



**HAL**  
open science

# Rhéologie des suspensions de silice concentrées

Chloé Garat

► **To cite this version:**

Chloé Garat. Rhéologie des suspensions de silice concentrées. Matériaux. Université de Bordeaux, 2022. Français. NNT : 2022BORD0110 . tel-03691848

**HAL Id: tel-03691848**

**<https://theses.hal.science/tel-03691848v1>**

Submitted on 9 Jun 2022

**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  
POUR OBTENIR LE GRADE DE  
**DOCTEUR**  
**DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ECOLE DOCTORALE SCIENCES CHIMIQUES

Par **Chloé GARAT**

---

**Rhéologie des suspensions de silice  
concentrées**

---

Sous la direction de : **Guillaume OVARLEZ**

Soutenue le 29 mars 2022

Membres du jury :

Hugues Bodiguel	Professeur	Université de Grenoble	Président du jury
Elisabeth Lemaire	Directrice de Recherche	Université de Nice	Rapporteuse
Annie Colin	Professeur	ESPCI	Examinatrice
Sébastien Kiesgen de Richter	Maître de conférence	Université de Lorraine	Examinateur
Romain Mari	Chargé de Recherche	Université de Grenoble	Examinateur
Guillaume Ovarlez	Directeur de Recherche	Université de Bordeaux	Directeur de thèse





# Remerciements

Il est difficile de résumer et remercier toutes les personnes ayant contribué à la réussite de cette thèse en seulement quelques lignes. Les mots me manqueront probablement mais le coeur est présent. J'espère n'oublier personne et je m'excuse par avance si j'en écarte certains de cette liste non exhaustive.

Je tiens tout à bord à remercier les membres de mon jury de thèse, pour le temps et l'intérêt accordés à mes travaux. En premier, Hugues Bodiguel, le président du jury et rapporteur de la thèse pour sa bonne humeur, son rapport très élogieux et la touche d'humour dont il a fait preuve pendant l'attente interminable du démarrage de la soutenance. Elisabeth Lemaire pour l'attention particulière qu'elle a portée à la lecture du manuscrit et sa bienveillance. Enfin les examinateurs, Romain Mari pour s'être déplacé et sa gentillesse à mon égard au cours de la soutenance, Annie Colin d'avoir suivi ma thèse pendant ces trois ans et ses précieux conseils ayant permis d'approfondir certains résultats. Et pour terminer Sébastien Kiesgen de Richter de m'avoir accueilli chaleureusement dans son équipe à Nancy, pour les agréables discussions et de m'avoir donné la possibilité de réaliser une partie des expériences présentées dans ce manuscrit.

Je souhaite ensuite remercier les directeurs successifs du LOF, Kazuhiko Yokota et Patrick Maestro pour leur accueil et de m'avoir permis d'intégrer ce laboratoire, ô combien agréable. Au-delà d'un simple laboratoire de recherche, il s'agit d'une grande communauté bienveillante et toujours présente pour répondre à nos besoins.

Sans aucun doute, mes remerciements les plus chaleureux vont à Guillaume Ovarlez, mon directeur de thèse. Outre ses connaissances et son expertise scientifique hors pair, c'est une personne d'une extrême gentillesse et sincère. Je réalise la chance que j'ai eu de travailler avec toi, même si tu n'as pas été toujours présent comme tu le dis, les moments où tu l'étais ont largement compensé. Grâce à toi j'ai pu prendre confiance en moi et je t'en suis très reconnaissante. Je n'oublierai pas nos longues réunions de quatre heures à discuter de tout et de rien (surtout de rien), tes super émojis d'encouragement et nos longs moments de solitude devant le rhéomètre à se demander pourquoi ça ne marche pas.

Je remercie également Pierre Lidon d'avoir pris le relais par intermittence quand il le

fallait, merci d'avoir été présent malgré ton emploi du temps chargé. Un remerciement tout particulier à Pierre Guillot, directeur de l'UMR, pour sa présence et son écoute permanente pour nous faciliter la vie au laboratoire (mais aussi pendant le confinement et les longs mois qui ont suivi) et d'être venu me libérer quand j'étais enfermée au labo un vendredi soir..

Je souhaite également remercier les différentes personnes avec qui j'ai pu travailler et échanger au cours de ces trois années et qui ont m'ont accueilli dans leur équipe aux quatre coins de la France. Par ordre chronologique, je remercie l'équipe de Paris : Anh Vu Nguyen et Wilbert Smit, l'équipe de Lyon : Sébastien Manneville, Thomas Gibaud et Noémie Dagès ainsi que l'équipe de Nancy : Mathieu Jenny et Naïma Gaudel. Merci à Emmanuel Texier du CRPP pour sa patience et son aide pour la conception d'une pièce en PMMA. Et Grégory Hauss de PLACAMAT pour son aide sur les (interminables) expériences de rayon X malheureusement pas aussi fructueuses qu'on l'aurait voulu.

La thèse est avant tout une expérience enrichissante, autant sur le plan professionnel que personnel, où il est possible de faire de très belles rencontres. Ces prochaines lignes sont pour toutes ces personnes que j'ai rencontrées et qui par bien des manières différentes m'ont soutenues et aidées durant toutes ces années.

Un grand merci à tous les Lofeurs avec qui j'ai pu échanger autour de la machine à café, d'une manip ou bien dans les couloirs. La team 5S : Arnaud Bamière mon top 1, Steven Meeker le pire inspecteur 5S (and you know what i mean) et Céleste Odier. Une mention spéciale à Charles Loussert pour ses conseils de vie et son rôle de "papa des doctorants" brillamment assuré, ainsi que Thomas Clérico le lab 2x2.0 toujours présents quand j'ai des soucis de tablettes... Et surtout Gérald Clisson (mon sauveur) pour son aide précieuse tout au long de ma thèse avec mes impressions 3D souvent désastreuses.

Je remercie ensuite tous mes compagnons d'openspace : les anciens Julien Laurens qui m'a initié à la pétanque, Moncef Lehtihet mon mentor sur Matlab et Camille Keita ma copine d'anniversaire et ma psy à ses heures perdues. Les « doctor survivor » : Nicolas Bélécard mon frère de thèse, ensemble du début et presque jusqu'à la fin, Leïla Khacef ma jumelle accro du shopping (team mamies émotives devant un documentaire de serial killer en pilou pilou for ever) et Dharshana Nalatamby ma partenaire de sport qui m'a abandonné en chemin mais toujours présente pour nous faire rire avec sa bonne humeur et son fameux "j'ai une question..." (mais on t'aime quand même) . Et enfin les petits nouveaux, la relève des doctorants : Margaux Zollo et Nizar Ghazouani, et surtout bon courage à vous !

Sans oublier également tout mes copains du labo : Aymerick Le Bris, mister Long Island qui enflamme la piste de danse, Alexandra Farran ma copine de larmes (pas une

pour rattraper l'autre), Cédric Jaffry le breton surfeur qui a fait exploser (littéralement) le compteur d'accident en 2 mois, Simon Collanges le pire manipulateur de Poiseuille à mettre du rose PARTOUT (même sur ma blouse saleté), Victor Sableau, mon number one, Mathieu Gauthier le dernier arrivé toujours là pour donner le sourire, Maewenn Carré la meilleure correspondante avec le plus beau labo et Tiphaine Courtois ma partenaire 5S et tout nos moments partagés en Poiseuille. Mes partenaires/adversaires de pétanque à 16h : Jordy Bonnet le mauvais perdant mais au fond il sait qu'il est pas très fort, Baptiste Pousset alias Grumpy Cat (superbe prénom pour ta fille), Jean Gimenez qui ne s'arrête jamais de parler (d'ailleurs où-sont les poufs?), Céline Guillaume ma véritable concurrente, Roman Koetitz, François Rachet ou Paco pour les intimes.

Je souhaite également remercier tous mes ami(e)s de longue date qui ont su m'apporter confiance et écoute dans les moments difficiles. Les copains de la fac : Elodie, Paul, Arnaud et Benjamin. Les copines du collège présentes depuis plus de dix ans : Marion, Mathilde, Julia et la meilleure : Anouck ma copine de tatoo, la plus belle personne (intérieur et extérieur) de cette planète.

Pour terminer, je voudrais adresser ces derniers mots à tout mes proches et membres de ma famille. Certes, nous ne sommes pas les personnes les plus démonstratives de cette terre mais je tiens tout de même à vous remercier pour votre présence et vos encouragements. Je ne serais pas la personne que je suis aujourd'hui sans vous. Merci à mon papa de m'avoir montré des leçons que je n'aurais jamais apprises toute seule. Merci à Marilyne de s'occuper de lui. Merci à Gilles ou Gilou de prendre soin de ma maman et de lui avoir rendu le sourire et sa joie de vivre. Et pour ton aide précieuse en bricolage évidemment. Un grand merci à ma soeur Charlène, d'avoir eu le droit et le privilège (?) de me supporter depuis plus de vingt-six ans. Ainsi que mon futur beau-frère Yan, qui nous a montré le véritable sens du mot famille. Merci à vous deux pour tout ce que vous avez fait pour moi, je suis extrêmement chanceuse et reconnaissance de vous avoir (et merci d'avoir fait le bébé le plus mignon). Et enfin ma maman, la femme la plus forte que je connaisse et que j'admire le plus, merci pour tes sacrifices et de m'avoir aidé pour absolument tout, depuis que je suis née et jusqu'à aujourd'hui encore. Les mots me manquent, mais je me contenterai de te dire : je t'aime.

*Ce n'est pas grave d'être sensible, c'est ce qui arrive quand on a de la magie dans le coeur.*

# Table des figures

1.1	Les différents régimes d'une suspension de sphères dures en fonction de la fraction volumique $\phi$ . Images issues de Guazzelli et Pouliquen [58] . . . . .	22
1.2	Relation entre la contrainte de cisaillement $\sigma$ et le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ pour plusieurs types de fluides. . . . .	24
1.3	Viscosité apparente $\eta_r$ en fonction de la contrainte appliquée $\tilde{\sigma}$ pour plusieurs fractions solides $\phi$ . Un ajustement de type $\eta_r \sim \tilde{\sigma}^\beta$ est fait. D'après Morris [96]. . . . .	26
1.4	Viscosité relative $\eta_r$ de sphères dures en fonction de la fraction volumique $\phi$ pour différentes sortes de suspensions où $\mu_p$ correspond au coefficient de frottement. Les valeurs sont extraites : d'expériences (symboles colorés), de simulations numériques (symboles noirs) et de modèles empiriques (lignes). Images issues de Guazzelli et Pouliquen [58]. . . . .	29
1.5	Diagramme de phase pour différents systèmes en fonction des trois paramètres clés : la température, la charge et la densité. D'après Liu et Nagel [86]. . . . .	30
1.6	Représentation schématique d'une transition de rhéoépaississement au cours d'une rampe. D'après le site blairlab [2]. . . . .	30
1.7	a) Évolution de la viscosité relative $\eta_r$ en fonction de la fraction volumique $\phi$ pour différents coefficients de friction interparticulaires $\mu_p$ . Les données symbolisées par des triangles sont issues de Dbouk et al. [32] et Zarraga et al. [127]. b) Évaluation des contributions hydrodynamiques (H) et de contacts (C) sur la viscosité relative $\eta_r$ pour deux valeurs de coefficient de friction $\mu_p = 0$ . et $\mu_p = 0.5$ . D'après Gallier et al. [53]. . . . .	32
1.8	a) Représentation à l'échelle d'une particule de la transition entre un contact lubrifié et un contact frictionnel. b) Force de friction tangentielle $F_D^T$ en fonction de la distance $z$ . D'après Comtet et al. [26] . . . . .	33
1.9	Représentation schématique de la fraction solide $\phi$ en fonction de la déformation appliquée pour un système dense (ligne pleine) et un état lâche (ligne en pointillés) D'après Lemaître et al. [80]. . . . .	35
1.10	Coefficient de friction (a) et fraction volumique (b) en fonction du nombre visqueux $I_v$ pour différentes particules : sphères de PMMA 1.1 mm ( $\circ$ ), : sphères de PMMA 0.58 mm ( $\square$ ). D'après Boyer et al. [13]. . . . .	36

1.11	Évolution de la fraction volumique de blocage $\phi_j$ en fonction du coefficient de friction $\mu_p$ . D'après Singh et al. [118]. . . . .	37
1.12	a) Schéma montrant l'alignement de la chaîne de force pendant l'application des deux écoulements (primaire et orthogonal). b) Schéma de l'appareil expérimental montrant l'écoulement primaire et le module oscillatoire interne en rouge qui perturbe les chaînes de force. c) Viscosité primaire ( $\eta_r$ , points bleus) et viscosité complexe orthogonale (points rouges) en fonction de la fréquence d'oscillation $\omega$ de la perturbation orthogonale. D'après Lin et al. [85]. . . . .	39
1.13	a) Viscosité $\eta$ en fonction de la contrainte appliquée $\sigma$ à différentes contraintes de vibrations $\sigma_v$ pour des billes de verre immergées dans un mélange Emkarox-eau. D'après Hanotin et al. [62]. . . . .	40
1.14	Courbe d'écoulement avec la contrainte de cisaillement $\sigma$ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ soumis à des vibrations verticales pour a) un fluide à seuil classique (Carbopol dans l'eau) et b) un granulaire humide (billes de verre dans une huile silicone). D'après Koch et al. [74]. . . . .	40
2.1	Différentes étapes du procédé industriel de fabrication de la silice chez Solvay [3].	44
2.2	Différentes échelles d'organisation des particules de silice au cours du processus de synthèse. [77]. . . . .	46
2.3	a) Représentation du système optique du granulomètre Mastersizer 3000 et b) Illustration du phénomène de diffraction (issue du site Malvern). . . . .	46
2.4	a) Exemple de figure obtenue par granulométrie pour une suspension diluée de silice. . . . .	47
2.5	Appareil de mesure de surface spécifique. . . . .	48
2.6	a) Exemple d'isotherme d'adsorption obtenu pour des particules de silice. b) Données de sorption linéarisées par l'Equation (2.4). . . . .	49
2.7	Photographie du microscope électronique à balayage de pailleasse . . . . .	51
2.8	Images obtenues de la poudre de silice Tixosil T68b à l'aide d'un microscope électronique à balayage. . . . .	51
2.9	Photographies d'une suspension de silice $\phi^{wt}=0.29$ cryogénisée à $-180^\circ\text{C}$ obtenues par microscopie électronique à balayage haute résolution. . . . .	52
2.10	Gauche : Image de particules de silice diluées dans l'eau obtenue par microscopie optique. Droite : après ajout de 4g de sel $\text{Na}_2\text{SO}_4$ . . . . .	53
2.11	Représentation schématique de l'intérieur d'une particule effective de silice. . . . .	54
2.12	Évolution du mélange de béton à haute performance SCC à différents temps de mélange : a. 0'30, b. 1'30, c. 2'00, d. 3'00, e. 6'00 and e. 8'00 après le début d'incorporation du liquide. D'après Cazacliu and Roquet [23] . . . . .	56
2.13	Photographie d'une suspension de silice à $\phi^{wt}=0.24$ présentant un seuil d'écoulement. . . . .	57

