory for both results, even though the simulation results show a clear curvature. For higher particle concentrations, Sierou and Brady have proposed a different scaling of the viscosity with the reduced volume fraction that fits well to their

simulations for this higher range of volume fractions. Unfortunately, we did not perform measurements at so high concentrations.

We note that in the work of Sierou and Brady (2001), the particles are homogeneously and isotropically distributed, whereas Kolli et al. consider the initial values of the shear and normal stresses after shear reversal, that correspond to a structured state where the non-hydrodynamic interactions have relaxed. As for our study, we consider the minimum of the viscosity that should be obtained for the less structured state of the sheared suspension, and our results compare well to the simulations of Sierou and Brady (2001). However, it is not clear to us whether the point is the isotropic structure or the lack of non-hydrodynamic interactions.

## VI. CONCLUSION

We have been able to characterize the bulk transient response of concentrated non-Brownian suspensions of various particle volume fractions after shear reversal, using a PIV technique. Our measurements confirm those previously obtained using classical viscosimetry [Gadala-Maria and Acrivos (1980), Kolli et al. (2002), Narumi et al. (2002)]: the transient viscosity mostly depends on the strain. After shear reversal, the viscosity undergoes a step-like reduction, decreases slower, passes through a minimum and increases again to reach a plateau value. The plateau viscosity obeys the classical Krieger-Dougherty law with an exponent  $n=2$  and a packing concentration  $\phi^*=0.535$  whose low value could be explained by interparticle forces. As for the minimum viscosity, its values compare well with the results of numerical simulation performed on random suspensions [Sierou and Brady (2001)] and is consistent with the predictions of Mills and Snabre (2009): in the range of particle volume

---

fractions that we have studied ( $0.55 < \phi/\phi^* < 0.93$ ), the minimum viscosity diverges as  $(\phi^* - \phi)^{-1}$ , suggesting that the suspension passes through an almost isotropic structure where the non-hydrodynamic forces have relaxed.

### **ACKNOWLEDGMENTS**

This work was supported by the ANR (program ANR-08-BLAN-0048 - CSD 2). We are grateful to L. Lobry and P. Mills for fruitful discussions.

### **APPENDIX A: A POSSIBLE EXPLANATION FOR THE LOW VALUE OF THE PACKING FRACTION.**

Upon fitting the data of Fig. 3 with the Krieger-Dougherty law, the particle packing fraction,  $\phi^*$ , is found to be around 0.536. This value is much smaller than the usual values obtained for non-colloidal suspensions,  $\phi_{nc} \approx 0.61$ . We speculate that even though the particles are as large as  $31\mu\text{m}$  in diameter, they undergo soft interactions. One can wonder about the nature of the inferred interactions. We can rule out the electrostatic interactions since we have measured the same value of  $\phi^*$  when the particles were dispersed in an aqueous solution whose polarity is of course very different from that of the mineral oil used in the present experiment. The Van der Waals forces should also be discarded as their interaction range is too short for explaining the low value of the packing volume fraction. Furthermore, they should be weak since the refractive indices of the particles and of the liquid are matched. Finally, polymeric forces remain the only possible interaction between particles. We have to



mention that we have attempted to wash the particles with deionized water and with ethanol without noting any change on the suspension rheology. According to the constructor (Microbeads AS), it is plausible that the particles are covered by polymer chains (cellulose) that served as surfactant during the manufacturing of the particles.

We can estimate the characteristic interaction length,  $\delta$ , by considering the excluded volume arising from the repulsion between particles:

$$\left(\frac{a + \delta}{a}\right)^3 \approx \frac{\phi_{nc}}{\phi^*} = \frac{0.61}{0.535} \quad (\text{A } 1)$$

where  $a$  is the particle radius. Eq.(A1) leads to  $\delta \approx 1\mu\text{m}$ .

Moreover, the presence of repulsive forces between particles is corroborated by the observation of an elastic behavior of the suspension which is illustrated in Fig. 13. This recovery test has been carried out on a  $\phi=0.444$  suspension. The recovery curve (solid line) is almost well fitted by an exponential function (dashed line) with a Maxwell time,  $\tau$ , of about 2s which corresponds to an elastic modulus of approximately  $\eta/\tau \approx 70$  Pa. Furthermore, we speculate that the repulsive forces between particles are responsible for a perturbation of the shear-induced microstructure. This has been observed during transient tests where shear stress steps have been applied always in the same direction after rest periods of different durations. The protocol is represented in Fig. 14.a and the bob angular velocity response is plotted in Fig. 14.b. The longer is the rest period, the higher is the angular velocity overshoot (or lower the viscosity). This would mean that, during shear periods, the particles are forced to approach each other in the compression direction and, when the shear is stopped, the particles move away one from each other under the repulsive interactions. Thus after a sufficiently long rest time, the shear-induced structure of the suspension tends to disappear and its viscosity approaches the minimum viscosity recorded during shear reversal. Again, this

---

elastic behavior together with the small value of  $\phi^*$  suggest that some polymer molecules at the surface of the particles give rise to soft steric repulsion.

## **APPENDIX B: COMPARISON WITH MACROSCOPIC NARROW-GAP MEASUREMENTS**

In this section, we perform classical rheometric measurements in a narrow-gap Couette geometry Z40Ti mounted on the rheometer Mars II (Haake, Thermofisher). The bob diameter is  $2R_i=41.42$  mm, the gap is  $g=R_o-R_i=0.99$  mm, its height is  $L=55$ mm. The transient viscosity of the  $\phi=47\%$  suspension is measured. After it had been poured in the cup, the suspension was shortly pre-sheared (total strain around 365) in order to obtain a well defined structure in the suspension. Then the shear reversal measurements were performed.

The raw viscosity measured for two values of the imposed shear stress (4.25 and 5.95 Pa) is displayed on Fig. 15, together with the corresponding wide-gap local measurements. The apparent viscosity is significantly lower in the narrow-gap cell, suggesting that wall slip occurs at the boundaries.

Jana et al (1995) performed local measurements in a narrow-gap geometry to determine the slip length at the wall. They used a Laser Doppler Velocimetry technique to measure the velocity profile across the gap. In this paper, they sheared the suspensions for 2 days before they acquired the velocity profile, so that they had to take the radial migration into account. The wall slip was characterized by an apparent slip velocity, i.e. the difference between the velocity of the walls and the velocity of the suspension at the same position. They showed that the slip velocity  $u_s$  was related to the local shear rate  $\dot{\gamma}$  and the local volume fraction  $\phi$  by:

$$u_s = \frac{\eta_r}{q} \dot{\gamma} a \quad (\text{B.1})$$

where  $a$  is the radius of the particles and  $\eta_r$ , the relative viscosity of the suspension.  $q$  is a constant that is determined experimentally: in [Jana et al (1995)],  $q=8$ .

In our work, the total strain during pre-shear is small, so that we can neglect migration. For comparison, Gadala-Maria and Acrivos (1980), in similar conditions, measured a characteristic strain for migration of around  $4.32 \cdot 10^4$ . Following Jana et al. (1995), we introduce a slip velocity at the bob  $u_{si}$  and at the cup  $u_{so}$ . In the case of a purely viscous homogeneous liquid, the velocity profile is given by:

$$\frac{u}{r} = \frac{R_o^2 - r^2}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_i}{r} \right)^2 \left( \Omega - \left( \frac{u_{si}}{R_i} - \frac{u_{so}}{R_o} \right) \right) + \frac{u_{so}}{R_o} \quad (\text{B.2})$$

and the shear rate:

$$|\dot{\gamma}| = \left| r \frac{d}{dr} \left( \frac{u}{r} \right) \right| = \left( 2 \frac{R_o^2}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_i}{r} \right)^2 \right) \left( \Omega - \left( \frac{u_{si}}{R_i} - \frac{u_{so}}{R_o} \right) \right) \quad (\text{B.3})$$

where  $\Omega$  is the bob angular velocity.

From (B.1), (B.2) and (B.3), the slip velocity is found at the boundaries, and the velocity profile can be computed.

$$\begin{aligned} \dot{\gamma}(R_i) &= \frac{2R_o^2 \Omega}{R_o^2 - R_i^2} \frac{\frac{q}{\eta_r a}}{\frac{q}{\eta_r a} + \frac{2}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_o^2}{R_i} + \frac{R_i^2}{R_o} \right)} \\ &= \dot{\gamma}_{app} \frac{\frac{q}{\eta_r a}}{\frac{q}{\eta_r a} + \frac{2}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_o^2}{R_i} + \frac{R_i^2}{R_o} \right)} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

with  $\dot{\gamma}_{app}$  the apparent shear rate, at the bob.

Using eq. (B.4) and setting that the stress is controlled:

$$\sigma = \eta_r \dot{\gamma} = \eta_r^{app} \dot{\gamma}^{app} \quad (\text{B.5})$$

we obtain the expressions of the bulk shear rate,  $\dot{\gamma}$ , and relative viscosity,  $\eta_r$ , versus their apparent values  $\dot{\gamma}^{app}$  and  $\eta_r^{app}$  :

$$\begin{aligned} \dot{\gamma} &= \dot{\gamma}^{app} \left( 1 - \frac{2\eta_r^{app}}{q} \frac{a}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_o^2}{R_i} + \frac{R_i^2}{R_o} \right) \right) \\ \eta_r &= \frac{\eta_r^{app}}{1 - \frac{2\eta_r^{app}}{q} \frac{a}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_o^2}{R_i} + \frac{R_i^2}{R_o} \right)} \end{aligned} \quad (B.6)$$

as well as the expression of the bulk strain:

$$\gamma = \int_0^{\dot{\gamma}^{app}} \left( 1 - \frac{2\eta_r^{app}(u)}{q} \frac{a}{R_o^2 - R_i^2} \left( \frac{R_o^2}{R_i} + \frac{R_i^2}{R_o} \right) \right) du \quad (B.7)$$

Figure (16) displays the PIV measurements together with the viscosity measured in the narrow-gap Couette rheometer after slip correction. The wall slip-corrected viscosity has been computed with  $q=6.8$  that is the optimal value to match the plateau viscosity measured using PIV. If, like Jana et al., we take  $q=8$ , the plateau viscosity values are slightly smaller ( $\eta_{plateau}=56$  Pa.s. for  $\sigma=4.25$  Pa and  $\eta_{plateau}=54$  Pa.s. for  $\sigma=5.95$  Pa) but it is reasonable to expect that the  $q$  value depends on the particles and on the wall roughness and the wall-slip correction proposed by Jana et al. reconciles the narrow-gap and the PIV measurements at the plateau. However, the beginnings of the transients are quite different, suggesting that the slip velocity (B.1) is only valid when the sheared suspension has reached its steady state. According to figure 16, during the transient, eq. (B.1) underestimates the slip velocity.

At last, we would like to mention a striking result shown on Fig. 17 where the slip correction has been calculated upon replacing  $\eta_r(\dot{\gamma})$  with its plateau value ( $\eta_r(\dot{\gamma} \rightarrow \infty)$ ), in eq. (B.1). Although we do not have any explanation for it, it appears clearly that the agreement is far better when eq. (B.1) is solved with  $\eta_r(\dot{\gamma} \rightarrow \infty)$  rather than with  $\eta_r(\dot{\gamma})$ .

## References

Abbas, M., E. Climent, and O. Simonin, "Fully coupled simulations of non-colloidal monodisperse sheared suspensions," *Chemical Engineering Research and Design* **85** (6) 778-791 (2007).

Acrivos, A, X. Fan, and R. Mauri, "On the measurement of the relative viscosity of suspensions," *J.Rheol.* **38**, 1285-1296 (1994).

Adrian, R. J., "Twenty years of particle image velocimetry," *Experiments in Fluids* **39** (2) 159-169 (2005)

Blanc, F., F. Peters, and E. Lemaire, "Particle Image Velocimetry in concentrated suspensions: application to local rheometry," *Appl. Rheol.* **21**, 23735 (2011).

Bricker, J. M. and Buttler J. E., "Correlation between stresses and microstructure in concentrated suspensions of non-Brownian spheres subject to unsteady shear flows," *J. Rheol.* **51** , 735-759 (2007).

Chow, A. W., S. W. Sinton, J. H. Iwamiya, and T. S. Stephens., "Shear-induced migration in Couette and parallel-plate viscosimeters: NMR imaging and stress measurements," *Phys. Fluids A* **6**, 2565-2576 (1994).

Drazer, G., J. Koplik, B. Khusid, and A. Acrivos, "Microstructure and velocity fluctuations in sheared suspensions," *J. Fluid Mech.* **511**, 237-263 (2004).

Fall, A., F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn, "Yield Stress and Shear Banding in Granular Suspensions," *Phys. Rev. Lett.* **103**, 178301-04 (2009).

Gadala-Maria, F., and A. Acrivos, "Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres," *J. Rheol.* **24**, 799-814 (1980).