2.14	Les différents types de granulés en fonction du taux de saturation en eau (%). D'après Hodgson et al. [66]. . . . .	60
2.15	Exemples de phénomènes naturels du quotidien impliquant la présence d'une force capillaire. . . . .	61
2.16	Pont liquide formé entre deux grains de même taille. . . . .	61
2.17	Évolution des ponts liquides présents au sein d'un granulaire humide au cours du temps soumis à des tapes. D'après Fiscina et al. [50]. . . . .	62
2.18	Compacité $\phi$ d'un granulaire sec en fonction du temps $t$ à différentes intensités de vibrations $\Gamma$ . L'intensité évolue de manière croissante du bas vers le haut et varie entre $\Gamma = 1.4$ (X) et $\Gamma = 5.4$ (+). D'après Knight et al. [72]. . . . .	63
2.19	Figure provenant de Hodgson et al. [66] montrant le résultat d'un mélange " <i>high- shear</i> " (ligne du haut) et " <i>low-shear</i> " (ligne du bas) sur des billes de verre répul- sives dans un mélange d'eau et de glycerol à différentes fractions volumiques. . . . .	64
2.20	Viscosité relative $\eta_r$ en fonction de la fraction volumique pour une suspension de billes de verre d'environ 10 $\mu\text{m}$ de diamètre. La courbe rouge $\eta_L$ ( $\bullet$ ) représente le matériau à faible contrainte alors que la courbe noire $\eta_H$ ( $\bullet$ ) représente le matériau à haute contrainte. D'après Hodgson et al. [66]. . . . .	65
2.21	Courbes de distribution de taille des particules de silice pour les trois échantillons après dilution. . . . .	67
2.22	Image d'une micro-perle de silice présente parmi la silice Tixosil prise à l'aide d'un microscope électronique à balayage. . . . .	68
2.23	Schéma représentant les trois échantillons après dilution et centrifugation. De gauche à droite, les surnageants sont d'autant plus turbides que les sédiments diminuent en proportion. . . . .	69
2.24	Distribution de taille des particules dans les trois échantillons : pour le sédiment (courbe bleue) et le surnageant (courbe rouge). . . . .	70
2.25	Schéma représentant les différents types d'assemblage de particules en fonction du temps de formulation sous vortex. . . . .	71
2.26	Photographies d'une suspension de silice à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ formulée à l'aide d'un pot vibrant avant (gauche) et après (droite). . . . .	72
2.27	Formulation de suspensions concentrées de silice à différentes fractions massiques.	74
3.1	Rhéomètre à contrainte imposée Kinexus Ultra + (image issue la brochure fournie sur le site Netzsch). . . . .	76
3.2	Représentation schématique d'un cisaillement simple entre deux parois parallèles.	77
3.3	Schéma de la géométrie cône-plan d'après Coussot [28]. . . . .	78
3.4	Schéma géométrie de Couette d'après Coussot [28]. . . . .	79



3.5	Gauche : Schéma 3D d'une géométrie de type vane à 6 pales. Droite : Coupe transversale de la géométrie mettant en évidence la limite entre le mouvement rigide et le cisaillement d'un matériau dans la géométrie à six pales ; les rectangles gris correspondent aux pales. D'après Ovarlez et al. [105]. . . . .	81
3.6	Courbes d'écoulement d'une suspension à $\phi^{wt}=0.22$ avant (a) et après (b) calibration. Chaque courbe représente une géométrie différente : courbe verte : vane 4 pales du Kinexus, courbe bleue : vane 6 pales du Kinexus, courbe jaune : Couette strié du Kinexus, courbe rouge : vane 6 pales du TA instrument. . . . .	84
3.7	Courbes d'écoulement des suspensions de silice pour des fractions massiques comprises entre $5 < \phi^{wt} < 0.24$ . . . . .	84
3.8	Viscosité relative $\eta_r$ estimée à $\sigma = 0.01$ Pa en fonction de la fraction massique des particules de silice $\phi^{wt}$ . La ligne rouge continue est un ajustement des données à la loi de Maron-Pierce $\eta_r = (1 - \phi^{wt}/\phi_m^{wt})^{-2}$ avec $\phi_m^{wt} = 0.255$ . . . . .	86
3.9	Contrainte de cisaillement $\sigma$ fonction de la déformation $\gamma$ pour différentes fractions massiques $\phi^{wt}$ . La ligne noire en pointillés représente une déformation de 2. . . . .	87
3.10	Courbes d'écoulement des suspensions de silice entre $\phi_m^{wt} < \phi^{wt} < \phi_{rcp}^{wt}$ : Gauche : viscosité $\eta$ , Droite : contrainte de cisaillement $\sigma$ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ . . . . .	88
3.11	Contrainte de cisaillement $\sigma$ en fonction du déplacement angulaire pour une suspension à $\phi^{wt}=0.29$ . Échelle à gauche : en logarithme, droite : en linéaire. . . . .	89
3.12	Courbes d'écoulement stationnaire pour suspension à $\phi^{wt}=0.29$ . Gauche : viscosité $\eta$ , Droite : contrainte de cisaillement $\sigma$ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ . . . . .	90
3.13	Couple de frottement adimensionnel $M = C/2\pi\rho ghR_i^3$ en fonction de la hauteur cisailée $h/R$ pour différents mélanges de billes de verre dans différents fluides. La droite représente l'ajustement des points par un modèle linéaire. D'après Ancey et Coussot [4]. . . . .	91
3.14	Représentation schématique de la pression capillaire $p_{cap}$ qui s'exerce sur une particule au niveau de l'interface eau/air. . . . .	92
3.15	a) Couple en fonction de la hauteur immergée pour des billes de verre monodisperses. b) Couple en fonction de la hauteur immergée pour une suspension de particules de silice sédimentée. Les lignes modélisent une fonction quadratique issue de l'Equation (3.19). . . . .	94
3.16	Photographie d'une suspension de silice à $\phi^{wt} = 0.29$ dans une cuve présentant une fracture due à l'insertion du vane. . . . .	95
3.17	a) Couple en fonction du déplacement angulaire pour une suspension silice à $\phi^{wt} = 0.29$ . b) Couple en fonction de la hauteur immergée pour la même suspension. La ligne est une fonction linéaire issue de l'Equation (3.20). . . . .	96

3.18	Couple $T$ en fonction du déplacement angulaire mesuré à un taux de cisaillement macroscopique de $\dot{\gamma} = 0,1 \text{ s}^{-1}$ pour une hauteur d'immersion $H = 6 \text{ mm}$ et $H = 9 \text{ mm}$ dans trois matériaux différents : une suspension à $\phi^{\text{wt}} = 0.22$ sédimentée, une suspension à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ et une suspension à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ au-dessus de laquelle de l'eau est ajoutée (à gauche : échelle linéaire, à droite : échelle semi-logarithmique).	98
3.19	a) Effet de voûte dans une colonne résultant de la transmission des contacts frictionnels entre grains. b) Saturation du couple $T$ en fonction de la hauteur immergée pour une suspension à $\phi^{\text{wt}}=0.29$ .	99
4.1	Dispositif expérimental comprenant un rhéomètre AR 1500 et une géométrie vane et une cuve en PMMA avec un pot vibrant	102
4.2	Suspension de silice à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ soumise à des phases de vibrations toutes les trente secondes. La viscosité $\eta$ est représentée en fonction du temps de l'expérience.	104
4.3	Photographies d'une suspension de silice à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ présentant une fracture avant (gauche) et après (droite) l'application de vibrations.	105
4.4	Courbes d'écoulement d'une suspension de silice à $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ avec a) la viscosité $\eta$ et b) la contrainte $\sigma$ en fonction du taux de cisaillement. La ligne en pointillés représente une pente $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$ pour mettre en évidence le comportement plastique de la suspension non vibrée.	107
4.5	Représentation schématique du comportement d'une suspension $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ .	108
4.6	Schéma représentant le changement de régime et de valeurs de $\phi_j$ en fonction des vibrations appliquées ou non pour une valeur $\phi^{\text{wt}}=0.29$ .	109
4.7	Courbes d'écoulement d'une suspension de silice vibrée $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . En haut, la contrainte $\sigma$ et en bas la viscosité $\eta$ sont tracées en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ pour différentes valeurs d'amplitude $A = [100 - 500] \mu\text{m}$ et fréquence $f = [10 - 45] \text{ Hz}$ de vibration. L'échelle montre également les valeurs de la contrainte de vibration correspondante $\sigma_v$ .	111
4.8	Taux de cisaillement critique $\dot{\gamma}_c$ et contrainte critique $\sigma_c$ en fonction de $\sigma_v$ pour une suspension $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . La ligne rouge est une loi affine de type $y=f(x)$ . On trouve un coefficient directeur de $\sigma_c \simeq 1.5\sigma_v$ .	112
4.9	Contrainte critique $\sigma_c$ : (a) en fonction de l'amplitude de vibration $A$ pour une valeur donnée de fréquence $f = 50 \text{ Hz}$ , et (b) en fonction de la fréquence de vibration $f$ pour une valeur donnée de l'amplitude $A = 500 \mu\text{m}$ . Les lignes pleines correspondent à des fonctions quadratiques.	113
4.10	Courbes d'écoulement des suspensions de silice à différentes fractions massiques. Gauche : viscosité $\eta$ Droite : contrainte $\sigma$ en fonction du taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ . L'amplitude de vibration est fixée à $A = 500 \mu\text{m}$ et la fréquence $f = 20 \text{ Hz}$ , correspondant à $\sigma_v = 3 \text{ Pa}$ . La ligne pleine noire est une ligne de contrainte constante à $\sigma = 4.5 \text{ Pa}$ .	113

- 
- 4.11 Courbes d'écoulement d'une suspension de silice à  $\phi^{\text{wt}} = 0.28$  (gauche) et à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$  (droite) : viscosité de cisaillement  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour différentes valeurs de contrainte de vibration  $\sigma_v$ . Les symboles vides correspondent aux échantillons non vibrés. . . . . 115
- 4.12 Viscosité relative  $\eta_r^{\text{vib}} = \eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  dans le régime de type liquide des suspensions vibrées en fonction de la fraction massique de la suspension  $\phi^{\text{wt}}$ . La droite correspond à une loi de puissance de Maron-Pierce  $\eta_r^{\text{vib}} = C(1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_j^{\text{wt}})^{-2}$ , avec  $C = 18$  et  $\phi_j^{\text{wt}} = 0.303$ . . . . . 116
- 4.13 Prédiction du modèle de Wyart et Cates [125] pour la viscosité en fonction du taux de cisaillement. A gauche : pour  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  pour les différentes contraintes de vibration  $\sigma_v$  étudiées expérimentalement ; à droite : pour  $\sigma_v = 3$  Pa pour les diverses fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$  explorées. . . . . 118
- 4.14 Diagramme de la suspension dans l'espace des contraintes sans dimension  $\sigma/\sigma_v$  et de la fraction volumique  $\phi$ . . . . . 120
- 4.15 Résultat d'une inversion de cisaillement. a) Couple en fonction du temps, b) Couple normalisé en fonction de la déformation pour différents  $\dot{\gamma}$  : ( $\square$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.15$  s<sup>-1</sup>, ( $\circ$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.38$  s<sup>-1</sup>, ( $\nabla$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.60$  s<sup>-1</sup>, ( $\triangle$ )  $\dot{\gamma} = 2.4$  s<sup>-1</sup>. D'après Gadala-Maria et Acrivos [52]. . . . . 121
- 4.16 Évolution de la viscosité relative  $\eta_S$  d'une suspension en fonction de la déformation  $\dot{\gamma}t$  (haut), avec contribution hydrodynamique  $\eta_H$  (milieu) et contribution des contacts  $\eta_C$  (bas). Les inserts représentent les temps courts avant et après l'inversion. D'après Peters et al. [108]. . . . . 122
- 4.17 Evolution de la viscosité relative et de la microstructure en fonction du temps écoulé depuis la déformation. D'après Guazzelli et Pouliquen [58]. . . . . 123
- 4.18 Réponse aux expériences d'inversion de cisaillement d'une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$ . Différentes contraintes sont appliquées (voir légende). A gauche : viscosité à l'état d'équilibre en fonction du temps avant repos et inversion. A droite : Évolution de la viscosité en fonction du temps écoulé depuis le début de l'inversion. 124
- 4.19 Réponse aux expériences d'inversion de cisaillement d'une suspension à 26 wt%. Différentes contraintes sont appliquées (voir légende). A gauche : viscosité à l'état d'équilibre en fonction du temps avant repos et inversion. A droite : Évolution de la viscosité en fonction de la déformation. . . . . 125
- 4.20 Régime transitoire de la viscosité pour différents  $\phi^{\text{wt}}$  (voir légende) pour un taux de cisaillement fixe :  $\dot{\gamma} = 0.3$  s<sup>-1</sup>. Gauche : pour une échelle de temps long. Droite : pour une échelle de temps court. . . . . 125
- 4.21 Minimum de viscosité  $\eta_{\text{min}}$  pour différentes fractions massiques en particules. . . 126

- 
- 4.22 Viscosité de cisaillement par rapport au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour plusieurs suspensions. Étoiles : viscosité à l'état stationnaire et minimale obtenue à partir d'expériences d'inversion de cisaillement. Cercles : courbes d'écoulement obtenues à partir d'une rampe de taux de cisaillement avec (cercles pleins) ou sans (cercles vides) vibrations ; ici  $\sigma_v = 3$  Pa. . . . . 127



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>17</b>
<b>1 État de l'art et généralités</b>	<b>21</b>
1.1 Généralités sur les suspensions granulaires . . . . .	22
1.2 Les différents types de comportements macroscopiques . . . . .	23
1.2.1 La thixotropie . . . . .	24
1.2.2 Les fluides à seuil . . . . .	24
1.2.3 La rhéofluidification et le rhéoépaississement . . . . .	25
1.3 Comportements spécifiques des suspensions concentrées . . . . .	27
1.3.1 Dépendance de la viscosité avec la fraction volumique $\phi$ . . . . .	27
1.3.2 Le blocage ou <i>jamming</i> . . . . .	29
1.3.3 Le rhéoépaississement . . . . .	30
1.4 Origine microscopique : une histoire de contact . . . . .	31
1.4.1 Apports des granulaires secs, la rhéologie $\mu(I)$ . . . . .	34
1.4.2 Analogie avec les suspensions granulaires . . . . .	35
1.4.3 Dépendance de la fraction volumique de blocage $\phi_j$ . . . . .	37
1.4.4 Modification du coefficient de friction $\mu_p$ . . . . .	38
<b>2 Matériels et méthodes</b>	<b>43</b>
2.1 La silice . . . . .	44
2.1.1 La silice précipitée Solvay . . . . .	44
2.2 Caractérisation de la poudre sèche . . . . .	46
2.2.1 Taille de particules par granulométrie . . . . .	46
2.2.2 Détermination de la surface spécifique . . . . .	47
2.2.3 Caractérisation par microscopie . . . . .	50
2.2.3.1 Microscopie électronique à balayage . . . . .	50
2.2.3.2 Microscopie optique . . . . .	52
2.3 Calcul de la densité effective des particules . . . . .	53
2.4 Formulation des suspensions . . . . .	55
2.4.1 Historique de la formulation . . . . .	57
2.4.1.1 Une méthode de départ peu reproductible . . . . .	57