Haan, J.J., and P.S. Steif, "Particle-phase pressure in a slow shearing flow based on the numerical simulation of a planar suspension of rough contacting cylinders," *J. Rheol.* **42**, 891-916 (1998).

Huang, N., G. Ovarlez, F. Bertrand, S. Rodts, P. Coussot, and D. Bonn, "Flow of Wet Granular Materials," *Phys. Rev. Lett.* **94** (2), 028301-04 (2005).

Jana, S. C., B. Kapoor, and A. Acrivos, "Apparent wall slip velocity coefficients in concentrated suspensions of non colloidal particles," *J. Rheol.* **39**, 1123-1132 (1995).

Kolli, V. G., E. J. Pollauf, and F. Gadala-Maria, "Transient normal stress response in a concentrated suspension of spherical particles," *J. Rheol.* **46**, 321-333 (2002).

Leighton, D., and A. Acrivos., "The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions," *J. Fluid Mech.* **181**, 415-439 (1987).

Lenoble, M., P. Snabre, and B. Pouligny, "The flow of a very concentrated slurry in a parallel-plate device: Influence of gravity," *Phys. Fluids* **17** 073303 (2005)

Mills, P., and P. Snabre, "Apparent viscosity and particle pressure of a concentrated suspension of non-Brownian hard spheres near the jamming transition," *Eur. Phys. J. E: Soft Matter and Biological Physics*, **30** (3), 309-316 (2009)

Morris, J. F., and F. Boulay, "Curvilinear flows of noncolloidal suspensions: The role of normal stresses", *J. Rheol.* **43**, 1213-1237 (1999)

Morris, J. F., "A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow," *Rheol. Acta* **48**, 909-923 (2009).

Narumi, T., H. See, Y. Honma, T. Hasegawa, T. Takahashi, and N. Phan-Thien, "Transient response of concentrated suspensions after shear reversal," *J. Rheol.* **46**, 295-305 (2002).

Ovarlez, G., F. Bertrand, and S. Rodts, "Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging," *J. Rheol.* **50**, 259-292 (2006).

Parsi, F., and F. Gadala-Maria, "Fore-and-aft asymmetry in a concentrated suspension of solid spheres," *J. Rheol.* **31**, 725-732 (1987).

Phillips, R. J., R. C. Armstrong, R. A. Brown, A. L. Graham, and J. R. Abbott, "A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration," *Phys. Fluids A* **4**, 30-40 (1992).

Shapley, N. C., R. C. Armstrong, and R. A. Brown, "Laser Doppler velocimetry measurements of particle velocity fluctuations in a concentrated suspension," *J. Rheol.* **46**, 241-272 (2002).

Singh, A., and P.R. Nott, "Normal stresses and microstructure in bounded sheared suspensions via Stokesian dynamics simulations," *J. Fluid Mech.* **412**, 279-301 (2000).

Sierou, A., and J. F. Brady, "Accelerated Stokesian dynamics simulations," *J. Fluid Mech.* **448**, 115-146 (2001).

Sierou A., and Brady J.F., "Rheology and microstructure in concentrated noncolloidal suspensions," *J. Rheol.* **46**, 1031-1056 (2002).

Stickel, J. J., and R. L. Powell, "Fluid mechanics and rheology of dense suspensions," *Ann. Rev. Fluid Mech.* **37**, 129-179 (2005).

Vand, V., "Viscosity of solutions and suspensions. I Theory," *J. Phys. Colloid. Chem.* **52**, 277-299 (1948).

Wiederseiner, S., C. Ancey, M. Rentschler, and N. Andreini, "Rheophysics of highly concentrated coarse-particle suspensions in a wide-gap Couette rheometer," *AIP Conference Proceedings*, **1145** (1), 1063-1066 (2009).

Yeo, K., and MR Maxey, "Dynamics of concentrated suspensions of non-colloidal suspensions," *J. Fluid Mech.* **649**, 205-231 (2010).



Zarraga, I. E., D. A. Hill, and D. T. Leighton, "The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids," *J. Rheol.* **44**, 185-220 (2000).

## FIGURE CAPTIONS

Figure 1: Flow curve of a  $\phi=0.47$  suspension obtained in a narrow-gap Couette rheometer.

Inset: power-law fit:  $\ln(\sigma(\text{Pa}))=0.88.\ln(\dot{\gamma}(\text{s}^{-1}))+3.7$ .

Figure 2: Experimental set-up.

Figure 3: Steady relative viscosity of the suspension versus the particle volume fraction.

These measurements have been performed in the wide-gap Couette cell for an average shear rate of  $0.02 \text{ s}^{-1}$ .

Figure 4: Typical image of a  $\phi=0.444$  suspension recorded 14 mm above the cup bottom.

Figure 5: Long time evolution of the velocity profile in a  $\phi=0.444$  suspension sheared in a wide-gap Couette cell (inner radius 14 mm and outer radius 24 mm). The bob spin rate is set to 1 rpm.

Figure 6: Long time evolution of the normalized viscosity profile for the  $\phi=0.444$  suspension.

Figure 7: Transient velocity profiles after shear-reversal (at  $t=0$  the applied torque passes from  $-250\mu\text{Nm}$  to  $+250\mu\text{Nm}$ ) at different times (0.25, 1.25, 4 and 37.5 s). The dashed line represents the Newtonian profile.  $\phi=0.444$ .

Figure 8: Transient reduced viscosity after shear reversal versus local strain measured at  $r/R_{\text{out}} = 0.77$ .  $\phi=0.444$

Figure 9: Transient reduced viscosity after shear reversal versus local strain. The experiment has been performed for different applied torques that correspond to different shear stresses at the bob ( $\sigma=0.85, 2.12, 4.25$  and  $5.95$  Pa).  $\phi=0.47$ .

Figure 10: Transient viscosity after shear reversal for different particle volume fractions vs local strain.  $\langle \dot{\gamma} \rangle_{\text{plateau}} \approx 0.1 \text{ s}^{-1}$ . The applied torque values have been chosen in order the bob angular spin rate to be roughly  $0.5$  rpm at the plateau whatever the particle volume fraction and thus the viscosity.

Figure 11: Scaling law for the plateau viscosity and the minimum viscosity. The applied torque values have been chosen in order the bob angular spin rate to be roughly  $0.5$  rpm whatever the particle volume fraction and thus the viscosity.

Figure 12: Inverse of the relative viscosity  $\eta_0/\eta$  versus  $\phi/\phi^*$ : (●) minimum viscosity from PIV measurement. (■) High-frequency viscosity from Stokesian dynamics (Sierou and Brady (2001)).

Figure 13: Recovery test after shear stress cancellation.  $\phi=0.444$ .

Figure 14: Sequence of shearing and shear stress break with increasing of the break duration. a) Applied torque. b) Bob angular velocity response. The velocity overshoot amplitude increases with the break duration.  $\phi=0.444$ .

---

Figure 15: Viscosity response to a shear stress reversal for a  $\phi=0.47$  suspension. Wide-gap + PIV measurements:  $\sigma=4.25$  Pa ( $\nabla$ ),  $\sigma=5.95$  Pa ( $\diamond$ ). Narrow-gap measurements:  $\sigma=4.25$  Pa (—),  $\sigma=5.95$  Pa (-----).

Figure 16: Viscosity response to a shear stress reversal for a  $\phi=0.47$  suspension. Wide-gap + PIV measurements:  $\sigma=4.25$  Pa ( $\nabla$ ),  $\sigma=5.95$  Pa ( $\diamond$ ). Narrow-gap measurements corrected for the wall slip:  $\sigma=4.25$  Pa (—),  $\sigma=5.95$  Pa (-----).

Figure 17: Viscosity response to a shear stress reversal for a  $\phi=0.47$  suspension. Wide-gap + PIV measurements:  $\sigma=4.25$  Pa ( $\nabla$ ),  $\sigma=5.95$  Pa ( $\diamond$ ). Narrow-gap measurements corrected for the wall slip:  $\sigma=4.25$  Pa (—),  $\sigma=5.95$  Pa (-----). The wall slip correction is calculated using the plateau viscosity in eq. (A.2.1).