2.4.1.2	Une nouvelle méthode plus douce ? . . . . .	58
2.4.2	La granulation, un peu d'histoire . . . . .	58
2.4.2.1	La cohésion capillaire des grains . . . . .	60
2.4.2.2	Compaction d'un milieu granulaire à l'échelle locale . . . . .	61
2.4.3	La rhéologie des suspensions et la granulation . . . . .	62
2.4.4	Influence du temps de vibrations . . . . .	66
2.4.4.1	Ségrégation des petites particules par centrifugation . . . . .	68
2.4.4.2	Test de formulation sous vibrations contrôlées . . . . .	72
2.4.5	Le protocole final . . . . .	72
2.4.6	Identification des deux fractions massiques caractéristiques . . . . .	73
<b>3</b>	<b>Rhéologie des suspensions de silice</b> . . . . .	<b>75</b>
3.1	Les concepts de base en rhéologie . . . . .	76
3.1.1	Cas d'un cisaillement simple . . . . .	77
3.2	Les différentes géométries . . . . .	78
3.2.1	Géométrie cône-plan . . . . .	78
3.2.2	Géométrie de Couette . . . . .	79
3.2.3	Géométrie vane . . . . .	81
3.2.4	Analogie de Couette . . . . .	82
3.3	Comportement des suspensions en dessous de $\phi_m$ . . . . .	83
3.4	Comportement des suspensions au-dessus de $\phi_m$ . . . . .	85
3.4.1	Protocole expérimental . . . . .	86
3.4.2	Fluide à seuil hétérogène . . . . .	87
3.4.3	Régime frictionnel stationnaire . . . . .	89
3.4.4	Origine du seuil d'écoulement . . . . .	90
3.4.5	Exemple de matériaux où la gravité domine $p_{grav}$ . . . . .	94
3.4.6	Exemple de matériaux où la capillarité domine $p_{cap}$ . . . . .	95
3.4.7	Diminution de la force capillaire $p_{cap}$ . . . . .	97
3.4.8	Effet Janssen . . . . .	98
<b>4</b>	<b>Comportements des suspensions sous vibrations</b> . . . . .	<b>101</b>
4.1	Le dispositif expérimental . . . . .	102
4.2	Vibrations d'une suspension au-dessus de $\phi_m$ . . . . .	103
4.2.1	Test de reproductibilité . . . . .	104
4.2.2	Influence des vibrations sur la granulométrie . . . . .	104
4.2.3	Courbe d'écoulement . . . . .	105
4.2.4	Interprétation à l'échelle locale . . . . .	107
4.2.5	Effets de la contrainte de vibration $\sigma_v$ . . . . .	110
4.2.6	Effets de la fraction massique $\phi^{wt}$ . . . . .	112
4.2.7	Viscosité relative de la suspension sans friction . . . . .	114

---

4.3	Modélisation du blocage dans les suspensions vibrées . . . . .	115
4.4	Prédiction du modèle Wyart et Cates . . . . .	117
4.4.1	Diagramme de blocage . . . . .	119
4.5	Inversion de cisaillement : une nouvelle preuve de contacts . . . . .	120
4.5.1	Historique sur les inversions de cisaillement . . . . .	120
4.5.2	Principe d'une inversion de cisaillement . . . . .	122
4.5.3	Protocole expérimental . . . . .	123
4.5.4	Régime transitoire en fonction de la fraction massique $\phi^{\text{wt}}$ . . . . .	124
4.5.5	Comparaison des viscosités $\eta_{\text{min}}$ et $\eta_{\text{vib}}$ . . . . .	126
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>129</b>
	<b>Annexes</b>	<b>132</b>
	<b>A Article Journal of Rheology</b>	<b>133</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>153</b>





# Introduction

L'introduction de particules de silice par Michelin en 1992, en remplacement partiel des noirs de carbone, fut une avancée écologique majeure pour l'industrie pneumatique. Tout en réduisant fortement l'empreinte écologique des pneumatiques, ces particules ont permis de diminuer leur résistance au roulement, conduisant à une réduction de consommation en carburant et d'émission de CO<sub>2</sub> pouvant atteindre 5 %.

Malgré cela, la production de silice précipitée pour les « pneus verts » reste une forte source de gaspillage en eau et en énergie : leur manipulation requiert à ce jour que les particules de silice soient sous forme de suspensions moyennement concentrées, au comportement de fluide visqueux peu complexe, dont l'eau doit être au final séchée. Un substantiel progrès écologique résulterait donc de la possibilité de mettre en forme des suspensions plus concentrées, mais toujours fluides.

Depuis plus d'un siècle, les suspensions de particules dispersées dans un fluide newtonien ont fait l'objet de nombreuses études à la fois théoriques, expérimentales et numériques. La principale raison de cet intérêt réside dans leur omniprésence dans une large gamme de domaines d'application : agroalimentaire, cosmétique, génie civil, industrie pharmaceutique ou encore biologique.

La formulation et la composition d'une suspension résultent d'un compromis entre le besoin de la rendre suffisamment liquide pour la manipuler aisément au cours de son utilisation et le besoin d'élever au maximum la concentration en particules. Cependant, une forte concentration entraîne des comportements non newtoniens indésirables souvent liés à une augmentation de la viscosité apparente qui diverge à une fraction volumique de blocage  $\phi_j$  jusqu'à provoquer le blocage du matériau. Le blocage ou *jamming* est un phénomène que l'on retrouve dans de nombreux procédés industriels (pompage, filtration) où la manipulation de suspensions concentrées est nécessaire.

La rhéologie de suspensions concentrées reste parfois mal comprise et difficile à prédire. Ce sont des systèmes intermédiaires entre les suspensions diluées et les matériaux granulaires. La nature des constituants présents dans la suspension peut instaurer une multitude de paramètres influant sur leur rhéologie : taille et forme des particules, polydispersité, différence de densité entre le liquide et les particules, viscosité du fluide. Même en se limitant à l'écoulement d'une suspension modèle de sphères rigides non-browniennes, la prédiction de son comportement

rhéologique n'est pas trivial. Au niveau microscopique, différentes forces peuvent intervenir en fonction de la concentration en particules : interactions hydrodynamiques et/ou de contacts.

Depuis une dizaine d'années maintenant, la littérature des suspensions concentrées met en avant les forces de contacts, par l'intermédiaire des rugosités de surface, au cœur de la rhéologie des suspensions. Les contacts frictionnels, caractérisés par un coefficient de friction  $\mu_p$ , sont à l'origine de nombreux comportements macroscopiques observés dans ces systèmes. Ce coefficient de friction interparticulaire semble influencer sur de nombreux paramètres intrinsèques au matériau, dont la fraction volumique de blocage  $\phi_j$ . Il existe diverses méthodes afin de moduler la valeur de ce coefficient telles que la modification de surface ou la perturbation de l'écoulement par vibrations.

L'objectif de cette thèse est de réaliser des suspensions suffisamment concentrées en particules afin de décrire et comprendre leurs comportements rhéologiques sous écoulement et en particulier, dans leur régime frictionnel où le matériau est initialement bloqué.

Le Chapitre 1 permet d'aborder une étude bibliographique des concepts de base nécessaire à la compréhension des différents phénomènes rencontrés au cours de cette thèse.

Le Chapitre 2 décrit les matériaux utilisés, à savoir les particules de silice ainsi que les différentes méthodes pour leur caractérisation. La deuxième partie est focalisée sur la formulation des suspensions concentrées, le choix de mélange et l'influence de certains paramètres sur la granulation observée au cours de la formulation. Le tout nous permettra de définir le protocole final qui nous servira tout au long de cette thèse.

Le Chapitre 3 est consacré à l'étude de la rhéologie des suspensions de silice à différentes concentrations. Une première partie consiste à introduire les bases de la rhéologie et les différentes géométries qui ont servi à l'étude. Une analogie de Couette est présentée pour calibrer chaque géométrie. La seconde partie concerne la rhéologie des suspensions en dessous et au-dessus de  $\phi_j$ .

Enfin le Chapitre 4 se concentre sur l'impact des vibrations sur les suspensions concentrées. Après une brève description du dispositif expérimental utilisé, une étude approfondie de la rhéologie sous vibrations au-delà de  $\phi_j$  sera faite.

# Chapitre 1

## État de l'art et généralités

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Généralités sur les suspensions granulaires</b>	<b>22</b>
<b>1.2</b>	<b>Les différents types de comportements macroscopiques</b>	<b>23</b>
1.2.1	La thixotropie	24
1.2.2	Les fluides à seuil	24
1.2.3	La rhéofluidification et le rhéoépaississement	25
<b>1.3</b>	<b>Comportements spécifiques des suspensions concentrées</b>	<b>27</b>
1.3.1	Dépendance de la viscosité avec la fraction volumique $\phi$	27
1.3.2	Le blocage ou <i>jamming</i>	29
1.3.3	Le rhéoépaississement	30
<b>1.4</b>	<b>Origine microscopique : une histoire de contact</b>	<b>31</b>
1.4.1	Apports des granulaires secs, la rhéologie $\mu(I)$	34
1.4.2	Analogie avec les suspensions granulaires	35
1.4.3	Dépendance de la fraction volumique de blocage $\phi_j$	37
1.4.4	Modification du coefficient de friction $\mu_p$	38

---

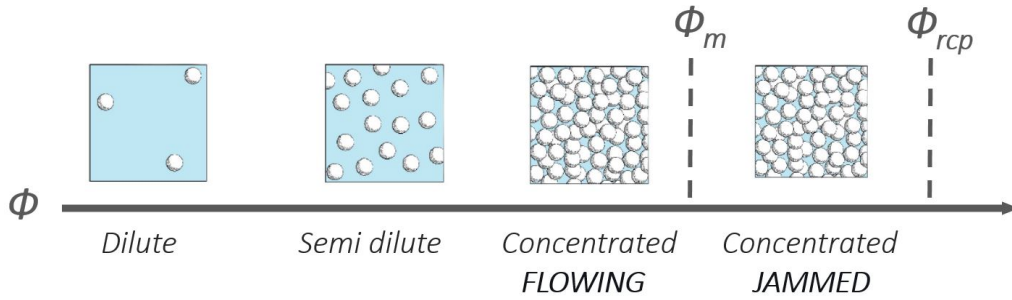


FIGURE 1.1 – Les différents régimes d’une suspension de sphères dures en fonction de la fraction volumique  $\phi$ . Images issues de Guazzelli et Pouliquen [58]

## 1.1 Généralités sur les suspensions granulaires

Les suspensions de particules solides sont des systèmes que l’on retrouve dans des domaines divers et variés tels que la géologie (boue, lave), la biologie (le sang) ou encore l’industrie (cosmétique, peinture, ciment). Ces matériaux comprennent en général deux phases : une phase solide dispersée et une phase liquide dispersante. Les particules présentes dans le fluide interstitiel sont de taille et de forme très variées. La catégorie des suspensions très concentrées en particules, également qualifiées de pâtes, se situe entre celle d’un fluide et d’un solide. Le matériau peut tout aussi bien se déformer de manière élastique tel un solide et/ou s’écouler comme un fluide classique comme l’eau. Parfois, l’écoulement de ces suspensions est complexe et des comportements macroscopiques particuliers émergent. De manière générale, certaines suspensions ne s’écoulent que lorsqu’une pression suffisamment grande est appliquée. D’autres matériaux s’écoulent de plus en plus difficilement lorsqu’on les mélange (c’est le cas de la maïzena dans l’eau) alors que d’autres se bloquent complètement. Les suspensions peuvent se classer sous trois régimes de concentrations différentes : le régime dilué, le régime semi-dilué et le régime concentré. Ces trois régimes sont déterminés par la fraction volumique  $\phi$ . Elle permet de décrire la proportion du volume occupé par les particules solides sur le volume total (liquide + solide).

$$\phi = \frac{V}{V_{tot}} \quad (1.1)$$

Les propriétés de chaque suspension peuvent varier en fonction de divers paramètres (température, fraction volumique, contrainte, tailles et forme des particules). L’une des propriétés les plus courantes permettant de caractériser une suspension est la viscosité. La viscosité d’une suspension est directement reliée à sa concentration en particules solides comme nous le verrons plus tard dans ce chapitre. La viscosité représente la résistance d’un matériau à l’écoulement et est définie comme le rapport entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement  $\eta = \sigma/\dot{\gamma}$ . De façon logique, plus la viscosité sera élevée, plus la capacité que possède le fluide à s’écouler facilement va diminuer. On peut également définir la viscosité relative  $\eta_r$  d’une suspension comme :

$$\eta_r = \frac{\eta}{\eta_f} \quad (1.2)$$

avec  $\eta_f$  la viscosité du fluide suspendant

L'ajout de particules au sein d'un liquide modifie de manière irréversible la façon dont le fluide s'écoule. Un grand nombre de phénomènes physiques peuvent influencer l'écoulement des suspensions de particules (inertie, agitation thermique, hydrodynamique...). Divers comportements des suspensions peuvent alors apparaître. Ces comportements peuvent être décrits macroscopiquement par la variation de leur viscosité apparente.

## 1.2 Les différents types de comportements macroscopiques

Pour décrire et interpréter le comportement macroscopique d'un fluide, on utilise la rhéologie. Cette science de la matière traite de l'écoulement et de la déformation d'un matériau sous l'effet d'une contrainte appliquée. Elle permet d'analyser les comportements mécaniques d'un matériau et d'établir des lois de comportement. De nombreux modèles ou lois de comportement, reliant la contrainte de cisaillement  $\sigma$  au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , ont été développés afin de décrire les comportements rhéologiques les plus couramment rencontrés.

### Liquides newtoniens

Les liquides les plus simples sont qualifiés de newtoniens lorsque la viscosité  $\eta$  est indépendante de la vitesse de cisaillement et du temps. L'eau est un exemple de fluide newtonien : sa viscosité reste inchangée au repos ou lorsqu'elle est mélangée.

Il existe alors une relation simple de proportionnalité (loi de Newton) entre la contrainte  $\sigma$  et le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma} \quad (1.3)$$

### Liquides non-newtoniens

Au contraire, pour certains fluides complexes, la présence d'une structure interne (bulles d'air, polymères, membranes de tensioactifs...) modifie fortement les propriétés rhéologiques du matériau : on parle alors de comportements non newtoniens et la relation entre contrainte et taux de cisaillement devient non linéaire [58, 96]. Un rhéogramme retraçant les différents comportements rhéologiques les plus fréquemment rencontrés est représenté sur la Figure (1.2).

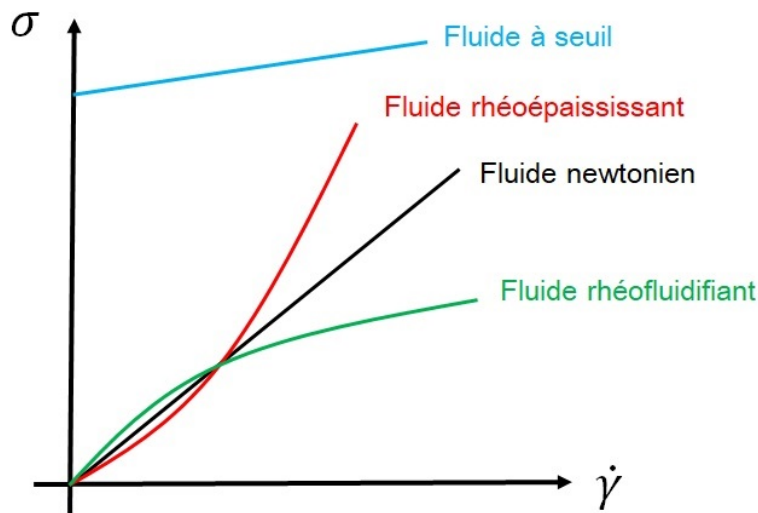


FIGURE 1.2 – Relation entre la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour plusieurs types de fluides.

### 1.2.1 La thixotropie

Le comportement de certains systèmes est fonction de leur histoire d'écoulement où la réponse à une sollicitation donnée dépend des sollicitations précédentes subies par le matériau. La thixotropie se traduit par une viscosité qui diminue au cours du temps. L'origine de cette thixotropie est la déstructuration ou rajeunissement du matériau induit par l'écoulement. Cette déstructuration est réversible : si le matériau est laissé au repos suffisamment longtemps, il revient progressivement à son état de départ, on parle alors de structuration ou vieillissement. Le phénomène inverse est l'antithixotropie ou la rhéopexie. Ce type de matériau nécessite la mise en place d'un protocole spécifique pour définir un état de référence pour chaque mesure afin de contrôler avec précision l'histoire du matériau. La thixotropie correspond à une évolution temporelle de la viscosité, à ne pas confondre avec la rhéofluidification qui est une évolution de la viscosité en fonction du régime d'écoulement.

### 1.2.2 Les fluides à seuil

Certains fluides complexes ne s'écoulent que lorsque la contrainte appliquée atteint une certaine valeur critique, appelée contrainte seuil  $\sigma_y$ . En dessous de cette contrainte  $\sigma_y$ , le matériau se déforme élastiquement et agit comme un solide. Au-delà de la contrainte seuil, le matériau commence à s'écouler et se comporte alors comme un liquide. La contrainte seuil est une propriété rhéologique que la plupart des suspensions concentrées ont en commun. C'est d'ailleurs l'un des problèmes majeurs dans de nombreux procédés industriels tels que la filtration ou le pompage.

De nombreux matériaux se comportent comme des fluides à seuil tels que les mousses, les

émulsions, les suspensions concentrées de particules ou les solutions de polymères. L'origine microscopique de ce seuil d'écoulement peut varier en fonction du type de matériau. Par exemple, l'élasticité des mousses et des émulsions provient de la tension interfaciale qui s'oppose à la déformation [82]. Concernant les suspensions de particules molles, la contrainte seuil tire son origine d'un encombrement stérique, l'élasticité provenant des interactions répulsives entre particules.

Les deux modèles les plus couramment employés sont :

- Le modèle de Bingham (1922), qui correspond à un comportement de solide rigide parfait rigide sous faibles contraintes et à un comportement de fluide visqueux au-delà d'une contrainte seuil  $\sigma_y$

$$\sigma = \sigma_y + \eta_p \dot{\gamma} \quad (1.4)$$

où  $\sigma_y$  est la contrainte seuil et  $\eta_p$  la viscosité plastique. En pratique, ce modèle ne s'applique que dans une gamme limitée de taux de cisaillement.

- Le modèle de Herschel-Bukley (1926) :

$$\sigma = \sigma_y + k \dot{\gamma}^n \quad (1.5)$$

où  $k$  est la consistance du fluide et  $n$  l'indice d'écoulement.

Nous retrouvons la loi de puissance décrite précédemment au-delà de la contrainte seuil.

Au cours d'une mesure rhéologique, le comportement des matériaux à seuil entraîne de nombreuses hétérogénéités d'écoulement. Lors de l'écoulement d'un fluide à seuil, certaines zones du matériau ne sont pas cisailées [42]. Le champ de contrainte dans une géométrie cylindrique est hétérogène, on peut retrouver alors un taux de cisaillement nul à proximité du cylindre externe où la contrainte de cisaillement  $\sigma$  est inférieure à la contrainte seuil  $\sigma_y$ . Cette localisation de cisaillement peut être mise en évidence en mesurant le champ de vitesse au niveau de l'entrefer, par exemple par IRM [102].

Toutefois, l'écoulement de certains matériaux peut également être localisé malgré une contrainte homogène. C'est le cas des matériaux à seuil thixotropes où la pente du profil de vitesse devient discontinue lorsqu'on dépasse un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ . Le matériau est alors obligé de se séparer en deux zones : une qui s'écoule à un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_c$  et l'autre qui ne coule pas. On parle alors de bande de cisaillement [69].

### 1.2.3 La rhéofluidification et le rhéoépaississement

Les matériaux rhéofluidifiants possèdent une viscosité apparente qui diminue lorsque le taux de cisaillement appliqué augmente. En général, cet effet est dû à une destruction de la structure interne du matériau par l'écoulement. La majorité des suspensions diluées en particules solides sont rhéofluidifiantes à bas cisaillement. De nombreux produits de la vie quotidienne possèdent ce comportement tels que : le sang, le vernis à ongles, le yaourt ou encore le shampoing.

Le rhéoépaississement est le comportement opposé à la rhéofluidification, à savoir une augmentation de la viscosité apparente (qui peut être de plusieurs ordres de grandeur) en fonction



du taux de cisaillement. L'exemple le plus connu reste la fécule de maïs (Maïzena) dans de l'eau. Si dans certains domaines le rhéoépaississement est considéré comme un problème majeur [121], il présente un grand avantage pour d'autres, notamment pour la confection de gilets pare-balles. En effet, des recherches effectuées par Lee et al. [79] montrent que du Kevlar® (fibre synthétique) recouvert d'un fluide rhéoépaississant (particules de silice colloïdales dispersées dans de l'éthylène glycol) permet une amélioration considérable de la résistance face à la pénétration d'une balle.

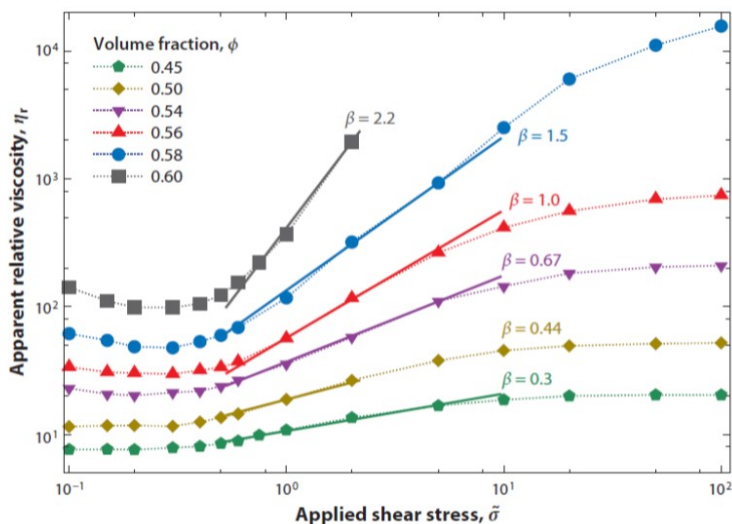


FIGURE 1.3 – Viscosité apparente  $\eta_r$  en fonction de la contrainte appliquée  $\tilde{\sigma}$  pour plusieurs fractions solides  $\phi$ . Un ajustement de type  $\eta_r \sim \tilde{\sigma}^\beta$  est fait. D'après Morris [96].

Le rhéoépaississement se définit comme une transition d'un état visqueux à un état plus visqueux avec une valeur finie de viscosité et un écoulement homogène. Elle est de plus en plus abrupte à mesure que la fraction volumique augmente. On parle de rhéoépaississement continu (CST : *Continuous Shear Thickening*) lorsque la viscosité croît légèrement avec le taux de cisaillement puis de rhéoépaississement discontinu (DST : *Discontinuous Shear Thickening*) lorsque la viscosité augmente brusquement à un taux de cisaillement donné, ce qui survient pour des fractions volumiques plus élevées. Ce saut de viscosité, sous un taux de cisaillement contrôlé, se produit à une certaine valeur de contrainte critique notée  $\sigma_c$  [96, 58]. La Figure (1.3) représente la transition de rhéoépaississement pour diverses fractions volumiques  $\phi$ . L'ajustement de type  $\eta_r \sim \tilde{\sigma}^\beta$  est réalisé pour chaque courbe. Un exposant  $\beta < 1$  correspond à un rhéoépaississement continu CST et  $\beta > 1$  à un rhéoépaississement discontinu DST.

Une loi de puissance (Ostwald) permet parfois de décrire le comportement rhéologique de ces matériaux non newtoniens sans seuil.

$$\sigma = K\dot{\gamma}^n \quad (1.6)$$

$K$  est une constante et  $n$  l'indice d'écoulement. Pour un fluide rhéofluidifiant, la valeur est de  $n < 1$ , pour un fluide newtonien  $n = 1$  et  $n > 1$  pour un fluide rhéoépaississant.

## 1.3 Comportements spécifiques des suspensions concentrées

En fonction de la fraction volumique et du régime dans lequel se trouve la suspension, les interactions entre particules seront différentes. Dans le régime des suspensions concentrées où la fraction volumique  $\phi$  est suffisamment grande, les interactions directes entre particules entraînent des comportements spécifiques à ce type de suspensions.

### 1.3.1 Dépendance de la viscosité avec la fraction volumique $\phi$

De nombreuses études montrent la dépendance de la viscosité en fonction de la fraction volumique. Au fur et à mesure que la fraction volumique augmente, les particules commencent à se gêner mutuellement et ont de plus en plus de mal à circuler librement au sein du fluide. La conséquence principale de cette gêne est une augmentation de la viscosité de la suspension.

#### Régime dilué

Le premier modèle théorique a été proposé par Albert Einstein [40, 41]. Dans son expression, une relation simple est donnée pour décrire la viscosité relative  $\eta_r$  d'une suspension diluée en fonction de la fraction volumique :

$$\eta_r = 1 + 2.5\phi \quad (1.7)$$

Cette expression est valable pour des concentrations relativement faibles de quelques pour cent ( $\phi \leq 0.03$ ). Ainsi, l'addition de particules dans un fluide entraîne l'augmentation de la viscosité relative par rapport à la viscosité du fluide seul  $\eta_f$ . En effet, la présence de particules entraîne un rétrécissement des lignes de courants à proximité des particules donnant lieu à une augmentation de la dissipation d'énergie et donc de la viscosité. Lorsque cette fraction volumique augmente davantage ( $\phi \approx 0.1$ ), les particules ne sont plus suffisamment éloignées et des interactions hydrodynamiques entre particules interviennent. Batchelor et Green [9] trouvent un terme de correction à l'ordre 2 tel que :

$$\eta_r = 1 + 2.5\phi + 6.95\phi^2 \quad (1.8)$$

Ces deux modèles présentés sont efficaces pour représenter la viscosité pour des faibles concentrations. En revanche, lorsque la fraction volumique est augmentée, de nouvelles interactions doivent être prises en compte.

## Régime concentré

Pour une fraction volumique suffisamment grande ( $\phi \geq 0.2$ ), la probabilité de rencontre entre deux particules augmente. Les distances entre particules deviennent inférieures à leur rayon et les forces de contacts sont en compétition avec les forces hydrodynamiques, rendant la compréhension des comportements et mécanismes mis en jeu bien plus complexe. Les Equations (1.7) et (1.8) ne sont donc plus valables. Pour des régimes très concentrés, on peut avoir la formation d'un réseau de particules en contacts. Ce réseau peut transmettre des forces sur de grandes distances et des efforts importants au niveau des contacts [107].

De nombreuses lois empiriques prenant en compte les interactions entre particules, ont été développées au cours des dernières décennies pour décrire la viscosité relative d'une suspension. Parmi elles, l'expression la plus couramment utilisée est celle de Krieger et Dougherty [75] :

$$\eta_r(\phi) = \left[1 - \frac{\phi}{\phi_j}\right]^{-2.5\phi_j} \quad (1.9)$$

On retrouve également celle de Maron-Pierce où l'exposant de la divergence est remplacé par un 2 et qui sera utilisée dans le manuscrit [94] :

$$\eta_r(\phi) = \left[1 - \frac{\phi}{\phi_j}\right]^{-2} \quad (1.10)$$

Contrairement à l'expression proposée par Krieger et Dougherty [75], la loi de Maron-Pierce ne permet pas de retrouver la viscosité d'une suspension diluée quand  $\phi$  tend vers zéro [41]. Elle semble cependant mieux rendre compte du comportement à haute fraction volumique  $\phi$ .

La caractérisation du comportement rhéologique des suspensions non browniennes se fait généralement en volume imposé avec pour paramètre de contrôle la fraction volumique  $\phi$ . Dans ce cadre, la rhéologie est caractérisée par la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et les différences de contraintes normales, qui dépendent de  $\phi$  et du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . La Figure (1.4) illustre la dépendance de la viscosité relative  $\eta_r$  d'une suspension en fonction de la fraction volumique en particules solides  $\phi$ . Elle permet de mettre en évidence la croissance progressive de  $\eta_r$  avec  $\phi$  suivie d'une divergence lorsque  $\phi$  tend vers une fraction volumique maximale appelée fraction volumique de blocage notée  $\phi_j$  dans la suite de ce manuscrit. La lettre "j" correspond à l'anglicisme *jamming*. Cette grandeur est un paramètre important à prendre en compte lors de la formulation d'une suspension. L'intérêt principal est de rendre cette valeur la plus élevée possible pour obtenir des suspensions manipulables avec une large gamme de fractions volumiques accessible.

Les mesures réalisées et publiées sur les suspensions de sphères dures monodisperses montrent que la viscosité relative diverge pour des fractions volumiques allant de  $\phi = 0.55$  à  $\phi = 0.64$ . En se rapportant à la littérature, la valeur de  $\phi = 0.64$  est identifiée comme le "*Random Close*

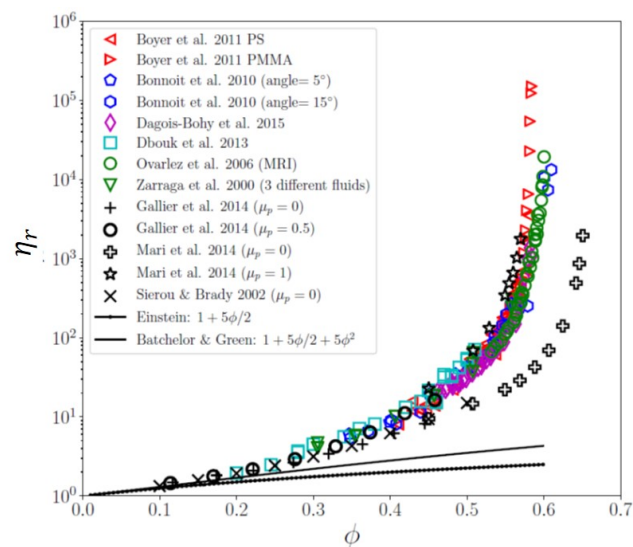


FIGURE 1.4 – Viscosité relative  $\eta_r$  de sphères dures en fonction de la fraction volumique  $\phi$  pour différentes sortes de suspensions où  $\mu_p$  correspond au coefficient de frottement. Les valeurs sont extraites : d'expériences (symboles colorés), de simulations numériques (symboles noirs) et de modèles empiriques (lignes). Images issues de Guazzelli et Pouliquen [58].

"Packing" ou  $\phi_{rcp}$  correspondant à la fraction volumique maximale d'un empilement compact aléatoire. Dans la même idée, la valeur  $\phi = 0.55$  correspond à un empilement plus lâche aléatoire que l'on nomme "Random Loose Packing" ou  $\phi_{rlp}$ .

### 1.3.2 Le blocage ou *jamming*

Le concept de blocage ou *jamming* caractérise un système qui subit une transition d'un état liquide où les particules sont libres de se déplacer à un état solide dans lequel les particules sont bloquées. Un exemple de la vie quotidienne d'un tel blocage dont nous avons tous fait l'expérience est celui des embouteillages. Lorsque la densité en véhicules devient trop élevée sur une même route, le trafic est interrompu avec la formation d'un embouteillage, également appelé *traffic jam* par les anglophones. Le blocage a été observé dans une large gamme de matériaux mous, y compris les mousses, les émulsions, les matériaux granulaires et les verres colloïdaux. Selon Liu et Nagel [86], tous ces systèmes peuvent être réunis avec les verres dans un diagramme de phase incluant la contrainte de charge  $\sigma$ , la fraction volumique  $\phi$  et la température  $T$  comme paramètres clés de contrôle pour la transition de blocage. Ce diagramme est présenté sur la Figure (1.5).