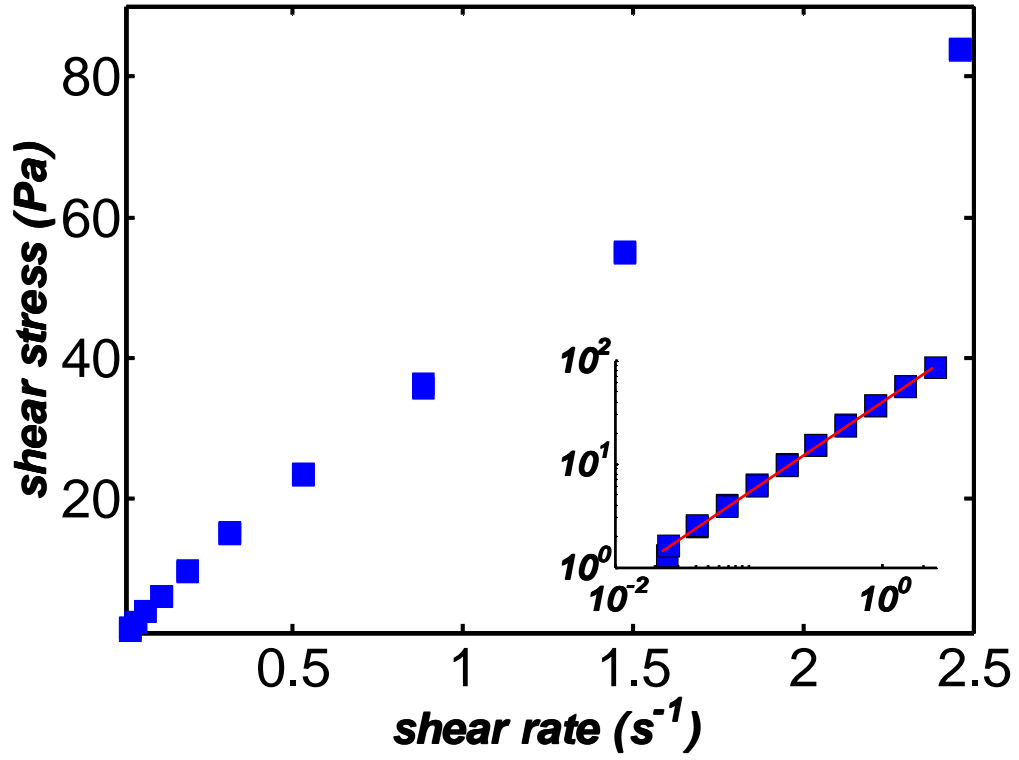


Figure 1

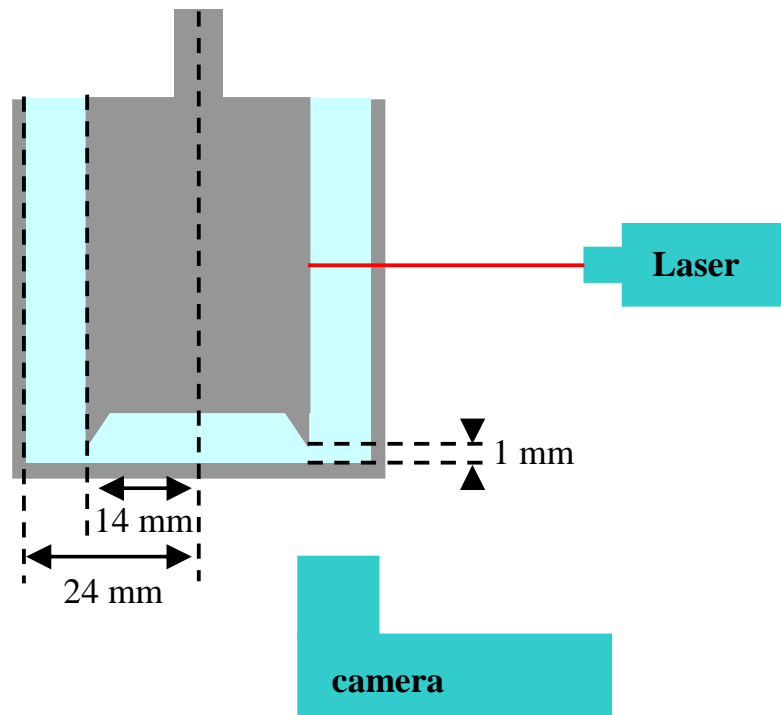


Figure 2

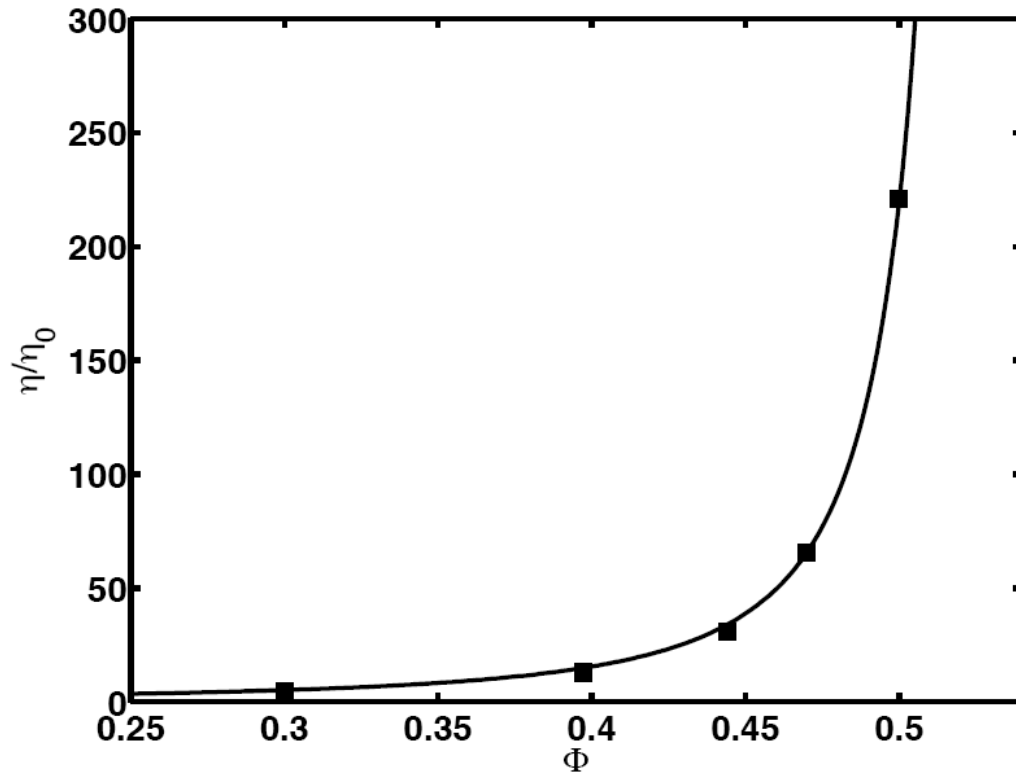


Figure 3

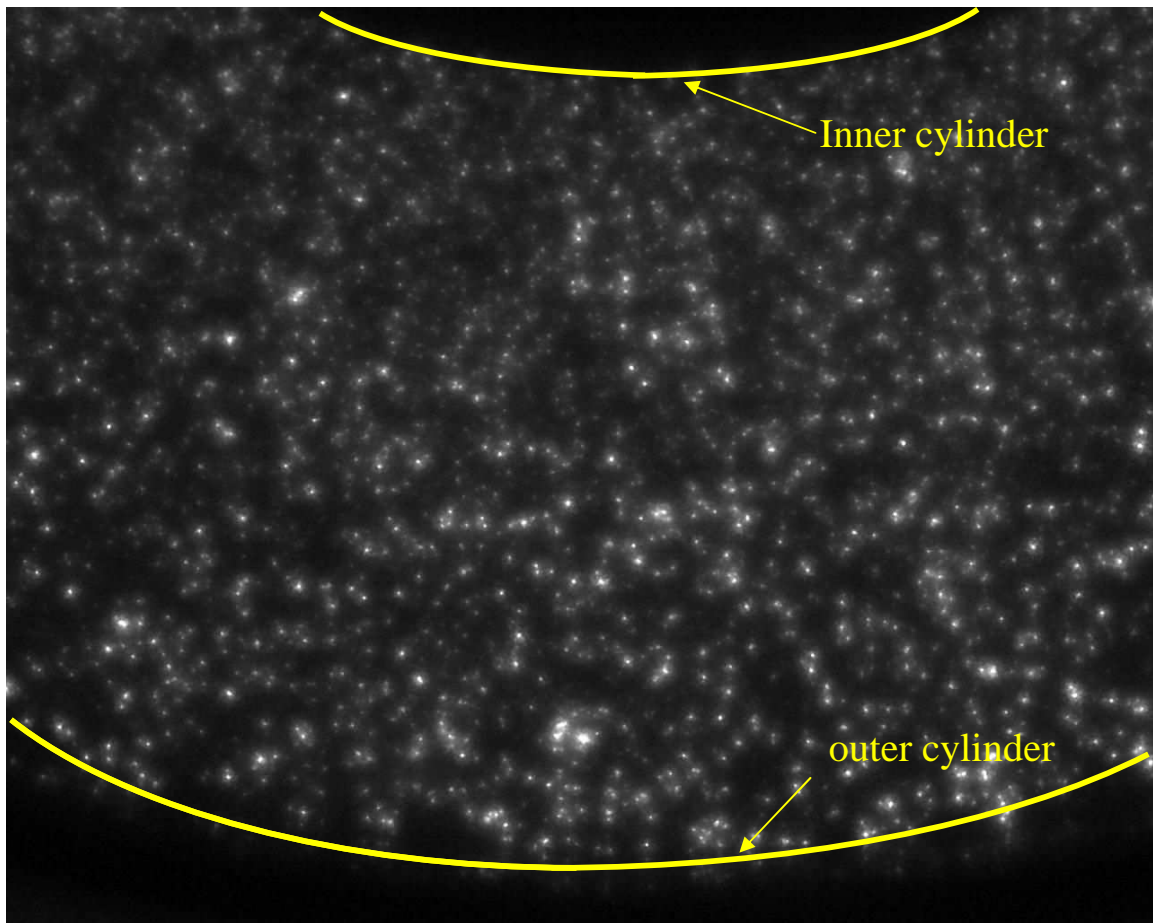


Figure 4



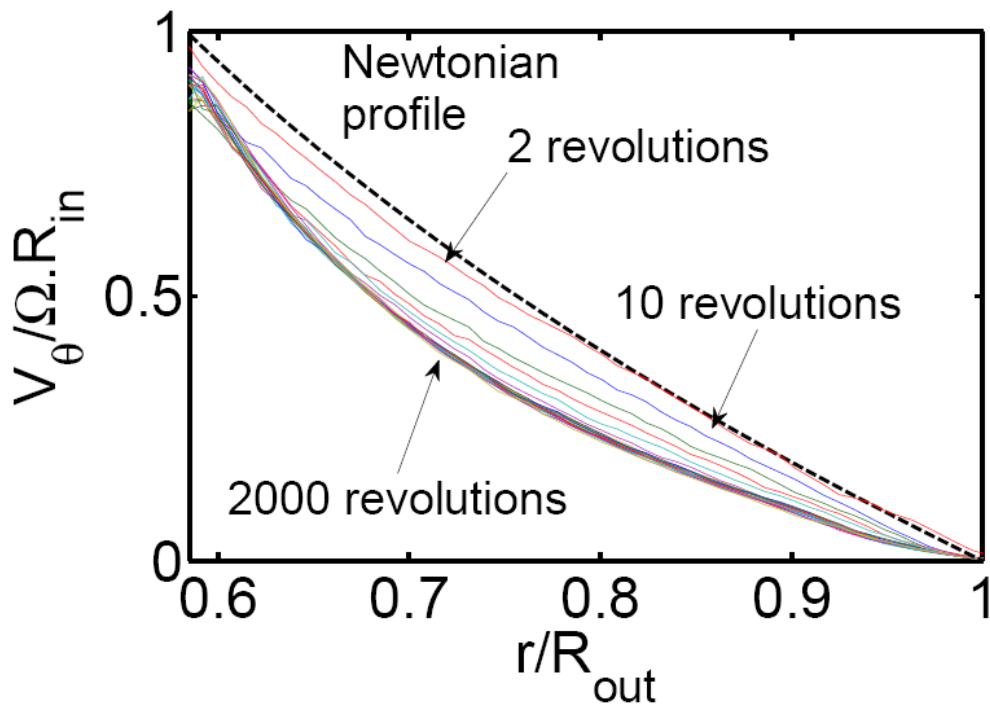


Figure5

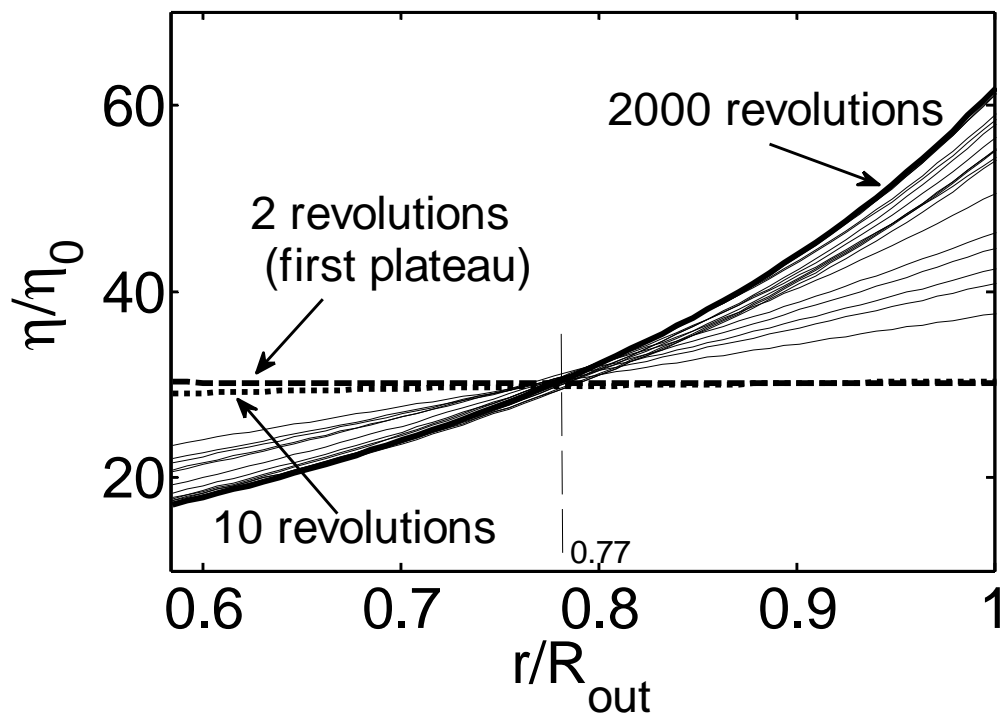


Figure 6

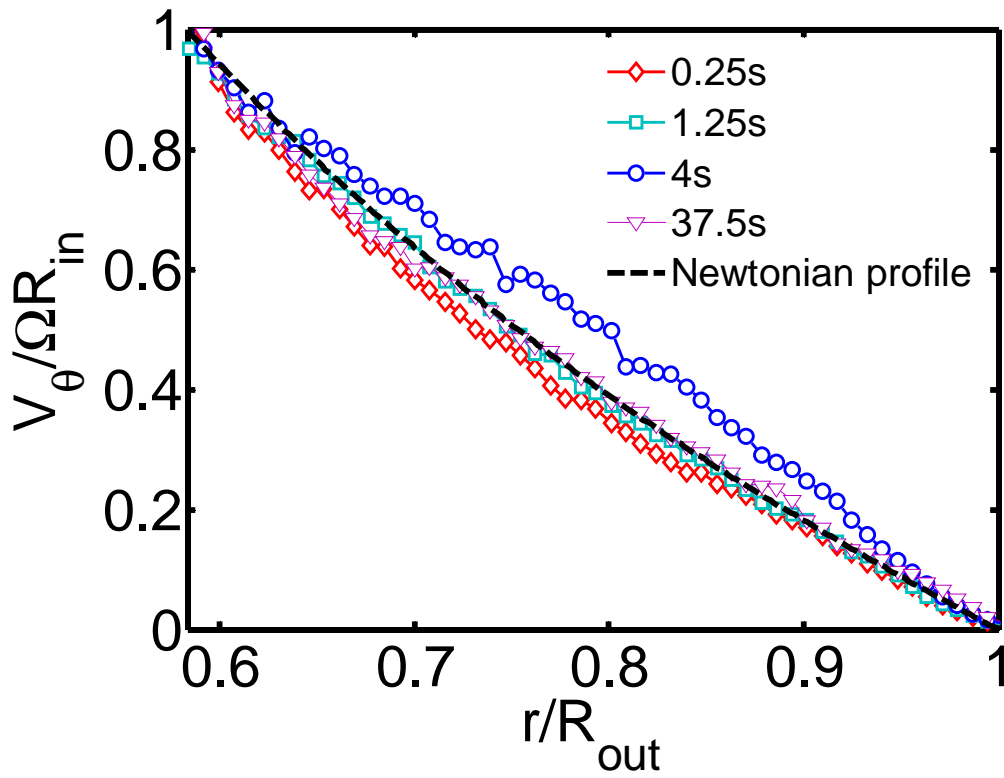