Par exemple, pour les systèmes vitreux, la transition de blocage se produit lorsque le système est refroidi en abaissant la température en dessous de sa température de transition vitreuse  $T_g$ . De manière analogue à la température, pour les matériaux granulaires ou les émulsions concentrées, la transition vers un état bloqué se produit respectivement avec une augmentation de  $\phi$  ou une

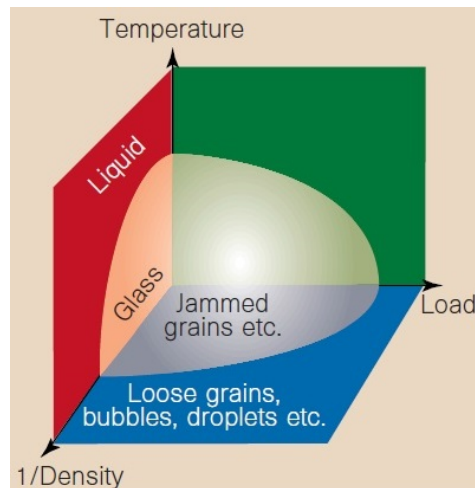


FIGURE 1.5 – Diagramme de phase pour différents systèmes en fonction des trois paramètres clés : la température, la charge et la densité. D’après Liu et Nagel [86].

diminution de  $\sigma$ . En rhéologie à volume imposé, l’observation du *jamming* se manifeste lorsque la viscosité apparente  $\eta(\dot{\gamma}, \phi) = \sigma/\dot{\gamma}$  augmente fortement avec la fraction volumique  $\phi$  jusqu’à diverger sous cisaillement. On parle alors de *shear-jamming*.

### 1.3.3 Le rhéoépaississement

Comme nous l’avons vu précédemment, le rhéoépaississement est également observé dans la plupart des suspensions non browniennes concentrées avec une granulométrie de l’ordre de  $1 \sim 100 \mu\text{m}$  [17].

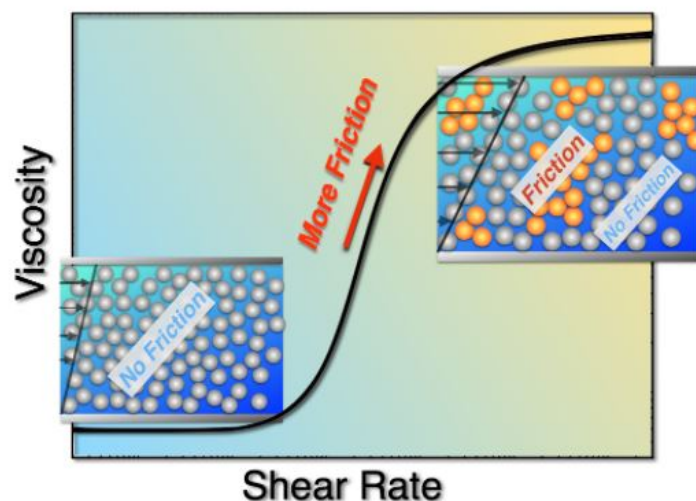


FIGURE 1.6 – Représentation schématique d’une transition de rhéoépaississement au cours d’une rampe. D’après le site blairlab [2].

De nombreuses théories sur l'origine physique du rhéoépaississement ont émergé depuis sa découverte. Dans les années 70, Hoffman [67] propose un mécanisme de transition *ordre-désordre* pour décrire la transition de rhéoépaississement. Il montre que le rhéoépaississement est accompagné par un changement de microstructure et conclut que le taux de cisaillement critique de rhéoépaississement correspond à une transition entre un état ordonné où le fluide s'écoule facilement à un état désordonné provoquant l'augmentation de la viscosité. Pourtant Maranzano et Wagner [89] entre autres, ont observé ce comportement sans cette transition proposée par Hoffman [67]. Quelques années plus tard, une nouvelle théorie basée sur une approche hydrodynamique est avancée par Brady et Bossis [14]. L'écoulement entraînerait la formation d'agrégats de particules ou *hydroclusters* dans l'axe de compression. Ces agrégats participent à l'augmentation de la dissipation d'énergie entraînant l'augmentation de la viscosité. Ce scénario semble effectivement valable pour capturer le rhéoépaississement continu des systèmes browniens. En revanche, il semble incapable d'expliquer le rhéoépaississement discontinu observé dans les suspensions très concentrées. Aujourd'hui, un scénario basé sur un modèle de transition frictionnelle semble cohérent et adopté par la communauté des rhéologues.

## 1.4 Origine microscopique : une histoire de contact

L'étude des suspensions concentrées non-browniennes a connu ces dix dernières années un renouveau considérable depuis la mise en évidence de l'importance des forces de contacts solides entre particules dans la rhéologie des suspensions.

Lootens et al. [88] est l'un des premiers à mettre en avant la possibilité que les forces de frottement sont responsables du rhéoépaississement dans les suspensions. Des études théoriques et numériques de Wyart et Cates [125] et Mari et al. [91], Seto et al. [116] ont associé la transition de rhéoépaississement à une transition de contacts lubrifiés (sans friction) à des contacts frictionnels avec l'augmentation de la contrainte. Ils suggèrent l'existence d'une force répulsive à courte portée entre les particules. La présence de cette force répulsive permet de maintenir les contacts lubrifiés (sans frottement) à faible contrainte. Au repos et à faible contrainte, les particules ne peuvent pas alors s'approcher les unes des autres. A mesure que la contrainte augmente, les forces normales hydrodynamiques augmentent et finissent par prédominer et par mettre les particules en contacts lorsque les forces répulsives sont surpassées. Il en résulte des frottements interparticulaires conduisant à une augmentation de la viscosité ou à du *shear-jamming*.

Gallier et al. [53] ont pu évaluer les contributions hydrodynamiques et celles des contacts à la rhéologie des suspensions. Les résultats sont présentés sur la Figure (1.7). À faible concentration, les interactions hydrodynamiques dominent. À mesure que la concentration augmente, la contribution des forces de contacts augmente et dépasse celle des forces hydrodynamiques. A l'approche de la transition de blocage, les interactions de contacts apportent la plus grande contribution et jouent un rôle essentiel sur le comportement rhéologique des suspensions [58].

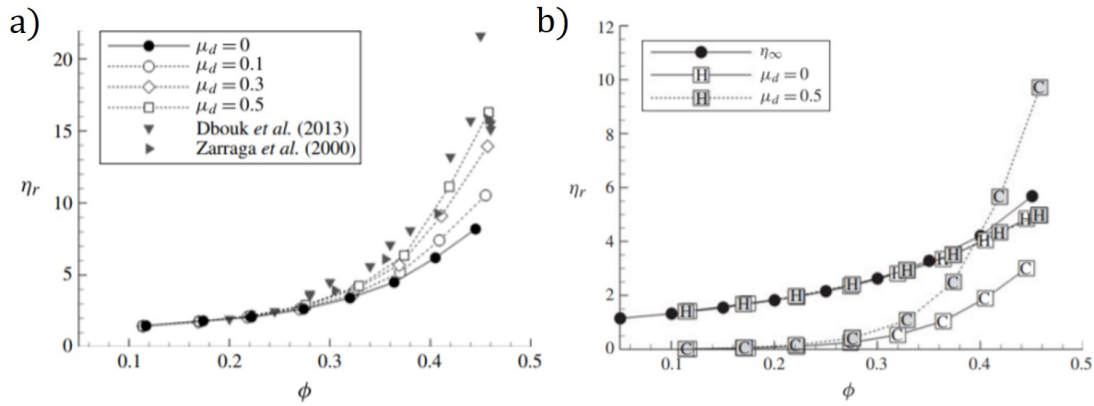


FIGURE 1.7 – a) Évolution de la viscosité relative  $\eta_r$  en fonction de la fraction volumique  $\phi$  pour différents coefficients de friction interparticulaires  $\mu_p$ . Les données symbolisées par des triangles sont issues de Dbouk et al. [32] et Zarraga et al. [127]. b) Évaluation des contributions hydrodynamiques (H) et de contacts (C) sur la viscosité relative  $\eta_r$  pour deux valeurs de coefficient de friction  $\mu_p = 0.$  et  $\mu_p = 0.5$ . D’après Gallier et al. [53].

Dans le cadre d’études numériques sur le comportement rhéoépaississant des suspensions, Mari et al. [92] expliquent que le frottement solide affecte la divergence de viscosité et donc la fraction volumique de blocage  $\phi_j$ . En effet, cette valeur est abaissée si le coefficient de friction  $\mu_p$  augmente. Ce résultat est illustré sur la Figure (1.4) et représenté par les étoiles noires. Pour une valeur  $\mu_p = 1$ , la divergence de viscosité est observée autour de  $\phi = 0.55$ . Pour des sphères sans friction ( $\mu_p = 0$ ), la valeur est plus proche de  $\phi = 0.64$ .

Dans la même idée, Guy et al. [60] ont fourni des preuves expérimentales de la description macroscopique de cette transition de rhéoépaississement sur une suspension granulaire rhéoépaississante à différentes fractions volumiques. Ils ont ainsi pu montrer que le plateau inférieur à faible viscosité diverge autour d’une valeur  $\phi \approx 0,64 = \phi_{rcp}$  correspondant à une valeur de fraction de blocage pour des sphères sans frottement. A l’inverse, le plateau supérieur à haute viscosité semble diverger au niveau du *Random loose Packing*  $\phi \approx 0,55 = \phi_{rlp}$ , comme prévu pour des sphères frictionnelles avec un coefficient de friction élevé. Cette expérience sera approfondie dans le Chapitre 2.

Depuis, de nouvelles preuves expérimentales sur la description microscopique de cette transition ont été apportées par Comtet et al. [26] grâce à des mesures directes de la force de friction tangentielle  $F_D^T$ . L’expérience consiste à mesurer le profil de friction entre deux paires de particules de PVC ainsi que pour des particules d’amidon de maïs dans un solvant avec une technique de microscopie à force atomique à l’aide d’un diapason en quartz. Ils ont observé une transition claire d’un régime à faible frottement (zone bleue), où des paires de particules supportent une charge normale finie caractérisée par une valeur de force  $F_D^T$  faible et des interactions purement hydrodynamiques, à un régime à haut frottement caractérisé par des contacts répulsifs durs et du frottement entre les particules avec une force  $F_D^T$  élevée (zone rouge).



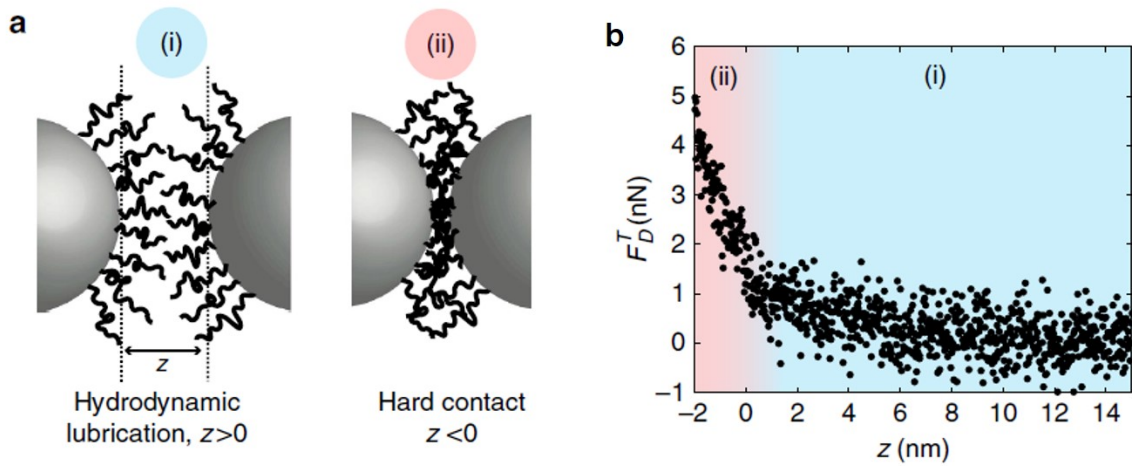


FIGURE 1.8 – a) Représentation à l'échelle d'une particule de la transition entre un contact lubrifié et un contact frictionnel. b) Force de friction tangentielle  $F_D^T$  en fonction de la distance  $z$ . D'après Comtet et al. [26]

Clavaud et al. [25] ont également démontré que pour des suspensions rhéoépaississantes, les assemblées de particules se comportent macroscopiquement comme des assemblées de particules non frottantes, grâce à l'étude d'écoulement gravitaire, dans lequel, les forces interparticulaires sont faibles. Ensuite, ils ont montré que modifier la portée de la force de répulsion en dessous de la rugosité des particules supprime l'état sans frottement et ainsi le rhéoépaississement, confirmant le rôle des contacts dans les suspensions rhéoépaississantes.

### Modélisation du comportement rhéoépaississant

L'ensemble du comportement rhéoépaississant des suspensions modèles telles que les suspensions de sphères non-browniennes de fraction volumique  $\phi$  peut être explicitement modélisé par le modèle de Wyart et Cates [125]. Ce modèle définit une fraction de contacts frictionnels  $f_c(\sigma)$  dans la suspension, le reste des contacts étant lubrifié. En conséquence, en l'absence de contacts ( $f_c = 0$ ), la fraction de blocage  $\phi_j(f_c)$  doit être égale à la fraction de compacité maximale  $\phi_{\text{rcp}}$  et réciproquement, lorsque tous les contacts sont frictionnels ( $f_c = 1$ ), la fraction  $\phi_j$  est égale à la fraction volumique où la viscosité diverge notée  $\phi_m$  dans le manuscrit. La valeur de  $\phi_m$  dépend de la valeur du coefficient de friction interparticulaire  $\mu_p$ . La fraction volumique  $\phi_j(f_c)$  est alors une fonction monotone décroissante de  $f_c$  interpolant entre ces deux valeurs :

$$\phi_j(f_c) = f_c \phi_m + (1 - f_c) \phi_{\text{rcp}} \quad (1.11)$$

Lorsque la fraction volumique de la suspension  $\phi$  est inférieure à  $\phi_j(f_c = 1) = \phi_m$ , un rhéoépaississement discontinu DST peut alors être observé. Dans ce cas, on retrouve bien une transition d'un état de faible viscosité divergeant à  $\phi_j(f_c = 0) = \phi_{\text{rcp}}$  à un état de viscosité plus élevée divergeant à  $\phi_m$ . Dans le cas où  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ , un blocage par cisaillement ou *shear-*



*jamming* est observé. De ce fait pour une telle valeur de  $\phi$ , aucun écoulement n'est possible sans dilatance pour le matériau frictionnel alors que le matériau sans friction peut s'écouler. Selon Morris [96], le rhéoépaississement discontinu est considéré comme un précurseur du *jamming* dans le sens où une variation de la contrainte ou de la fraction solide peut conduire à du *shear-jamming*.

Sous contrainte contrôlée, l'écoulement s'arrête brutalement à une valeur critique, signifiant que la viscosité apparente devient infinie. En cas de *shear-jamming*, aucun écoulement n'est possible au-dessus d'un taux de cisaillement critique. Expérimentalement, une certaine confusion entre le rhéoépaississement discontinu DST et le *shear-jamming* peut être faite. En effet, des écoulements macroscopiques peuvent toujours être observés lorsqu'on travaille en taux de cisaillement contrôlé, malgré le blocage du matériau. Dans ce dernier cas, le matériau devient inhomogène et des bandes de cisaillement se produisent pour accommoder les conditions aux limites [46]. Comme nous le verrons par la suite, le rhéoépaississement observé dans nos expériences réalisées à gradient de vitesse imposé est du *shear-jamming*.

### 1.4.1 Apports des granulaires secs, la rhéologie $\mu(I)$

Au cours des dernières années, diverses études se sont intéressées au rôle des contacts dans la rhéologie des suspensions de particules [27, 53, 37, 116, 117]. Les similarités avec les granulaires secs se font de plus en plus courantes [80]. Pour les milieux granulaires secs, les interactions dominantes sont les collisions et les frottements, qui sont équilibrées par l'inertie des particules.