Figure 7

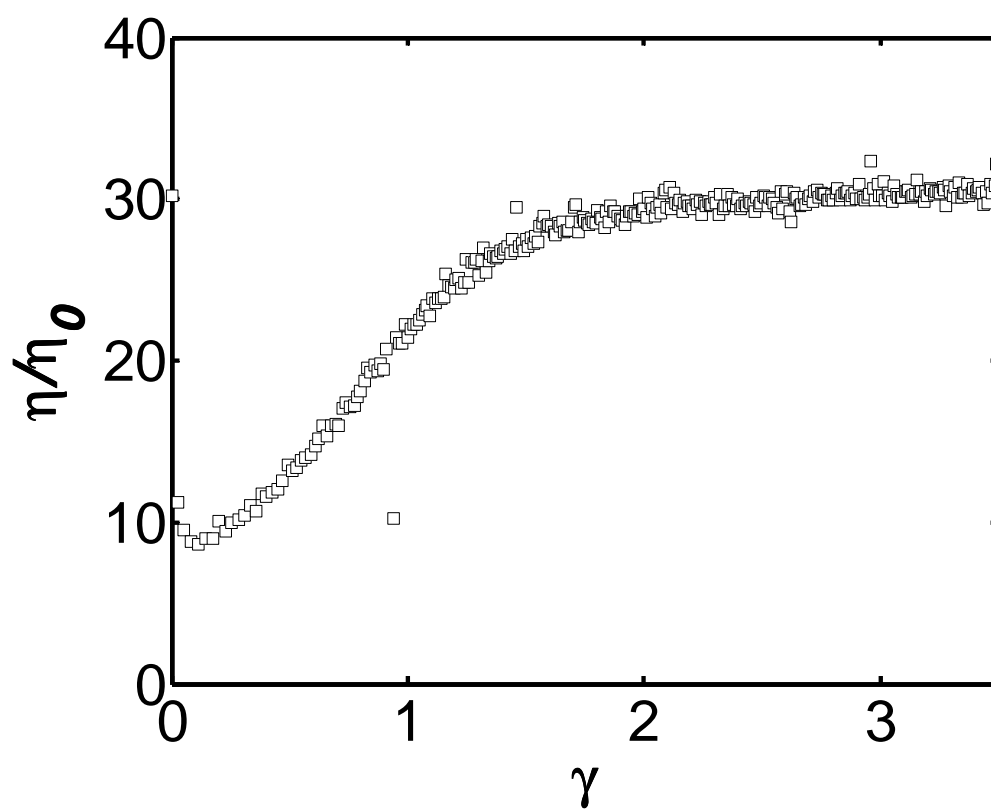


Figure 8

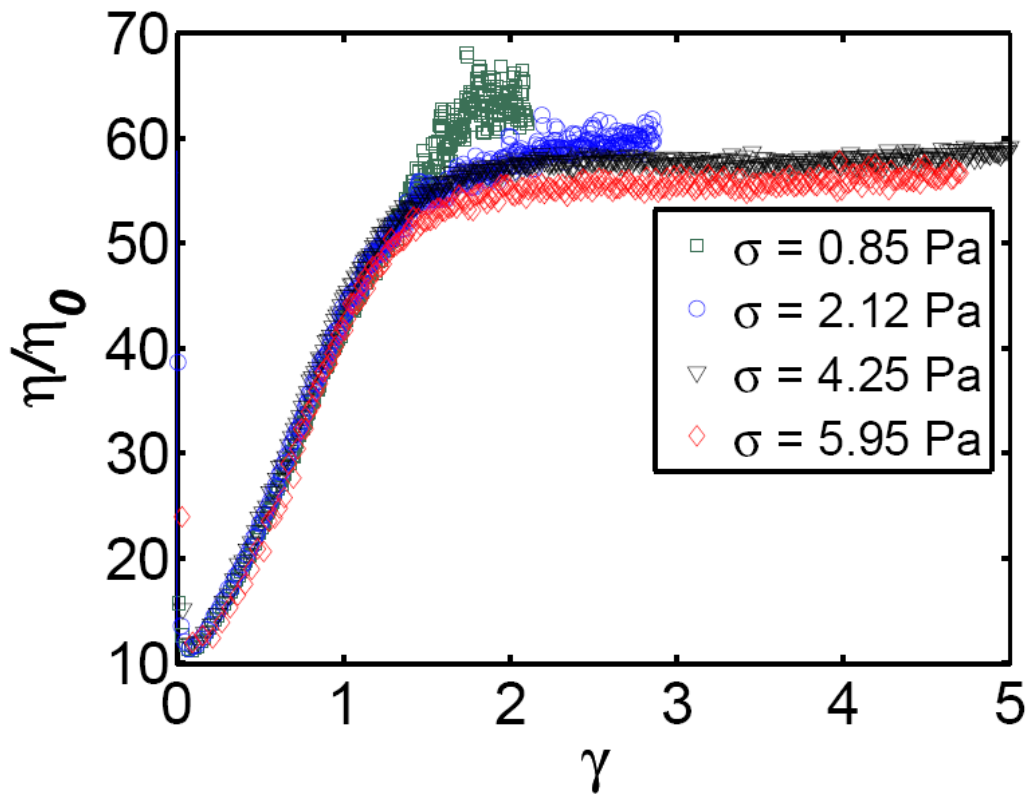


Figure 9

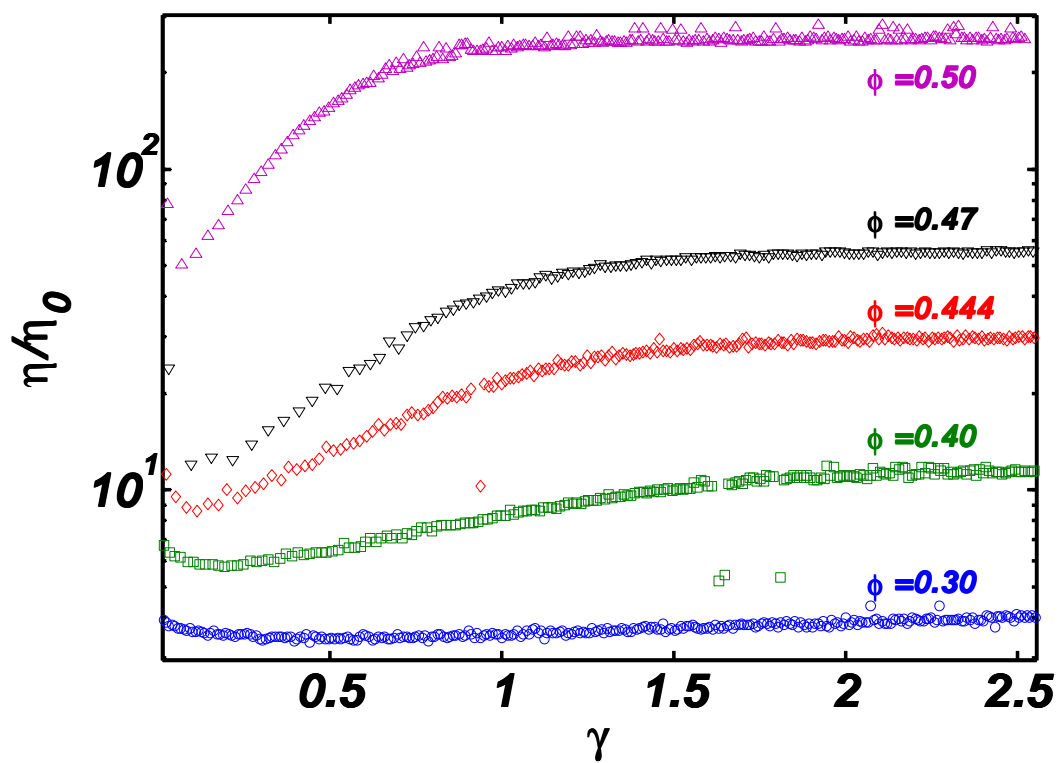


Figure 10

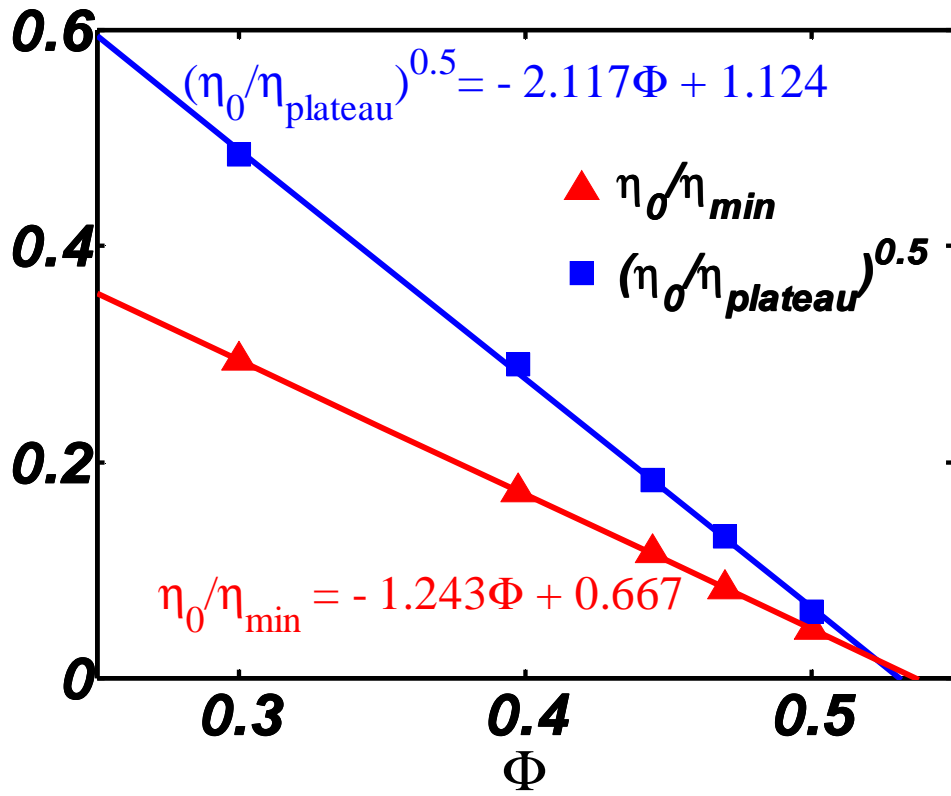


Figure 11

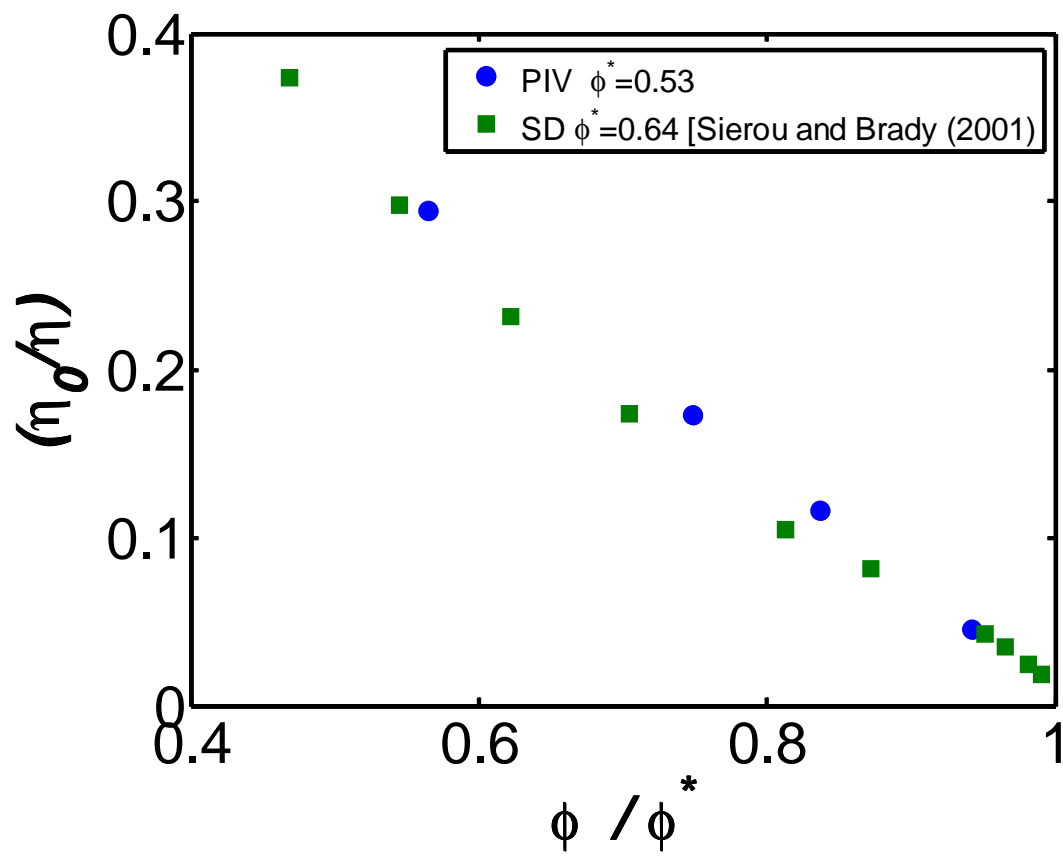


Figure 12



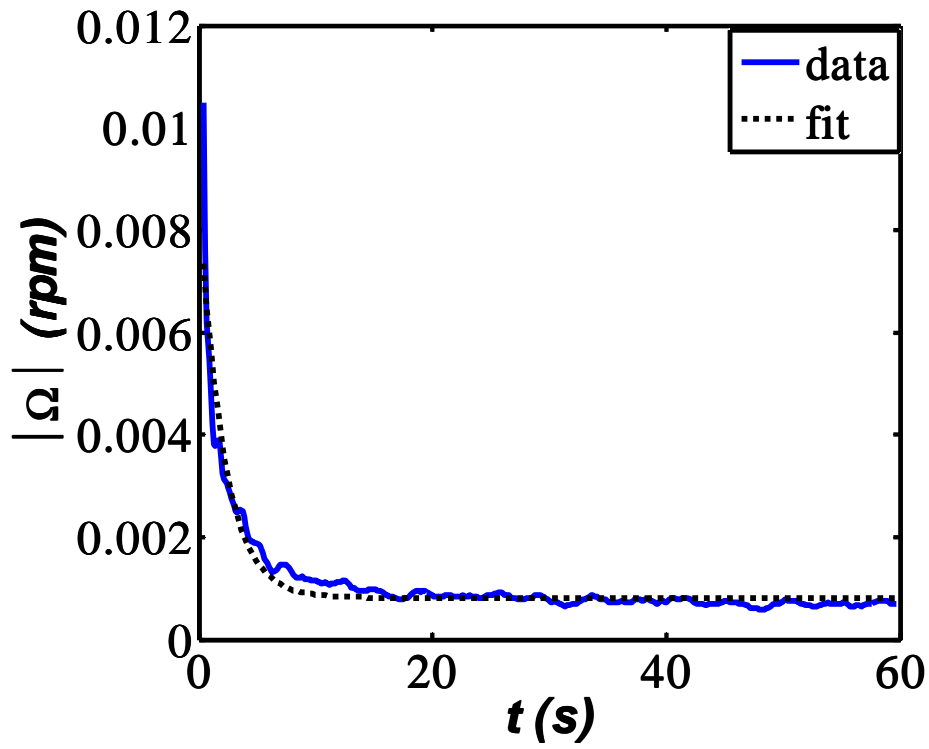


Figure 13

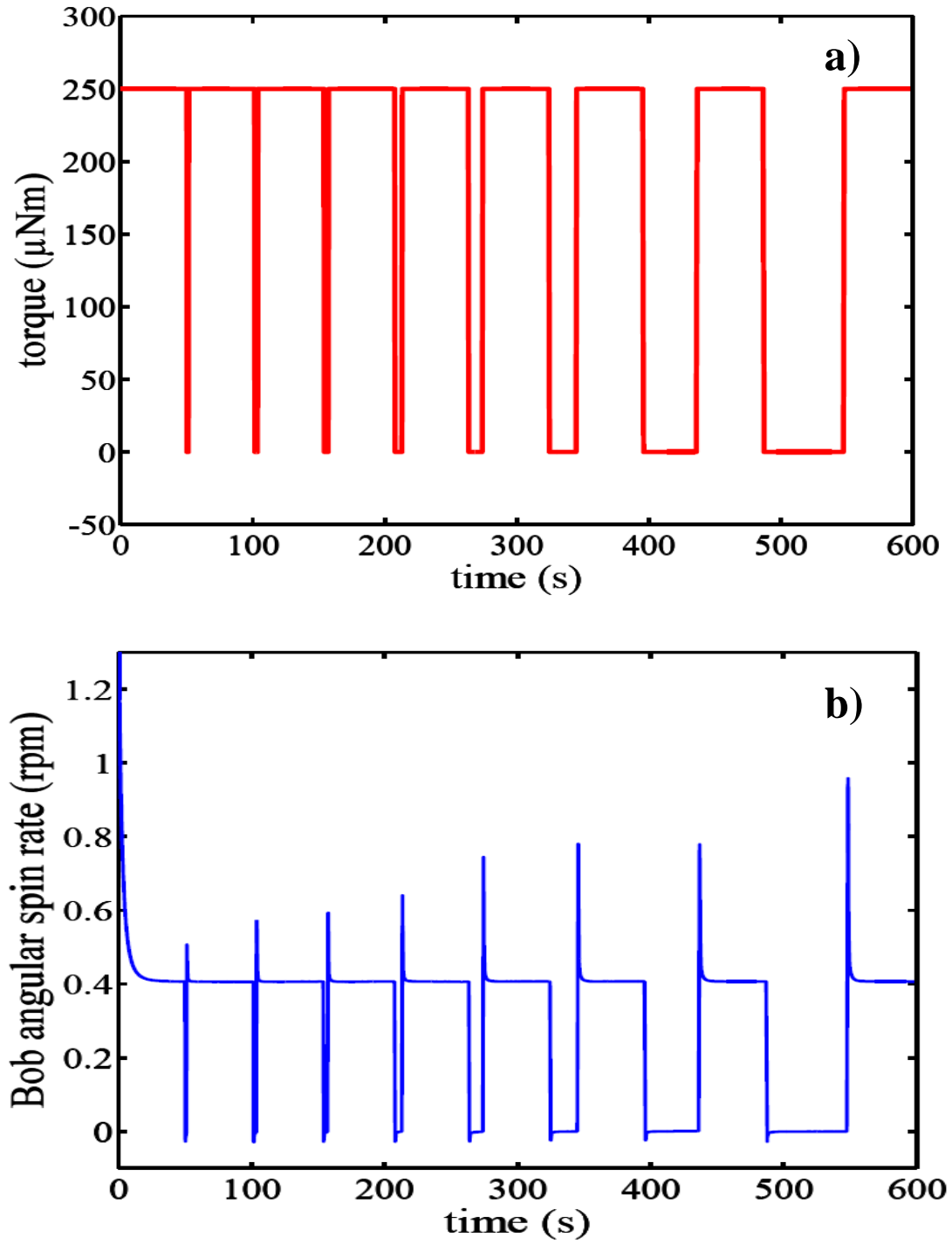


Figure 14

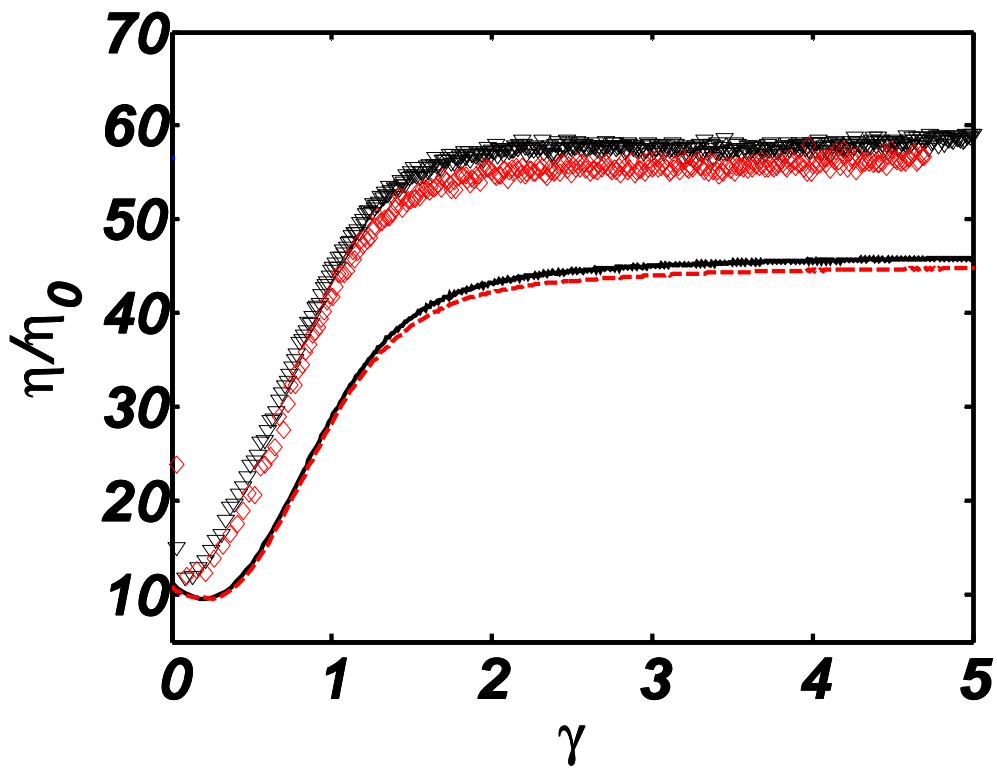


Figure 15

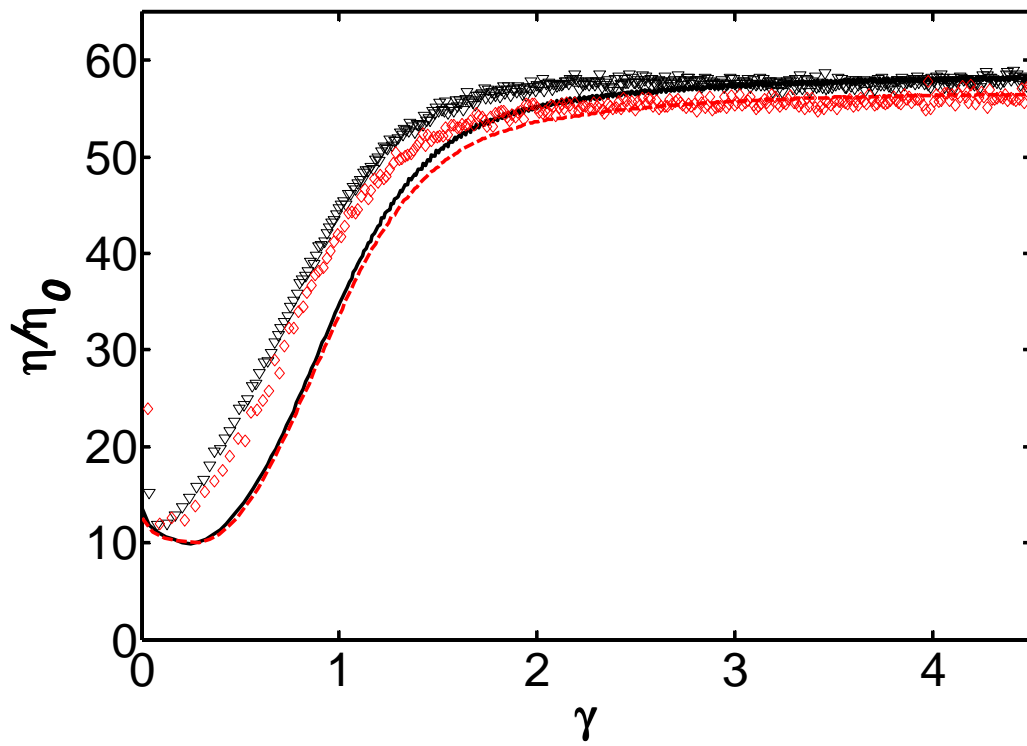


Figure 16

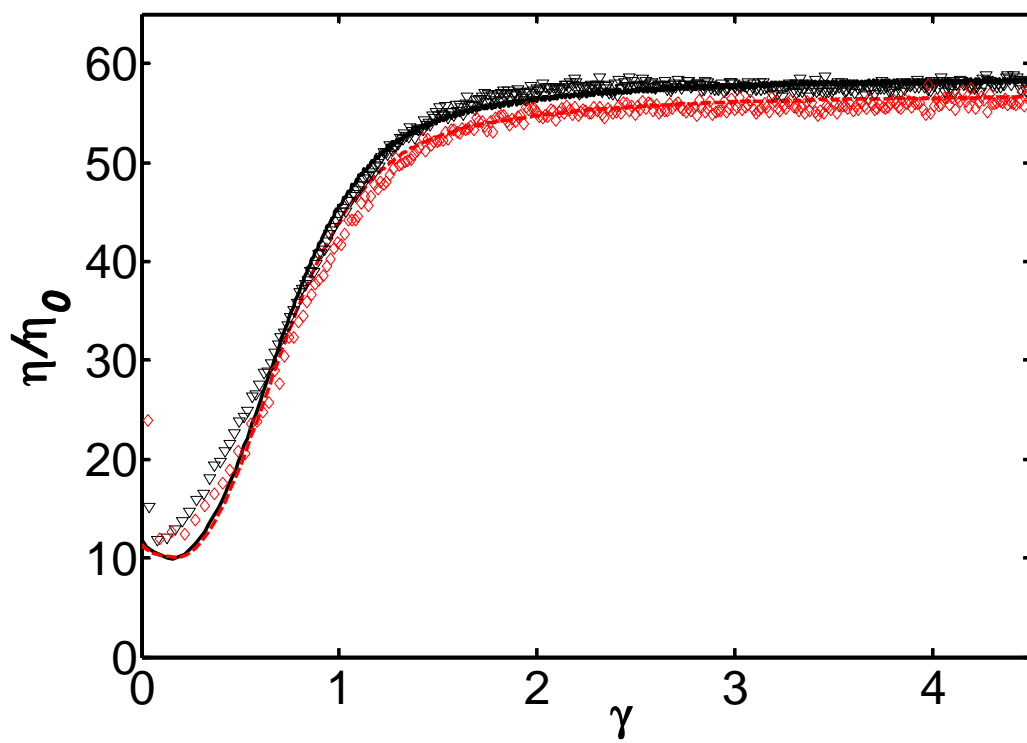


Figure 17

Experimental Signature of the Pair  
Trajectories of Rough Spheres in the  
Shear-Induced Microstructure in  
Noncolloidal Suspensions