#### Rhéologie à pression imposée

La rhéologie à pression imposée est principalement utilisée pour l'étude des matériaux granulaires où le paramètre de contrôle est la contrainte normale à l'écoulement  $P$  (souvent la gravité). La fraction volumique  $\phi$  est alors libre de s'adapter à la condition d'écoulement. Dans la limite des écoulements quasi-statiques (où le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  est proche de la valeur nulle), le matériau tend à approcher d'un *état critique* [115] caractérisé par une fraction solide  $\phi_c$  et un coefficient de frottement interne  $\mu_c$ . Ainsi, un matériau dense ( $\phi > \phi_c$ ), cisailé sous contrainte constante, se dilate pour atteindre cette valeur critique  $\phi_c$  et rejoindre son état d'équilibre. Par opposition, un système lâche ( $\phi < \phi_c$ ) doit se contracter pour atteindre  $\phi_c$ .

Lorsqu'un granulaire sec est soumis à un écoulement, un nombre unique sans dimension, appelé *nombre inertiel*  $I$ , régit le comportement du matériau :

$$I = \dot{\gamma} d \sqrt{\frac{\rho_s}{P}} \quad (1.12)$$

avec  $d$  le diamètre,  $\rho_s$  la masse volumique des grains et la pression de confinement  $P$ . Le nombre  $I$  peut être interprété comme le rapport  $d/\sqrt{\rho_s/P}$  entre l'échelle de temps pour que les grains se réarrangent en raison de la contrainte de confinement  $P$  et l'échelle de temps  $\dot{\gamma}^{-1}$  pour la

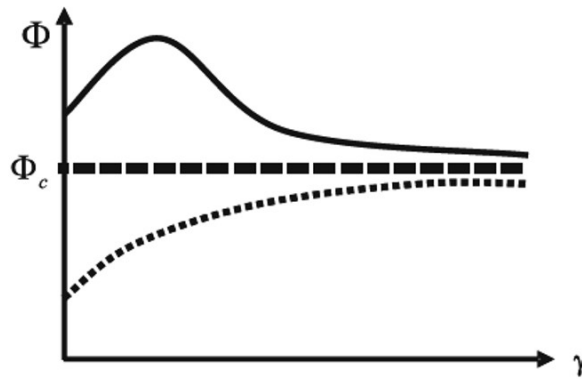


FIGURE 1.9 – Représentation schématique de la fraction solide  $\phi$  en fonction de la déformation appliquée pour un système dense (ligne pleine) et un état lâche (ligne en pointillés) D'après Lemaître et al. [80].

déformation par l'écoulement. Le nombre inertiel  $I$  a permis d'unifier en une seule loi phénoménologique de nombreuses données expérimentales et numériques pour une large variété d'écoulements transitoires [48, 109, 51].

Pour les écoulements lents denses [51, 47], le comportement rhéologique du matériau granulaire est alors bien décrit par seulement deux fonctions du nombre inertiel :

$$\begin{aligned}\sigma &= \mu_p(I)P \\ \phi &= \phi(I)\end{aligned}\tag{1.13}$$

Des simulations faites par Da Cruz et al. [30] montrent que le coefficient de frottement  $\mu_p(I)$  augmente lorsque  $I$  augmente tandis que la fraction volumique  $\phi(I)$  diminue.

Un des intérêts de l'utilisation du nombre inertiel  $I$  est de permettre une meilleure classification des régimes d'écoulement. Les petites valeurs de  $I$  correspondent au régime quasi-statique de la mécanique des sols (c'est-à-dire  $\phi(I) \xrightarrow{I \rightarrow 0} \phi_c$ ), tandis que les grandes valeurs de  $I$  correspondent au régime de collision. Les écoulements lents denses, intéressants pour comprendre les suspensions concentrées, correspondent alors à des valeurs modérées finies de  $I$  (généralement  $I \leq 0.1$ ).

### 1.4.2 Analogie avec les suspensions granulaires

Les matériaux granulaires ne font pas partie de la matière molle, mais de nombreuses situations rencontrées dans les fluides complexes hors équilibre (émulsions, mousse, suspensions colloïdales) posent des problèmes très similaires à ceux rencontrés dans les granulaires secs. Les suspensions granulaires concentrées sont des suspensions de particules non-browniennes immergées dans un fluide newtonien dont la taille dépasse la dizaine de microns. A cette échelle, l'agitation thermique, garantissant l'homogénéité d'un mélange pour des particules de l'ordre du nanomètre, joue un rôle négligeable. De la même façon, les forces d'interaction colloïdales

(de type électrostatiques ou Van Der Waals) deviennent insignifiantes face aux forces hydrodynamiques.

Selon Boyer et al. [13], la rhéologie des suspensions granulaires à faible nombre de Reynolds  $Re$  et l'écoulement dense de granulaires secs partagent des caractéristiques similaires. Ils ont introduit un *nombre visqueux* sans dimension  $I_v$  (substitué à  $I$  pour les granulaires secs) pour caractériser l'évolution du coefficient de frottement  $\mu_p(I_v)$  et de la fraction volumique  $\phi(I_v)$  des suspensions. La Figure (1.10) illustre la dépendance des deux paramètres clés  $\mu_p(I_v)$  et  $\phi(I_v)$  avec le nombre visqueux  $I_v$ . Les forces visqueuses étant dominantes sur l'inertie,  $I_v$  décrit maintenant le rapport des forces visqueuses sur les forces de confinement.

$$I_v = \frac{\eta_f \dot{\gamma}}{P} \quad (1.14)$$

Pour les écoulements rapides, une transition de la rhéologie contrôlée par  $I_v$  à la rhéologie contrôlée par  $I$  est attendue selon Lemaître et al. [80]. Cette transition a également été observée par Fall et al. [44]. En s'inspirant des études sur les écoulements de granulaires secs, des expériences réalisées à pression imposée par Boyer et al. [13] ont permis de montrer que les coefficients de friction  $\mu_p(I_v)$  et  $\mu(I)$ , ainsi que respectivement,  $\phi(I_v)$  et  $\phi(I)$ , avaient à peu près la même forme fonctionnelle.

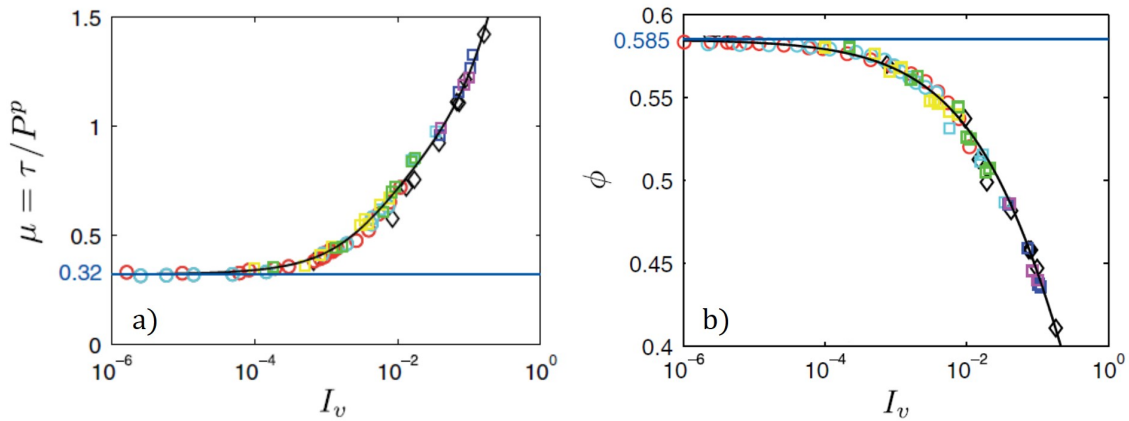


FIGURE 1.10 – Coefficient de friction (a) et fraction volumique (b) en fonction du nombre visqueux  $I_v$  pour différentes particules : sphères de PMMA 1.1 mm ( $\circ$ ), : sphères de PMMA 0.58 mm ( $\square$ ). D'après Boyer et al. [13].

En particulier, dans la limite quasi-statique, la valeur critique du coefficient de frottement  $\mu_p \approx 0.3$  et de la fraction volumique  $\phi \approx 0.6$  est identique pour les suspensions et les milieux granulaires secs [80], suggérant que le frottement interparticulaire joue le rôle principal dans les deux cas.

### 1.4.3 Dépendance de la fraction volumique de blocage $\phi_j$

Pour en revenir à la rhéologie à volume imposé des suspensions denses, il apparaît maintenant évident que la fraction de volume à l'état critique  $\phi_c$  pour les granulaires secs et la fraction de volume de blocage  $\phi_j$  pour les suspensions sont équivalentes. Dans une telle configuration, pour  $\phi > \phi_j$ , la seule façon pour une suspension de couler serait de se dilater. Cependant, comme le volume est imposé, le système est confiné empêchant la dilatation de se produire et provoquant la transition de blocage ou *shear-jamming*.

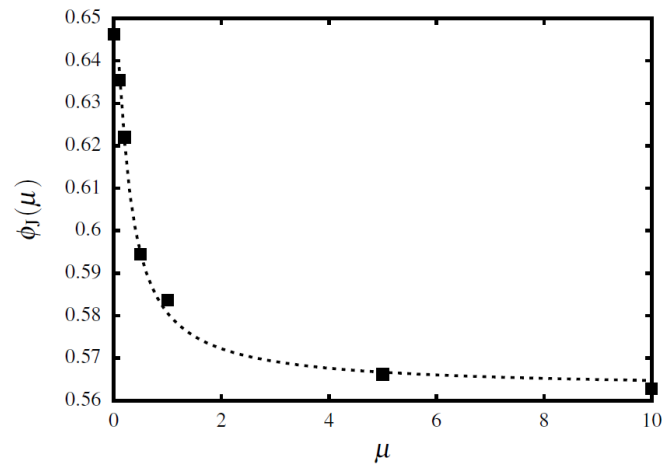


FIGURE 1.11 – Évolution de la fraction volumique de blocage  $\phi_j$  en fonction du coefficient de friction  $\mu_p$ . D'après Singh et al. [118].

En général, la fraction volumique de blocage  $\phi_j$  dépend de nombreux paramètres. On peut citer : la polydispersité, la forme et le coefficient de frottement  $\mu_p$  des particules [96]. Pour des sphères monodisperses,  $\phi_j(\mu_p)$  est une fonction décroissante monotone du coefficient de friction  $\mu_p$  comme illustré sur la Figure (1.11) [118]. La valeur de  $\phi_j$  peut alors aller de  $\phi_j^{\mu_p=0} = 0.64$  pour les particules sans frottement à  $\phi_j^{\mu_p \rightarrow \infty} = 0.54$  comme expliqué précédemment. La valeur  $\phi_j^{\mu_p=0} = 0.64$  est cohérente avec les travaux de Peyneau et Roux [109], qui ont montré par simulation des écoulements de sphères sèches sans frottement que la valeur de la fraction solide critique  $\phi_c$  reste égale au "Random Loose Packing" sans dilatance. D'autre part, Lespiat et al. [81] ont utilisé des bulles comme analogue d'une suspension de particules sans frottement. Ils ont utilisé un dispositif de plan incliné pour régler le rapport  $(\sigma/P)$  en imposant différents angles  $\theta$ . Ils ont pu mettre en évidence la transition solide/liquide de la suspension et trouvé une valeur de  $\phi_j$  proche de 0.64. Cette dépendance de  $\phi_j$  avec le coefficient de friction interparticulaire  $\mu_p$  joue également un rôle majeur dans la transition de rhéoépaississement, comme discuté dans la partie précédente [116].

### 1.4.4 Modification du coefficient de friction $\mu_p$

Le principal défi des suspensions granulaires dans l'industrie, par exemple lorsqu'il s'agit de matériaux du génie civil tels que les pâtes de ciment [120] ou les denrées alimentaires telles que le chocolat [11], est de pouvoir manipuler des suspensions aussi concentrées. Du point de vue physique, la valeur de  $\phi_j$  doit alors être aussi élevée que possible pour retarder au mieux la transition de blocage. Du point de vue de la formulation, lorsque cela est possible, on peut jouer sur la polydispersité [34, 124] et la forme des particules [61]. En effet, une augmentation de la polydispersité permet d'augmenter la valeur de  $\phi_j$ . Un autre moyen d'augmenter la valeur est d'abaisser la valeur du coefficient interparticulaire  $\mu_p$ .

En général, l'ajout d'additifs polymères ou tensioactifs à la solution [120, 12, 18] permet de décaler la transition de rhéoépaississement. Une fois adsorbée à la surface des particules, la couche de polymère permet de créer une barrière répulsive à faible coefficient de frottement, assurant ainsi une valeur élevée de  $\phi_j$  pour la suspension à faible contrainte. Le rhéoépaississement est alors observé à une contrainte critique qui dépend de l'amplitude de la barrière de force de répulsion créée par la couche de polymère [26]. Pour les particules adhésives, la même couche de polymère empêche les particules de s'agglomérer au repos [120].

Bien que le rôle du coefficient de friction soit maintenant bien compris [125, 91, 96] et qualitativement mis en évidence dans des études expérimentales [49, 60, 25, 26], il est souvent difficile de régler expérimentalement cette force de répulsion.

En fonction des besoins ou des matériaux utilisés, il n'est parfois pas possible de modifier la formulation en ajoutant un composé pour changer la valeur de  $\phi_j$ . Pour une formulation donnée, une autre façon de modifier le coefficient de friction  $\mu_p$  consiste à jouer sur la configuration de l'écoulement. En effet, comme les contacts n'existent que dans l'axe de compression, ces contacts peuvent être facilement ouverts par de petites perturbations. Une première façon simple d'imposer une perturbation consiste à superposer une oscillation de cisaillement orthogonal au cisaillement principal comme le montre la Figure (1.12) a). Lin et al. [84], Ness et al. [97] ont été capables d'abaisser la viscosité de deux décades et de déplacer la transition de rhéoépaississement d'une suspension vers des contraintes plus élevées. Dans ces derniers cas, des perturbations macroscopiques de l'écoulement sont considérées.

### Impact des vibrations

Une deuxième méthode pour perturber l'écoulement d'une suspension consiste à la faire vibrer [62, 64]. Partant d'une suspension de billes de verre sédimentées dans un mélange Emkarox-eau, initialement bloquée de part la présence d'un seuil de contrainte  $\sigma_y$ , Hanotin et al. [62] ont montré que les vibrations peuvent fluidifier le matériau, transformant la suspension plastique en une suspension visqueuse. A faible contrainte, ils observent un plateau visqueux qui dépend de la vibration appliquée. Plus les vibrations sont grandes, plus la valeur de la viscosité de plateau est faible. Au fur et à mesure que la contrainte augmente, les vibrations n'ont plus d'effet et la

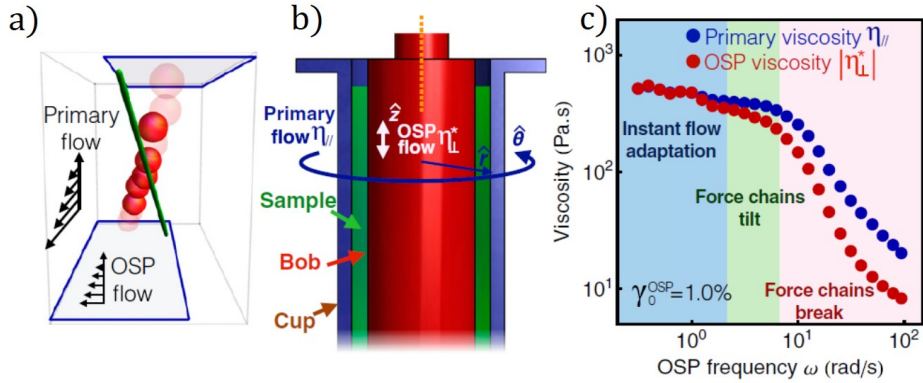


FIGURE 1.12 – a) Schéma montrant l'alignement de la chaîne de force pendant l'application des deux écoulements (primaire et orthogonal). b) Schéma de l'appareil expérimental montrant l'écoulement primaire et le module oscillatoire interne en rouge qui perturbe les chaînes de force. c) Viscosité primaire ( $\eta_r$ , points bleus) et viscosité complexe orthogonale (points rouges) en fonction de la fréquence d'oscillation  $\omega$  de la perturbation orthogonale. D'après Lin et al. [85].

viscosité reprend sa valeur initiale sans vibrations. Ce phénomène trouve son origine dans l'accélération différentielle entre les particules et le fluide. En effet, les contacts sont constamment renouvelés par les vibrations.