---



## Experimental Signature of the Pair-Trajectories of Rough Spheres in the Shear-Induced Microstructure in Non-Colloidal Suspensions

Frédéric Blanc, François Peters, and Elisabeth Lemaire  
CNRS, Université de Nice, LPMC-UMR 6622, 06108 Nice Cedex 2, France  
(Dated: November 28, 2011)

The shear-induced microstructure in a semi-dilute non-colloidal suspension is studied. A high resolution Pair Distribution Function in the plane of shear is experimentally determined. It is shown to be anisotropic, with a depleted direction close to the velocity axis in the recession quadrant. The influence of roughness on the interaction between particles is quantitatively evidenced. The experimental results compare well with a model from particle pair trajectories.

The influence of the particle interactions on the rheology of non-Brownian suspensions, such as normal stress differences and shear-induced migration, and their link with the shear-induced microstructure, are questions of central interest and remain an experimental challenge. A quantitative measurement of the microstructure is provided by the Pair Distribution Function (PDF). Since the pioneering work of Bossis and Brady[1], in Stokesian Dynamics, the PDF of an unbounded suspension of interacting spheres undergoing a simple shear flow is known to have an angular dependence. In a semi-dilute suspension, experimental [2], numerical [3, 4] and analytical [5] studies have shown the existence of a particle depleted area along the velocity direction. In their numerical work, Drazer et al. [4] showed that, besides this anisotropy, a fore-aft asymmetry appears in the presence of strong enough non-hydrodynamic forces acting between the spheres. Repulsion forces between particles eliminate closed orbit trajectories and the particles that were close from each other in the approach quadrant are redistributed in the recession quadrant, leading downstream to a tilt of the depleted area away from the velocity direction. Though only a few experimental measurements of PDF have been performed in non-Brownian suspensions [6, 7], the depleted area close to the velocity direction in a simple shear flow has already been accurately studied by Rampall et al. in semi-dilute suspensions ( $\phi=0.10-0.15$ ). They explain their experimental results by a model that computes the PDF from the trajectories of two colliding rough spheres. Besides the depleted area, their theoretical PDF shows fore-aft asymmetry. These predictions are in qualitative agreement with their experimental results. However these early measurements suffer from a quite low resolution that precludes a fully quantitative comparison.

In this letter, we report the measurement of a high resolution PDF in a semi-dilute sheared suspension. The results are in qualitative agreement with the works mentioned above but demonstrate a new property: in the recession quadrant, right above the depleted zone, a tail-like high particle concentration zone is apparent, that is not present in the approach quadrant. A trajectory-based model shows that this tail is a direct signature

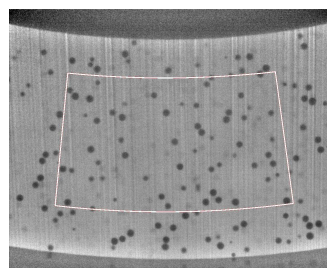


FIG. 1: Typical image.  $\phi = 5\%$ . Only the origin particles in the white box are considered.

of the pair-trajectories of rough spheres in the shear-induced microstructure.

This has been observed with a suspension of PMMA particles (Arkema BS510) dispersed in a Newtonian liquid ( $\eta_0 = 0.85$  Pa.s) designed by Cargille Laboratories (Immersion liquid Code 11295101160) in order to match both the density ( $d=1180\text{kg.m}^{-3}$ ) and the refractive index ( $n=1.49$ ) of the particles. To improve the index matching, the temperature is controlled ( $T = 37^\circ\text{C}$ ). The particles are sieved to reduce the initially large size distribution. The final size distribution is determined by direct microscope observation over several hundreds of particles. The particles diameter is  $2a=170 \pm 12\mu\text{m}$ . The suspension is sheared in a cylindrical Couette cell,  $R_i=19\text{mm}$  in inner radius,  $R_o=24$  mm in outer radius and 60 mm in height. The whole apparatus design is precisely described in [8, 9]. Some fluorescent dye (Nile Blue A) is dissolved in the host liquid and a thin laser sheet (635 nm, 30  $\mu\text{m}$  in thickness), perpendicular to the cell axis, illuminates the suspension. The position of the laser sheet, 11 mm above the bottom of the cell, allows to neglect the bottom end effect on the flow [8]. A CCD camera positioned under the cell and equipped with a long pass filter (650nm) images the interstitial fluid, showing the particles in negative (Fig.1).

The particle positions and radii are detected using an open source Matlab procedure based on the Circular Hough Transform [10, 11]. The position of the particle

centers is determined with a subpixel resolution. For the sake of comparison, the mean particle radius  $a=85\mu\text{m}$  corresponds to 14.7 pixels on the frame. The inner cylinder angular velocity is controlled by a rheometer (Mars II, Thermofisher) and set to the value  $\Omega = 1$  rpm. The Reynolds number  $Re = (a^2 d / \eta_0) \Omega R_i / (R_o - R_i) \approx 4.10^{-6}$  and the Péclet number  $Pe = (\eta_0 a^3 / k_B T) \Omega R_i / (R_o - R_i) \approx 6.10^7$  allow to neglect inertia and Brownian motion. The shear rate  $\dot{\gamma} = 2\Omega R_i^2 R_o^2 / ((R_o^2 - R_i^2) R^2)$  depends on the distance to the cylinders center  $R$ , and its variation across the gap is approximately 50%. This is not a problem however, since at low concentration, the non-brownian suspension rheology does not depend on the shear rate.

For each frame, a 2D PDF is built in the following way. First, for each particle pair, the relative position vector of the pair in the local flow direction frame of particle 1 is determined (see Fig.2(a)). The plane of the particles relative position  $\vec{r}_{12}(\rho, \theta)$  is evenly sampled ( $\Delta\rho=1$  pixel,  $\Delta\theta = 2\pi/80$  rad), and the number of particle pairs (1,2) corresponding to a particular sample  $N(\rho, \theta)$  is normalized by the total number of origin particles  $N_1$ , by the sample surface, and by the mean surface density of particles  $n_{0S}$ .

$$g(\rho, \theta) = \frac{1}{n_{0S}} \frac{N(\rho, \theta)}{N_1 \rho \Delta\rho \Delta\theta} \quad (1)$$

The PDF is then averaged over all images.  $g(\rho, \theta)$  is thus a surface distribution function, that is related to the real 3D PDF through the integration over an interval  $[-2\Delta z_{max}, 2\Delta z_{max}]$  in the  $z$  direction, as explained in [2] and shown in Fig.2(b). To reduce this interval, an histogram of the apparent radii of the detected particles is built, and only particles greater than or equal to 13 pixels ( $0.88a$ ) are taken into account. From this, we evaluate  $\Delta z_{max}$  to approximately  $0.5a$  (Fig.2). To avoid frame boundary effects on the large  $\rho$  limit of  $g(\rho, \theta)$ , all origin particles (1) outside a central area are rejected (Fig.1). The distance of the box edges to the frame edges is larger than  $11a$ . In addition, in order to reduce the hydrodynamic wall effects, no particle (2) closer than an arbitrary distance of  $3a$  to the inner or outer cylinder is considered. Thus, the PDF should not suffer any frame boundary induced spurious decrease for interparticle distances smaller than  $8a$ .

We turn now to the PDF measured for a  $\phi = 5\%$  suspension. 50000 frames are recorded at the rate 0.33 fps during more than 41 hours. We have checked that the PDF computed using the frames 1 to 10000 was not different from the PDF shown here, except for statistical noise, suggesting that any transient state can be neglected. Actually, we evaluate the transient time to the time necessary to break the closed orbits, i.e. the collision time  $1/\dot{\gamma} \approx 3s$  that is much smaller than the experiment duration. Fig. 3 displays the measured PDF. As already shown by Rampall et al. [2], the PDF is anisotropic, with a depleted area in the approximate di-

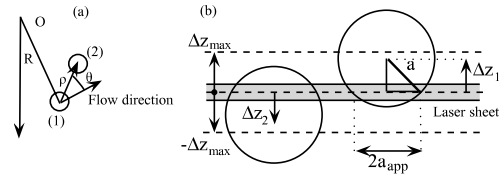


FIG. 2: (a) Pair position vector relative to the local azimuthal flow direction (b)  $a_{app}$  is the apparent radius of the particle.

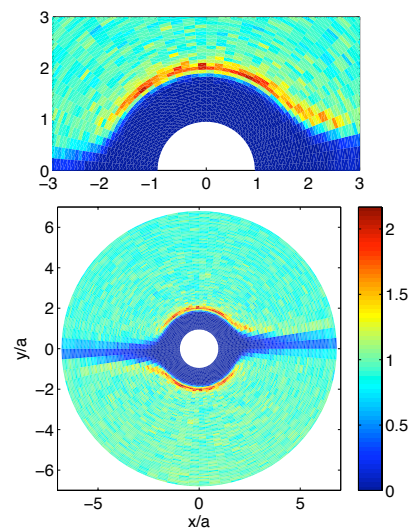


FIG. 3: Pair distribution function in the plane  $(\vec{v}, \vec{v})$ .  $\phi = 5\%$ . The approach quadrants are defined by  $xy < 0$ . Up: magnification of the central region.

rection of the flow velocity. To be specific, as shown in Fig.4, the depleted direction is situated around the angle  $\theta \approx 6^\circ$  in the recession quadrant. This slight tilt angle away from the velocity axis suggests some particle roughness. Away from this depleted direction, at large distance from the origin, the PDF is quite isotropic, with a value close to 1, as expected from the normalization in Eq.1. We note in passing that any strong influence of the walls or of a possible concentration gradient, that would destroy this symmetry, can be ruled out. Another classical property is the large increase of the PDF near the surface  $\rho=2a$ . Moreover, thanks to the large number of frames that leads to a high-resolution PDF, we observe for the first time a tail-like high particle concentration zone in the recession quadrant, that is not present in the approach quadrant.

This high concentration tail clearly recalls the relative trajectory of two rough particles in a simple shear flow (Fig.5). As we will show in the following, this tail allows



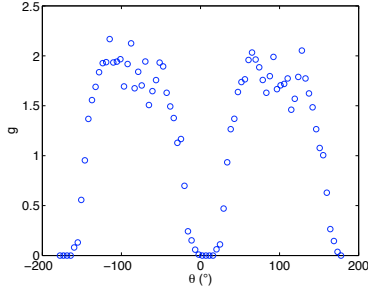


FIG. 4: PDF averaged over the  $\rho$ -interval  $[1.97a, 2.04a]$ . The approach quadrant is  $\theta \in [90^\circ, 180^\circ]$ .

a good estimation of the particles roughness. Indeed, such roughness-modified trajectories have already been used to compute the shear-induced diffusivity in a dilute suspension [12]. In their paper, a roughness length  $\epsilon a$  is defined. When the distance between the particles equals  $(2+\epsilon)a$ , the relative radial velocity is cancelled, preventing the particles to get closer from each other. This results in a break of the fore-aft symmetry, the spheres separating on streamlines further apart than on their approach (Fig.5). Following the idea of Rampall et al. [2], we use the roughness-modified trajectories to compute the PDF. For an introductory purpose, we recall here the classical isotropic expression obtained by Batchelor and Green for the PDF from the motion of two smooth particles in an ambient linear flow [13, 14].

$$g_{BG}(r) = \frac{1}{1-A(r)} \exp\left(\int_r^\infty \frac{3B(s)-A(s)}{s(1-A(s))} ds\right) \quad (2)$$

where A and B are mobility functions that depend only on the interparticle distance r, and whose expressions can be found in [12]. Eq.(2) applies everywhere a trajectory comes from infinity. In a simple shear flow however, there exists an infinite region of closed trajectories in which it is impossible to predict the PDF values. In the plane of shear, the particles that undergo such closed orbits approach each other at a distance smaller than approximately  $2.00004 a$  [12, 15]. Following Rampall et al. [2], and in agreement with the numerical work of Drazer et al. [3], we suppose that, owing to the roughness that prevents particles to come too close to each other, the bound pairs are eliminated. Thus, only the trajectories from infinity will be taken into account.

We use the expression of the mobility functions A(r) and B(r) given in [12] to compute the relative velocity  $\vec{V}$  of two particles in a simple shear flow  $\vec{V}_\infty = \dot{\gamma}y \vec{e}_x$ , together with their relative trajectory. A(r) is set to 1 when contact occurs at  $r=(2+\epsilon)a$ . The integration scheme, namely a variable order Adams-Bashforth-Moulton predictor-corrector solver, was tested as in [12]

for  $\epsilon=0$  and provided the same results. Fig.5 displays trajectories in the plane of shear for different values of the roughness length. For a given value of  $\epsilon$ , all trajectories that drive the particles in contact concentrate downstream on a single trajectory. Thus, downstream, no particle can locate between the x-axis and this trajectory. We note that the displacement of the trajectories depends strongly on  $\epsilon$ . To determine the PDF, we com-

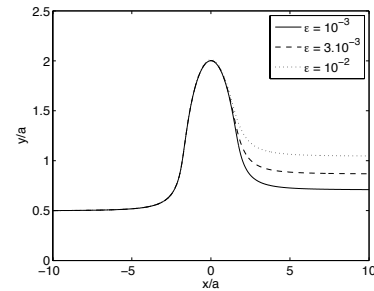


FIG. 5: Trajectory from the point  $x/a=-10, y/a=0.5, z/a=0$  for different values of the roughness  $\epsilon a$

pute the trajectories from evenly spaced origins in the plane ( $x_0=-10a$ ), with a sample time  $\Delta t=0.01/\dot{\gamma}$ . The set of trajectories forms a distribution of particle positions  $\vec{r}$  in the probability space, and each point has a velocity  $\vec{V}$ . Since the number of particles is conserved, this distribution is a discrete form of a function  $p(\vec{r})$  that obeys Eq.3:

$$\frac{\partial p}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (p\vec{V}) = \vec{\nabla} \cdot (p\vec{V}) = 0 \quad (3)$$

We recall [3, 14] here that the PDF  $g(\vec{r})$  is related to the conditional probability  $P(\vec{r}|\vec{r}_0=0)$  of finding a sphere with its center at  $\vec{r}$  given that there is a sphere with its center at  $\vec{r}_0=0$  and the bulk density of particles  $n_0$  through the equation  $g(\vec{r})=P(\vec{r}|\vec{r}_0=0)/n_0$ . Since  $P(\vec{r}|\vec{r}_0=0)$  obeys Eq.3 too [14], it is sufficient to impose the limit  $p \rightarrow 1$  as  $r \rightarrow \infty$  to set  $p(\vec{r})=g(\vec{r})$ . To this purpose, each trajectory is weighted by the inverse of the density in the plane  $x=x_0$ , namely  $L_y L_z V_x(x_0) \Delta t$ , where  $L_y$  and  $L_z$  are the distances between the trajectories origins in that plane along the directions y and z. From this set of points, we compute the relevant 2D PDF that could be compared to our experimental results. The region of interest is defined by  $z \in [-2\Delta z_{max}, 2\Delta z_{max}]$ ,  $\rho = \sqrt{x^2 + y^2} \in [2a, R_{max}]$  where we chose  $R_{max}=4a$ . This region is sampled in polar coordinates with the sampling periods  $\Delta\rho=a/15$ ,  $\Delta\theta=\pi/40$ , and the number of points in each cell divided by its volume  $4\Delta z_{max} \Delta(\rho^2)/2 \Delta\theta$  gives the sought PDF.

We restrict the plane ( $x=x_0=-10a$ ) of trajectory origins outside the closed orbits region. In order the PDF to be smooth enough, the value of the sampling period in

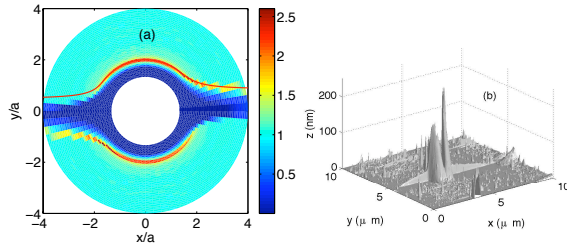


FIG. 6: (a) PDF from particle trajectories. The roughness is  $\epsilon=3.10^{-3}$ . Red line: a trajectory in the plane of shear for which contact occurs. (b) AFM image of the particle surface.

the plane  $x = x_0$  have been chosen:  $L_z/(2\Delta z_{max})=1/20$ ,  $L_y/a=1/50$ .  $\Delta z_{max}=0.5a$  has been manually adjusted to fit the experimental data at best. We note that this value corresponds also to the estimation of  $\Delta z_{max}$  from the distribution of particle radii (Fig.2(b)). We have checked that this method yield the isotropic distribution of Eq.2 in the case of a pure strain flow. Concerning the simple shear flow, we obtain the PDF in Fig.6.a for a roughness  $\epsilon a=3.10^{-3}a=255\text{nm}$ . A trajectory in the plane of shear for which contact occurs is also shown for the same roughness. It is centered on the tail in the recession quadrant. We have checked that away from the depleted area and the tail, the PDF is identical to the isotropic  $g_{BG}$  of Eq.2, in agreement with [3]. Fig.7.a displays the experimental and computed PDF  $g(\rho, \theta)$  as a function of  $\theta$  for two values of the distance  $\rho$ . The agreement is very good, especially concerning the position of the tail that appears clearly on the experimental curve. The radial profiles can be compared on Fig.7.b for three different angles. The model describes accurately the experimental PDF, both in the direction of the velocity gradient ( $85.5^\circ < \theta < 90^\circ$ ) and near the depleted direction ( $18^\circ < \theta < 22.5^\circ$ ). However, in the depleted direction ( $0^\circ < \theta < 4.5^\circ$ ), the model predicts the total lack of particles in contrast to the experimental results. As already mentioned in [2], this is probably the consequence of multibody effects. Finally, we have performed surface roughness measurements on the particles using an Atomic Force Microscope. The main roughness height is small ( $\approx 20\text{nm}$ ), with isolated bumps, approximately 200 nm in height, as shown on Fig.6.b. Those bumps are frequent, even if we did not perform any extensive statistical study. These direct measurements are fully consistent with the experimental PDF.

In conclusion, we have measured a high resolution PDF in a sheared dilute suspension. Its fore-aft asymmetry is quantitatively explained by the particle roughness as modeled by a minimum approach distance between particles  $\epsilon a$  [12], which can be determined with reasonable accuracy. Some experiments are currently performed on

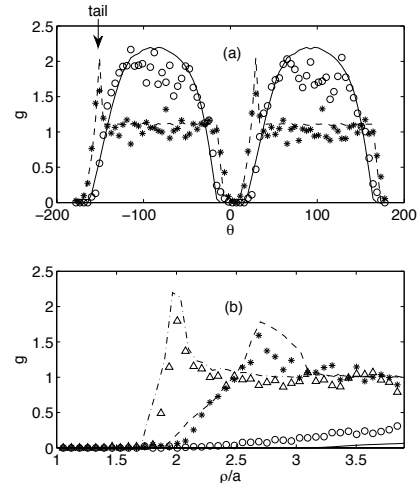


FIG. 7: Experimental (symbols) and computed (lines) PDF. (a)  $g(\rho, \theta)$  vs  $\theta$  (o)  $1.97 < \rho < 2.04$ ; (\*)  $2.31 < \rho < 2.38$ ; (-)  $1.93 < \rho < 2.00$ ; (- -)  $2.33 < \rho < 2.40$ ; (b)  $g(\rho, \theta)$  vs  $\rho/a$  (o)  $0 < \theta < 4.5^\circ$ ; (\*)  $18^\circ < \theta < 22.5^\circ$ ; ( $\Delta$ )  $85.5^\circ < \theta < 90^\circ$ ; (-)  $0 < \theta < 4.5^\circ$ ; (- -)  $18^\circ < \theta < 22.5^\circ$ ; (- -)  $85.5^\circ < \theta < 90^\circ$

more concentrated suspensions ( $\phi=0.10-0.55$ ). In the semi-dilute regime, we observe that the tilt angle from the velocity axis hardly depends on the volume fraction. For volume fractions higher than 0.2, the tilt angle increases with the particle concentration, as already reported by Drazer et al.[3]. In addition, the tail turns blurred, partly due to poorer statistics (1000 frames per PDF), but also to increasingly large multibody effects, that modify the pair trajectories.

We are grateful to L. Lobry for fruitful discussions, and A. Zenerino for the AFM images. This work was supported by the ANR (Program No. ANR-08-BLAN-0048-CSD 2).

- [1] G. Bossis and J. Brady, J. Chem. Phys. **80**, 5141 (1984).
- [2] I. Rampall, J. Smart, and D. Leighton, J. Fluid Mech. **339**, 1 (1997).
- [3] G. Drazer, J. Koplik, B. Khusid, and A. Acrivos, J. Fluid Mech. **511**, 237 (2004).
- [4] G. Drazer, J. Koplik, B. Khusid, and A. Acrivos, Journal of Fluid Mechanics **460**, 307 (2002).
- [5] H. Wilson and R. Davis, Journal of Fluid Mechanics **421**, 339 (2000).
- [6] D. Husband and F. Gadala-Maria, J. Rheol. **31**, 95 (1987).
- [7] F. Parsi and F. Gadala-Maria, J. Rheol. **31**, 725 (1987).
- [8] F. Blanc, F. Peters, and E. Lemaire, Appl. Rheol. **11**, 23735 (2011).
- [9] F. Blanc, F. Peters, and E. Lemaire, J. Rheol. **55**, 835

## Annexe F. Experimental Signature of the Pair Trajectories of Rough Spheres 248 in the Shear-Induced Microstructure in Noncolloidal Suspensions

---

5

- (2011).
- [10] T. Peng, <http://www.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/9168>.
- [11] C. Kimme, D. Ballard, and J. Sklansky, *Commun. ACM* **18**, 120 (1975).
- [12] F. Da Cunha and E. Hinch, *J. Fluid Mech.* **309**, 211 (1996).
- [13] G. Batchelor and J. Green, *J. Fluid Mech.* **56**, 375 (1972).
- [14] G. K. Batchelor and J. T. Green, *J. Fluid Mech.* **56**, 401 (1972).
- [15] P. Arp and S. Mason, *J. Colloid Interf. Sci.* **61**, 21 (1977).

# Bibliographie

- [Acrivos *et al.* 1994] A Acrivos, X Fan et R Mauri. *On the measurement of the relative viscosity of suspensions*. Journal of Rheology, vol. 38, page 1285, 1994.
- [Adrian 1991] R Adrian. *Particle-imaging techniques for experimental fluid mechanics*. Annual Review of Fluid Mechanics, Jan 1991.
- [Arp & Mason 1977] PA Arp et SG Mason. *The kinetics of flowing dispersions : VIII. Doublets of rigid spheres (theoretical)*. Journal of colloid and interface science, vol. 61, no. 1, pages 21–43, 1977.
- [Assinck 1995] FH Assinck. *An introduction to suspensions*. 1995.
- [Batchelor & Green 1972a] GK Batchelor et JT Green. *The determination of the bulk stress in a suspension of spherical particles to order  $c_2$* . Journal of Fluid Mechanics, vol. 56, no. 03, pages 401–427, 1972.
- [Batchelor & Green 1972b] GK Batchelor et JT Green. *The hydrodynamic interaction of two small freely-moving spheres in a linear flow field*. J. Fluid Mech, vol. 56, no. 2, pages 375–400, 1972.
- [Batchelor 1970] GK Batchelor. *The stress system in a suspension of force-free particles*. J. Fluid Mech, vol. 41, no. 3, pages 545–570, 1970.
- [Blanc *et al.* 2011a] F Blanc, F Peters et E Lemaire. *Experimental Signature of the Pair-Trajectories of Rough Spheres in the Shear-Induced Microstructure in Non-Colloidal Suspensions*. Physical Review Letters, vol. 107, page 208302, Nov 2011.
- [Blanc *et al.* 2011b] F Blanc, F Peters et E Lemaire. *Local transient rheological behavior of concentrated suspensions*. Journal of Rheology, vol. 55, page 835, 2011.
- [Blanc *et al.* 2011c] F Blanc, F Peters et E Lemaire. *Particle Image Velocimetry in concentrated suspensions : Application to local rheometry*. Applied Rheology, vol. 21, page 23735, 2011.
- [Bossis & Brady 1984] G Bossis et J.F Brady. *Dynamic simulation of sheared suspensions. I. General method*. The Journal of Chemical Physics, vol. 80, page 5141, 1984.
- [Boyer *et al.* 2011] F Boyer, O Pouliquen et É Guazelli. *Dense suspensions in rotating-rod flows : normal stresses and particle migration*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 686, pages 5–25, Aug 2011.
- [Brady & Morris 1997] J.F Brady et J.F Morris. *Microstructure of strongly sheared suspensions and its impact on rheology and diffusion*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 348, pages 103–139, 1997.