Plus récemment, Gaudel et al. [55] ont montré que les vibrations induisent un mouvement diffusif des particules, ce qui explique l'observation d'un comportement newtonien obtenu à bas cisaillement. Finalement, la viscosité de la suspension granulaire résulte d'une compétition entre la formation de contacts par cisaillement et la rupture de contacts par vibration. Comme nous le verrons dans le Chapitre 4, les vibrations peuvent être vues comme introduisant une force de répulsion entre les particules. Ces vibrations peuvent se quantifier sous la forme d'une contrainte de vibration qui vaut :

$$\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2 \quad (1.15)$$

où  $A$  et  $f$  sont, respectivement, l'amplitude et la fréquence des vibrations [62, 64].

A ce stade, il semble que les vibrations puissent supprimer la contrainte seuil de matériaux sédimentés. Mais qu'en est-il de l'impact des vibrations sur d'autres systèmes présentant un seuil de contrainte? Koch et al. [73] ont étudié l'impact des vibrations sur un fluide à seuil simple de type Carbopol (un polymère hydrosoluble utilisé comme agent émulsifiant). La Figure (1.14) compare une courbe d'écoulement (avec et sans vibrations) de deux matériaux : le Carbopol dans l'eau et des billes de verre immergées dans de l'huile silicone. L'étude démontre que les

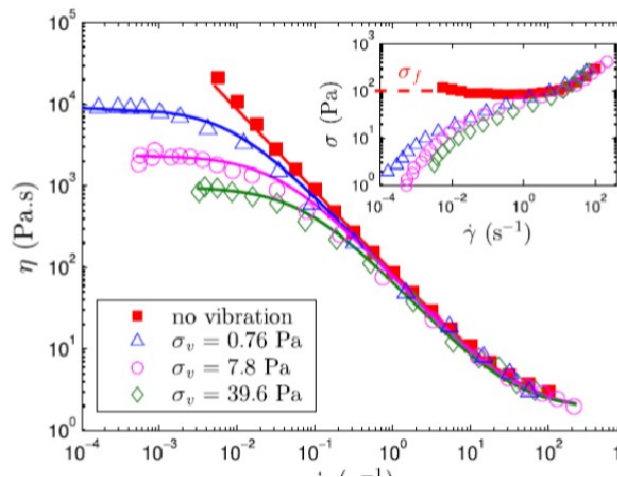


FIGURE 1.13 – a) Viscosité  $\eta$  en fonction de la contrainte appliquée  $\sigma$  à différentes contraintes de vibrations  $\sigma_v$  pour des billes de verre immergées dans un mélange Emkarox-eau. D’après Hanotin et al. [62].

vibrations ne permettent pas de supprimer la contrainte seuil du Carbopol contrairement au cas du granulaire humide. Ce résultat montre l’importance de la présence d’un réseau de contacts de particules au sein du granulaire. Ce sont les chaînes de force qui composent le squelette granulaire qui sont perturbées par les vibrations, entraînant la fluidification du matériau et la suppression de la contrainte seuil. On retrouve les conclusions faites précédemment par Hanotin et al. [62] sur le rôle des contacts.

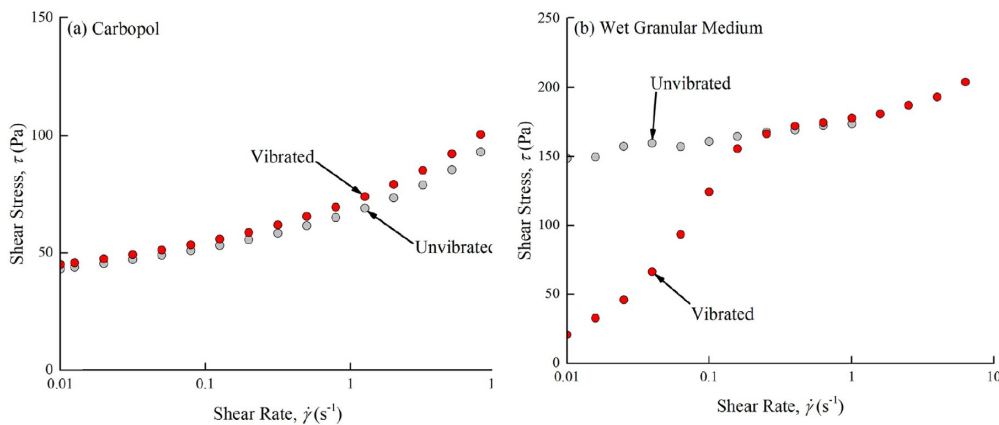


FIGURE 1.14 – Courbe d’écoulement avec la contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  soumis à des vibrations verticales pour a) un fluide à seuil classique (Carbopol dans l’eau) et b) un granulaire humide (billes de verre dans une huile silicone). D’après Koch et al. [74].

L’impact des vibrations apparaît également lors de la préparation des suspensions et de l’étude de la granulation et sera développé dans le Chapitre 2 [66].

---

On comprend alors que les vibrations sont un moyen efficace de perturber le réseau de contacts présent au sein d'un granulaire (humide ou sec), ce réseau de contacts étant lui-même relié au coefficient de friction  $\mu_p$  influant sur la fraction de blocage  $\phi_j$ . Il semble alors possible de modifier le coefficient de friction interparticulaire  $\mu_p$  à l'aide des vibrations et ainsi de pouvoir transformer des suspensions initialement bloquées en suspensions visqueuses. Au cours de cette thèse, nous sommes confrontés à des suspensions concentrées de particules non-browniennes présentant un seuil de contrainte  $\sigma_y$ . L'objectif est d'étudier la rhéologie de suspensions bloquées à fraction volumique  $\phi$  constante située au-delà de  $\phi_j$  et de comprendre, avec et sans vibrations, leurs comportements sous écoulement.





# Chapitre 2

## Matériels et méthodes

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>La silice</b>	<b>44</b>
2.1.1	La silice précipitée Solvay	44
<b>2.2</b>	<b>Caractérisation de la poudre sèche</b>	<b>46</b>
2.2.1	Taille de particules par granulométrie	46
2.2.2	Détermination de la surface spécifique	47
2.2.3	Caractérisation par microscopie	50
2.2.3.1	Microscopie électronique à balayage	50
2.2.3.2	Microscopie optique	52
<b>2.3</b>	<b>Calcul de la densité effective des particules</b>	<b>53</b>
<b>2.4</b>	<b>Formulation des suspensions</b>	<b>55</b>
2.4.1	Historique de la formulation	57
2.4.1.1	Une méthode de départ peu reproductible	57
2.4.1.2	Une nouvelle méthode plus douce?	58
2.4.2	La granulation, un peu d'histoire	58
2.4.2.1	La cohésion capillaire des grains	60
2.4.2.2	Compaction d'un milieu granulaire à l'échelle locale	61
2.4.3	La rhéologie des suspensions et la granulation	62
2.4.4	Influence du temps de vibrations	66
2.4.4.1	Ségrégation des petites particules par centrifugation	68
2.4.4.2	Test de formulation sous vibrations contrôlées	72
2.4.5	Le protocole final	72
2.4.6	Identification des deux fractions massiques caractéristiques	73

---

## 2.1 La silice

Le dioxyde de silicium  $\text{SiO}_2$  plus communément appelé silice, est un minéral et constitue près de 75% de l'écorce terrestre. Il existe sous différentes formes : amorphes ou cristallines. A l'état naturel, on retrouve la silice cristalline (quartz, cristobalite et tridymite) dans de nombreuses roches : granit, sable... Concernant les silices amorphes, elles sont la plupart du temps d'origine synthétique. Elles sont principalement retrouvées dans l'industrie comme agents épaississants pour la peinture et les résines ou encore dans la clarification de la bière et du vin. Par ailleurs, elles entrent dans la composition de produits de consommation quotidiens comme les produits cosmétiques, pharmaceutiques, pneumatiques, les dentifrices et additifs alimentaires.

### 2.1.1 La silice précipitée Solvay

L'utilisation de la silice précipitée comme charge de renforcement pour les gommages caoutchouc a été développée par Michelin au début des années 1990 [1] et représente aujourd'hui 80% de la production mondiale des silices synthétiques. Solvay est un acteur majeur dans la production mondiale de ces silices précipitées avec plus de 10 sites répartis sur divers continents notamment en Europe, Amérique et Asie. Au total, on estime la silice produite à 500 000 tonnes par an.

L'introduction de ces particules en remplacement partiel des noirs de carbone dans le pneumatique est une avancée écologique majeure. En effet, depuis le développement de ces nouveaux "pneus verts", la résistance au roulement a diminué de plus de 30%, entraînant ainsi une diminution des émissions de  $\text{CO}_2$  de 7% et une consommation de carburant réduite de 7% [3].

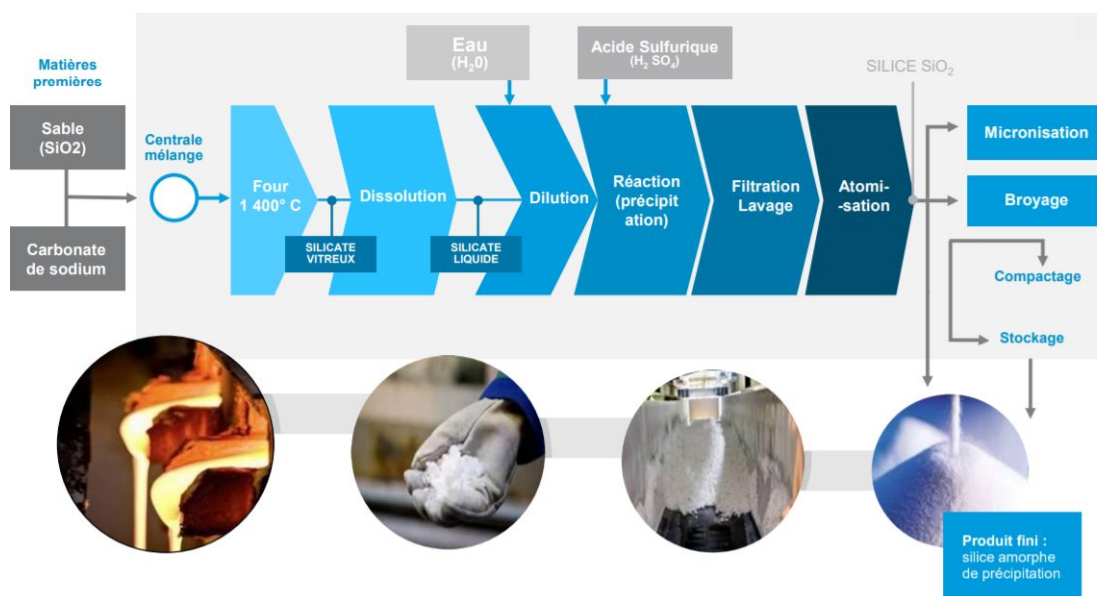
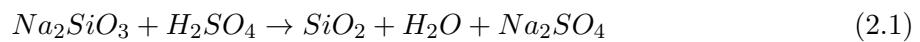


FIGURE 2.1 – Différentes étapes du procédé industriel de fabrication de la silice chez Solvay [3].

## Le procédé de synthèse industriel

L'ensemble du procédé industriel est présenté sur la Figure (2.1) et les différentes étapes sont détaillées ci-dessous. La première étape consiste à pyrolyser un mélange de sable très pur (sable de Fontainebleau) et de carbonate de sodium à très haute température (1400°C) pour obtenir l'élément de base : le silicate de sodium  $Na_2SiO_3$ .

Après dissolution et dilution, ce dernier est ensuite neutralisé par un acide minéral suivant l'Equation (2.1), suivi d'une réaction d'hydrolyse présentée sur l'Equation (2.2). Cette étape de précipitation est essentielle à la détermination de la morphologie des particules.



Par la suite, la polycondensation de l'acide silicique  $Si(OH)_4$  donne naissance à des germes de silice. La synthèse se poursuit en plusieurs étapes au cours desquelles, la taille et la structure de la silice sont définies :

- croissance : étape au cours de laquelle la taille des particules élémentaires est définie en fonction du pH de la solution ; l'ordre de grandeur typique de cette taille est 10 nm.
- agrégation : les particules élémentaires coalescent en formant des liaisons covalentes (Si-O-Si) pour former des agrégats de dimension allant de 40 à 80 nm. A ce stade, ces objets sont alors indestructibles par broyage.
- agglomération : ces agrégats s'agglomèrent à leur tour pour former des agglomérats par des liaisons plus faibles de type Van Der Waals. La taille de ces agglomérats varie de 5 à 10  $\mu$ m.

Par la suite, la silice est filtrée à l'aide d'un filtre presse. La filtration permet de contrôler la pureté finale de la silice après plusieurs lavages successifs. Le gâteau de filtration obtenu est redispersé dans l'eau avant la dernière étape. Le séchage par atomisation permettant d'obtenir des micro-perles (agglomérats de plusieurs centaines de micromètres facilitant son transport). La Figure (2.2) présente les différents niveaux de sous structures de la silice, de la formation des germes jusqu'à l'obtention de la micro-perle.

Pour notre étude, la silice (Tixosil T68b FCC) est issue du broyage des micro-perles obtenues après l'étape d'atomisation et mise en forme. L'utilisation de cette gamme de silice en particulier est un choix stratégique pour représenter au mieux l'état des particules avant l'étape de filtration lors de l'obtention du gâteau de filtration. Diverses techniques de caractérisations ont été utilisées pour étudier la poudre et sont détaillées dans la suite de cette partie.

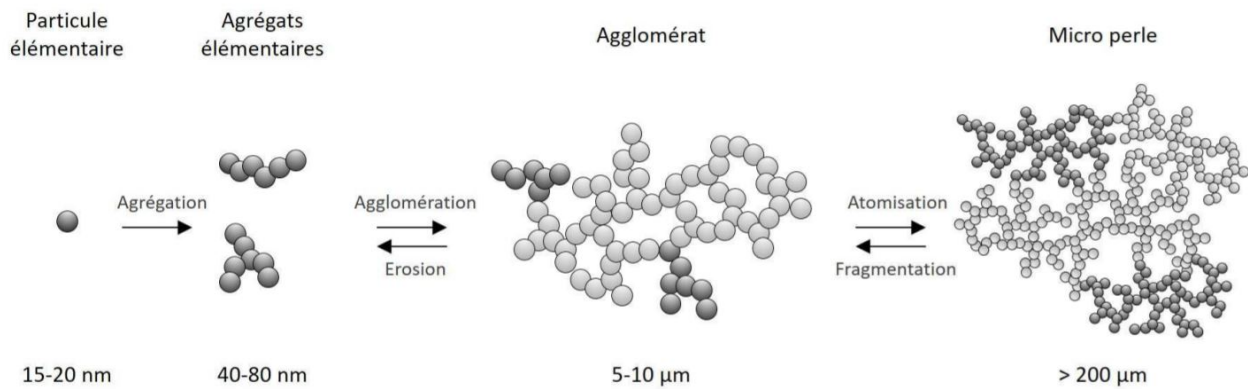


FIGURE 2.2 – Différentes échelles d’organisation des particules de silice au cours du processus de synthèse. [77].