- [Bricker & Butler 2007] J.M Bricker et J.E Butler. *Correlation between stresses and microstructure in concentrated suspensions of non-Brownian spheres subject to unsteady shear flows*. Journal of Rheology, vol. 51, page 735, 2007.
- [Cariou *et al.* 1986] J.M Cariou, J Dugas, L Martin et P Michel. *Refractive-index variations with temperature of PMMA and polycarbonate*. Applied optics, vol. 25, no. 3, pages 334–336, 1986.
- [Chow *et al.* 1994] A.W Chow, S.W Sinton, J.H Iwamiya et T.S Stephens. *Shear-induced particle migration in Couette and parallel-plate viscometers : NMR imaging and stress measurements*. Physics of Fluids, vol. 6, page 2561, 1994.
- [Christiansen 1884] C Christiansen. *Untersuchungen über die optischen Eigenschaften von fein vertheilten Körpern*. Annalen der Physik, Jan 1884.
- [Couarraze & Grossiord 1983] Guy Couarraze et J L. Grossiord. *Initiation à la rhéologie*. page 219, Jan 1983.
- [Couturier *et al.* 2011] É Couturier, F Boyer, O Pouliquen et É Guazelli. *Suspensions in a tilted trough : second normal stress difference*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 686, pages 26–39, Sep 2011.
- [Crocker & Grier 1996] J.C Crocker et D.G Grier. *Methods of digital video microscopy for colloidal studies*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 179, no. 1, pages 298–310, 1996.
- [Da Cunha & Hinch 1996] F Da Cunha et EJ Hinch. *Shear-induced dispersion in a dilute suspension of rough spheres*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 309, no. 1, pages 211–223, 1996.
- [Dbouk 2011] T Dbouk. *Rheology of concentrated suspensions and shear-induced migration*. PhD thesis, 2011.
- [Drazer *et al.* 2002] G Drazer, J Koplik, B Khusid et A Acrivos. *Deterministic and stochastic behaviour of non-Brownian spheres in sheared suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 460, pages 307–335, 2002.
- [Drazer *et al.* 2004] G Drazer, J Koplik, B Khusid et A Acrivos. *Microstructure and velocity fluctuations in sheared suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 511, pages 237–263, 2004.
- [Einstein 1906] A. Einstein. *Eine neue bestimmung der moleküldimensionen*. Annalen der Physik, vol. 324, no. 2, pages 289–306, 1906.
- [Foss & Brady 2000] D.R Foss et J.F Brady. *Structure, diffusion and rheology of Brownian suspensions by Stokesian dynamics simulation*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 407, no. -1, pages 167–200, 2000.

- [Gadala-Maria & Acrivos 1980] F Gadala-Maria et A Acrivos. *Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres*. Journal of Rheology, vol. 24, page 799, 1980.
- [Gao *et al.* 2010] C Gao, S Kulkarni et J Morris. *Direct investigation of anisotropic suspension structure in pressure-driven flow*. Physical Review E, Jan 2010.
- [Guyon *et al.* 2001] Étienne Guyon, Jean Pierre Hulin et Luc Petit. *Hydrodynamique physique*. page 674, Jan 2001.
- [Hart & Duda 1972] P.E Hart et R.O Duda. *Use of the Hough transformation to detect lines and curves in pictures*. Comm. ACM, vol. 15, no. 1, pages 11–15, 1972.
- [Huang *et al.* 2005] N Huang, G Ovarlez, F Bertrand, S Rodts, P Coussot et D Bonn. *Flow of wet granular materials*. Physical Review Letters, vol. 94, no. 2, page 28301, 2005.
- [Husband & Gadala-Maria 1987] DM Husband et F Gadala-Maria. *Anisotropic particle distribution in dilute suspensions of solid spheres in cylindrical Couette flow*. Journal of Rheology, vol. 31, page 95, 1987.
- [Jana *et al.* 1995] SC Jana, B Kapoor et A Acrivos. *Apparent wall slip velocity coefficients in concentrated suspensions of noncolloidal particles*. Journal of Rheology, vol. 39, page 1123, 1995.
- [Keane & Adrian 1992] RD Keane et R Adrian. *Theory of cross-correlation analysis of PIV images*. Applied Scientific Research, Jan 1992.
- [Kim & Karrila 1991] S Kim et S J Karrila. *Microhydrodynamics : principles and selected applications*. Butterworth-Heinemann, Jan 1991.
- [Kimme *et al.* 1975] C Kimme, D Ballard et J Sklansky. *Finding circles by an array of accumulators*. Communications of the ACM, vol. 18, no. 2, pages 120–122, 1975.
- [Kolli *et al.* 2002] VG Kolli, EJ Pollauf et F Gadala-Maria. *Transient normal stress response in a concentrated suspension of spherical particles*. Journal of Rheology, vol. 46, page 321, 2002.
- [Krieger & Dougherty 1959] I Krieger et T J Dougherty. *A mechanism for non Newtonian flow in suspensions of rigid spheres*. Trans. Soc. Rheol., vol. 3, pages 137–152, 1959.
- [Krieger 1963] I Krieger. *A dimensional approach to colloid rheology*. Journal of Rheology, Jan 1963.
- [Leighton & Acrivos 1987] D Leighton et A Acrivos. *The shear-induced migration of particles in concentrated suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 181, no. -1, pages 415–439, 1987.
- [Lenoble *et al.* 2005] M Lenoble, P Snabre et B Pouligny. *The flow of a very concentrated slurry in a parallel-plate device : Influence of gravity*. Physics of Fluids, vol. 17, page 073303, 2005. marquage optique des particules de PMMA.

- [Maron & Pierce 1956] S.H Maron et P.E Pierce. *Application of Ree-Eyring generalized flow theory to suspensions of spherical particles*. Journal of colloid science, vol. 11, no. 1, pages 80–95, 1956.
- [Meunier & Leweke 2003] P Meunier et T Leweke. *Analysis and treatment of errors due to high velocity gradients in particle image velocimetry*. Experiments in fluids, vol. 35, no. 5, pages 408–421, 2003.
- [Mills & Snabre 2009] P Mills et P Snabre. *Apparent viscosity and particle pressure of a concentrated suspension of non-Brownian hard spheres near the jamming transition*. The European Physical Journal E : Soft Matter and Biological Physics, vol. 30, no. 3, pages 309–316, 2009.
- [Morris & Boulay 1999] J.F Morris et F Boulay. *Curvilinear flows of noncolloidal suspensions : The role of normal stresses*. Journal of Rheology, vol. 43, page 1213, 1999.
- [Morris & Katyal 2002] J.F Morris et B Katyal. *Microstructure from simulated Brownian suspension flows at large shear rate*. Physics of Fluids, vol. 14, page 1920, 2002.
- [Morris 2009] J.F Morris. *A review of microstructure in concentrated suspensions and its implications for rheology and bulk flow*. Rheologica acta, vol. 48, no. 8, pages 909–923, 2009.
- [Narumi *et al.* 2002] T Narumi, H See, Y Honma, T Hasegawa, T Takahashi et N Phan-Thien. *Transient response of concentrated suspensions after shear reversal*. Journal of Rheology, vol. 46, page 295, 2002.
- [Ovarlez *et al.* 2006] G Ovarlez, F Bertrand et S Rodts. *Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging*. Journal of Rheology, vol. 50, page 259, 2006.
- [Papir & Krieger 1970] Y.S Papir et I.M Krieger. *Rheological studies on dispersions of uniform colloidal spheres : II. Dispersions in nonaqueous media*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 34, no. 1, pages 126–130, 1970.
- [Parsi & Gadala-Maria 1987] F Parsi et F Gadala-Maria. *Fore-and-aft asymmetry in a concentrated suspension of solid spheres*. Journal of Rheology(New York), vol. 31, no. 8, pages 725–32, 1987.
- [Phillips *et al.* 1992] R.J Phillips, R.C Armstrong, R.A Brown, A.L Graham et J.R Abbott. *A constitutive equation for concentrated suspensions that accounts for shear-induced particle migration*. Physics of Fluids A : Fluid Dynamics, vol. 4, page 30, 1992.
- [Pomeau 1983] Y Pomeau. *Sur un probleme de stereologie*. Annales de l'IHP, vol. 38, no. 1, pages 75–80, 1983.

- [Rampall *et al.* 1997] I Rampall, JR Smart et DT Leighton. *The influence of surface roughness on the particle-pair distribution function of dilute suspensions of non-colloidal spheres in simple shear flow*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 339, pages 1–24, 1997.
- [Shapley *et al.* 2002] N.C Shapley, R.C Armstrong et R.A Brown. *Laser Doppler velocimetry measurements of particle velocity fluctuations in a concentrated suspension*. Journal of Rheology, vol. 46, page 241, 2002.
- [Shapley *et al.* 2004] N.C Shapley, R.A Brown et R.C Armstrong. *Evaluation of particle migration models based on laser Doppler velocimetry measurements in concentrated suspensions*. Journal of Rheology, vol. 48, page 255, 2004.
- [Shikata & Pearson 1994] T Shikata et D.S Pearson. *Viscoelastic behavior of concentrated spherical suspensions*. Journal of Rheology, vol. 38, page 601, 1994.
- [Sierou & Brady 2001] A Sierou et J.F Brady. *Accelerated Stokesian dynamics simulations*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 448, pages 115–146, 2001.
- [Sierou & Brady 2002] A Sierou et JF Brady. *Rheology and microstructure in concentrated noncolloidal suspensions*. Journal of Rheology, vol. 46, page 1031, 2002.
- [Sierou & Brady 2004] A Sierou et J.F Brady. *Shear-induced self-diffusion in non-colloidal suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 506, pages 285–314, 2004.
- [Singh & Nott 2003] Anugrah Singh et Prabhu R Nott. *Experimental measurements of the normal stresses in sheared Stokesian suspensions*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 490, pages 293–320, Sep 2003.
- [Stickel & Powell 2005] J Stickel et R Powell. *Fluid mechanics and rheology of dense suspensions*. Annual Review of Fluid Mechanics, vol. 37, pages 129–149, Jan 2005.
- [Tanner 1970] RI Tanner. *Some methods for estimating the normal stress functions in viscometric flows*. Journal of Rheology, vol. 14, page 483, 1970.
- [Van der Werff & De Kruif 1989] JC Van der Werff et CG De Kruif. *Hard-sphere colloidal dispersions : the scaling of rheological properties with particle size, volume fraction, and shear rate*. Journal of Rheology, vol. 33, page 421, 1989.
- [Vand 1948] V Vand. *Viscosity of solutions and suspensions. I. Theory*. The Journal of Physical Chemistry, vol. 52, no. 2, pages 277–299, 1948.
- [Wiederseiner *et al.* 2010] S Wiederseiner, N Andreini, G Epely-Chauvin et C Ancey. *Refractive-index and density matching in concentrated particle suspensions : a review*. Experiments in fluids, pages 1–24, 2010.
- [Wiederseiner 2010] S Wiederseiner. *Rheophysics of Concentrated Particle Suspensions in a Couette Cell using a Refractive Index Matching Technique*. PhD thesis, 2010.



- [Wildemuth & Williams 1984] CR Wildemuth et MC Williams. *Viscosity of suspensions modeled with a shear-dependent maximum packing fraction*. *Rheologica acta*, vol. 23, no. 6, pages 627–635, 1984.
- [Wilson & Davis 2000] H.J Wilson et R.H Davis. *The viscosity of a dilute suspension of rough spheres*. *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 421, pages 339–367, 2000.
- [Wilson & Davis 2002] H.J Wilson et R.H Davis. *Shear stress of a monolayer of rough spheres*. *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 452, pages 425–441, 2002.
- [Yeo & Maxey 2010] Kyongmin Yeo et Martin R Maxey. *Dynamics of concentrated suspensions of non-colloidal particles in Couette flow*. *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 649, page 205, Apr 2010.
- [Zarraga *et al.* 2000] I.E Zarraga, D.A Hill et D.T Leighton Jr. *The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in Newtonian fluids*. *Journal of Rheology*, vol. 44, page 185, 2000.