## 2.2 Caractérisation de la poudre sèche

### 2.2.1 Taille de particules par granulométrie

La mesure de taille des particules a été systématiquement effectuée par granulométrie laser à l’aide d’un appareil Malvern Mastersizer 3000, combiné à un module de dispersion d’échantillons automatisé en voie liquide Hydro MV. Ce module est composé d’une sonde à ultrasons qui facilite la dispersion et d’une pompe centrifuge qui empêche la sédimentation. Il permet de faire circuler l’échantillon au travers d’une lentille située dans le granulomètre. Le Mastersizer 3000 utilise la diffraction laser pour mesurer la distribution granulométrique des particules ou encore la taille des particules. La gamme de mesure s’étend de 10 nm à 3.5 mm.

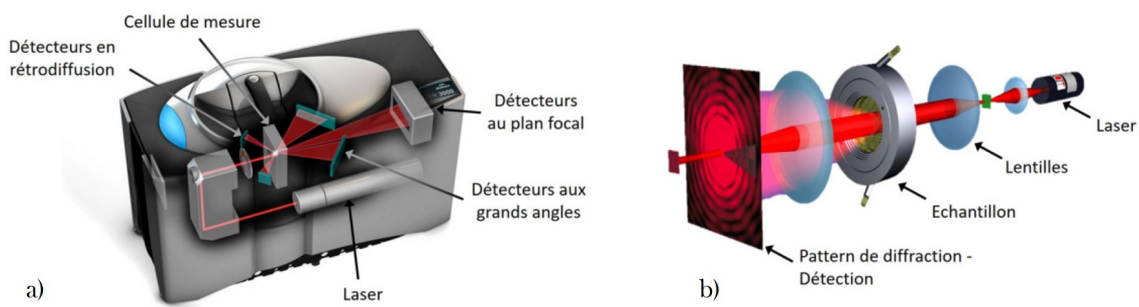


FIGURE 2.3 – a) Représentation du système optique du granulomètre Mastersizer 3000 et b) Illustration du phénomène de diffraction (issue du site Malvern).

Le principe consiste à mesurer l’intensité de la lumière diffusée lors du passage d’un faisceau laser à travers une particule. Ce laser combine deux longueurs d’ondes : 632 nm (rouge) et 470 nm (bleue). Chaque particule diffracte la lumière selon un angle qui est fonction de sa taille.

Les grosses particules diffractent la lumière à des petits angles alors que les petites particules diffractent aux grands angles.

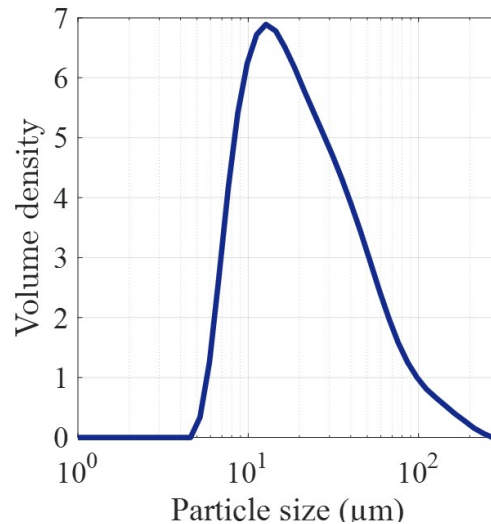


FIGURE 2.4 – a) Exemple de figure obtenue par granulométrie pour une suspension diluée de silice.

La lumière diffractée est recueillie par une série de détecteurs. La mesure de taille des grosses particules est assurée par un détecteur situé au plan focal, qui peut différencier des angles de diffractions très petits. La Figure (2.3) a) schématise le système optique du granulomètre. Pour les plus petites particules (inférieures à 100 nm), des détecteurs spécifiques aux grands angles ainsi qu'une source de lumière bleue sont privilégiés. L'image de diffraction obtenue est ensuite transformée en utilisant un modèle optique et une procédure mathématique appropriés (théorie de Mie ou théorie de Fraunhofer). Étant donné la forme des particules, on utilise un modèle adapté pour des particules non sphériques qui fournit un diamètre représentatif. Celui-ci est cohérent avec les données fournies par Solvay.

Le résultat, illustré sous forme de courbe semi-logarithmique, est une distribution de particules de silice en volume (diamètre d'une sphère de volume équivalent). La distribution granulométrique des particules a la forme d'une courbe en cloche signifiant que la distribution est grande. La courbe de granulométrie, présentée sur la Figure (2.4) permet d'évaluer le diamètre moyen  $D = 30 \mu\text{m}$ . La largeur de la distribution peut être définie comme  $(d_{90}-d_{10})/d_{50} = 2.7$ , avec  $d_x$  la taille en dessous de laquelle  $x \%$  de l'échantillon est contenu. La poudre de silice est fortement polydisperse comme une grande majorité des particules industrielles [10].

### 2.2.2 Détermination de la surface spécifique

La surface spécifique se définit comme la surface disponible par unité de masse et s'exprime en  $\text{m}^2/\text{g}$ . La méthode couramment utilisée pour sa détermination est la méthode d'adsorption

de gaz de Brunauer-Emmet-Teller (BET). L'analyse a été faite sur un appareil Gemini VII - de chez Micromeritics présenté sur la Figure (2.5). Cette technique permet de remonter à l'aire de la totalité de la surface d'une particule, y compris la surface des pores ouverts. Le principe repose sur les phénomènes d'adsorption d'un gaz inerte sur des particules poreuses. On peut alors définir une quantité de gaz adsorbée en une mono couche à la surface et obtenir un isotherme d'adsorption pour remonter à la valeur finale de surface spécifique.



FIGURE 2.5 – Appareil de mesure de surface spécifique.

Avant toute mesure, il est nécessaire de préparer la poudre. Pour cela, on procède à un dégazage de l'échantillon dans un tube en verre sous vide pendant deux heures à 120°C avec un appareil Vac Prep 061 de chez Micromeritics. Ensuite, la masse de l'échantillon est relevée pour l'introduire plus tard dans le calcul de la surface spécifique puis le tube est placé dans l'appareil de mesure. Le but du dégazage est d'évacuer les molécules d'eau ou de CO<sub>2</sub> présentes dans la structure poreuse de la poudre. Une fois la préparation terminée, le tube est mis en place à côté d'un second tube en verre vide servant de référence. Les deux tubes sont immergés dans un bain réfrigérant composé d'azote liquide à -195 °C.

Un modèle de sorption a été développé par Brunauer, Emmett et Teller pour décrire le volume  $V$  de gaz adsorbé à la surface du solide :

$$V = \frac{V_m K a}{(1 - a)(1 + (K - 1)a)} \quad (2.3)$$

que l'on peut réécrire sous la forme :

$$\frac{a}{V(1 - a)} = \frac{K - 1}{KV_m} a + \frac{1}{KV_m} \quad (2.4)$$

où  $V_m$  est le volume d'une monocouche adsorbée,  $K$  la constante d'équilibre pour la première couche et  $a = P/P_0$  l'activité.

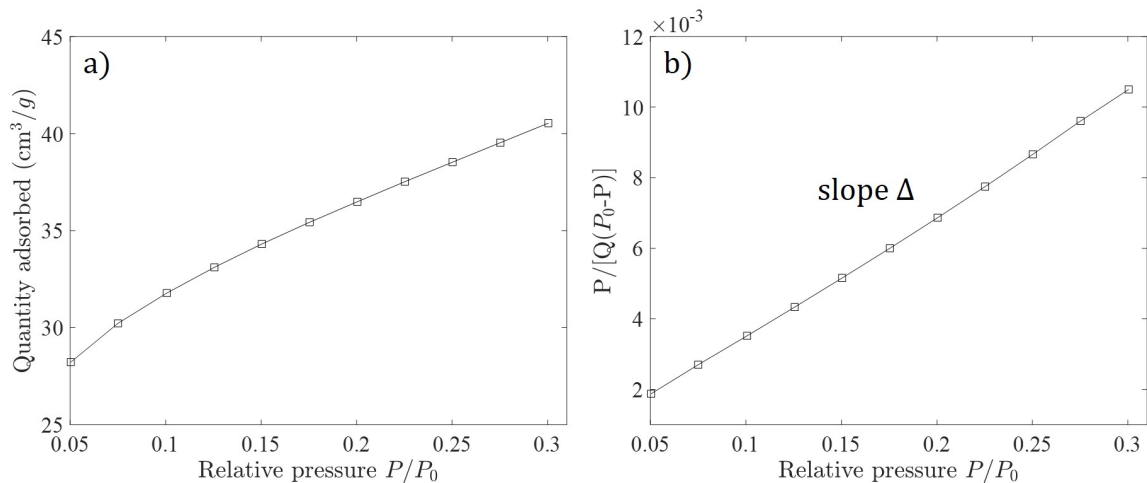


FIGURE 2.6 – a) Exemple d'isotherme d'adsorption obtenu pour des particules de silice. b) Données de sorption linéarisées par l'Equation (2.4).

La quantité d'azote adsorbée  $Q$  est tracée en fonction des pressions relatives  $P/P_0$  où  $P$  est la pression d'adsorption et  $P_0$  la pression saturante sur la Figure (2.6) a).

La Figure (2.6) b) présente les données de sorption linéarisées à l'aide de l'Equation (2.4). La pente  $\Delta$  s'exprime donc en  $\frac{K-1}{KV_m}$  et l'ordonnée à l'origine  $I = \frac{1}{KV_m}$  permet de remonter au volume d'une monocouche adsorbée  $V_m$ .

$$V_m = \frac{1}{\Delta + I} \quad (2.5)$$

La surface spécifique est alors obtenue grâce à l'équation suivante :

$$S_{BET} = \frac{V_m N_a S_{N_2}}{V_{N_2}} \quad (2.6)$$

avec  $N_a$  le nombre d'Avogadro,  $S_{N_2}$  la section efficace d'adsorption des molécules gazeuses d'azote et  $V_{N_2}$  le volume molaire du gaz adsorbé.

Nous pouvons ainsi remonter à la valeur de la surface spécifique pour la poudre de silice sèche qui vaut  $150 \text{ m}^2/\text{g}$ . A titre de comparaison, la surface réelle d'une poudre constituée de grains non poreux est la somme des surfaces des grains qui peuvent être aisément calculées pour des grains sphériques. Ainsi, on peut calculer la surface spécifique comme la surface totale des particules élémentaires divisée par la masse du matériau (ici la silice).

En supposant qu'une particule de rayon  $r$  soit sphérique et non poreuse, la surface spécifique est le rapport de la surface de la particule sur la masse d'un grain :

$$S = \frac{4\pi r^2}{\frac{4}{3}\pi r^3} = \frac{3}{\rho r} \quad (2.7)$$

avec  $\rho = 2.1 \cdot 10^6 \text{ g}/\text{m}^3$



Connaissant la surface spécifique, ici  $S = 150 \text{ m}^2/\text{g}$ , on peut remonter au rayon  $r$ , estimé à environ 10 nm. Cette valeur correspond à la taille des particules élémentaires présentes dans un grain de silice.

Plus la surface spécifique d'un corps est grande, plus sa capacité d'adsorption augmente, les molécules gazeuses disposant d'une surface plus importante pour se déposer. Pour donner un ordre d'idée, la surface spécifique du ciment est d'environ  $1 \text{ m}^2/\text{g}$  et celle du noir de carbone de 150 à  $300 \text{ m}^2/\text{g}$ .

### 2.2.3 Caractérisation par microscopie

Les méthodes d'analyse ci-dessus présentent l'avantage d'être quantitatives et représentatives de nos échantillons. Cependant, afin de visualiser la morphologie et la structure de la silice à différentes échelles, divers outils de microscopie ont été utilisés.

#### 2.2.3.1 Microscopie électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage permet d'observer une palette très large d'échantillons : échantillons massifs ou pulvérulents, conducteurs ou isolants, solides ou liquides, anhydres ou hydratés.

#### Microscopie à balayage classique

La microscopie électronique à balayage (MEB) a été utilisée pour observer la poudre sèche de silice. Ce microscope dit "de paille" est un Hitachi TM-1000 opérant à différentes tensions d'accélération : 5kV, 15 kV ou EDX. En fonction du type d'image et de précision que l'on recherche, l'un des trois modes sera privilégié. Pour une meilleure résolution, la tension de 15 kV sera choisie. En effet à 5 kV, le faisceau d'électrons ne pénétrant pas autant l'échantillon, les détails de surface seront mis en avant. Le mode "EDX" (Energie Dispersive de rayon X) permet de réaliser une analyse quantitative locale des matériaux. Dans notre cas, la tension de 15 kV a servi pour l'acquisition des images des particules.

Le MEB est composé d'un canon produisant une source d'électrons ainsi que de plusieurs condenseurs (lentilles) qui vont permettre de focaliser le faisceau sur l'échantillon. Au contact des électrons avec la surface des matériaux, différentes interactions électrons-matière vont se produire. Les principales interactions vont générer des électrons secondaires (de faible énergie), issus du choc entre les électrons primaires et les atomes de l'échantillon. Ils sont ensuite amplifiés, détectés et convertis en un signal électrique. Cet enchaînement est réalisé en chaque point de l'échantillon par un balayage du microscope. L'ensemble des signaux permet de reconstruire la topographie de l'échantillon et de fournir une image finale.

La préparation des échantillons peut être contraignante dans certains cas. Par exemple si l'échantillon n'est pas conducteur, il doit être déshydraté puis subir un traitement pour le devenir à l'aide d'un métalliseur. La métallisation consiste à déposer sur l'échantillon une fine couche (de

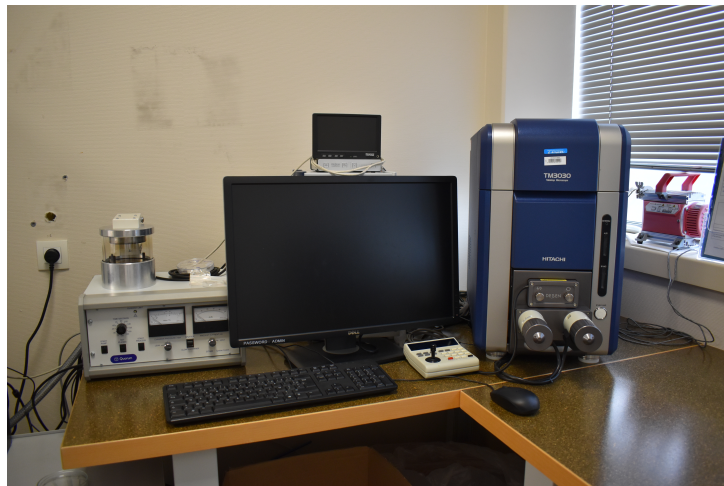


FIGURE 2.7 – Photographie du microscope électronique à balayage de paillasse

quelques nanomètres) d'atomes arrachés à un morceau de métal (or ou tungstène). L'échantillon est ensuite placé sur le porte-objet avant d'être introduit dans l'appareil.

Les photographies obtenues pour nos particules de silice sont présentées sur la Figure (2.8). Comme annoncé plus haut, les particules sont issues du broyage de micro-perles, on s'attend alors à obtenir des particules de formes très variées et non sphériques. La forme des particules est très irrégulière et semblable à celle d'un grain de sable. La distribution de taille est grande comme nous l'avons vu dans la section précédente avec les mesures de granulométrie.

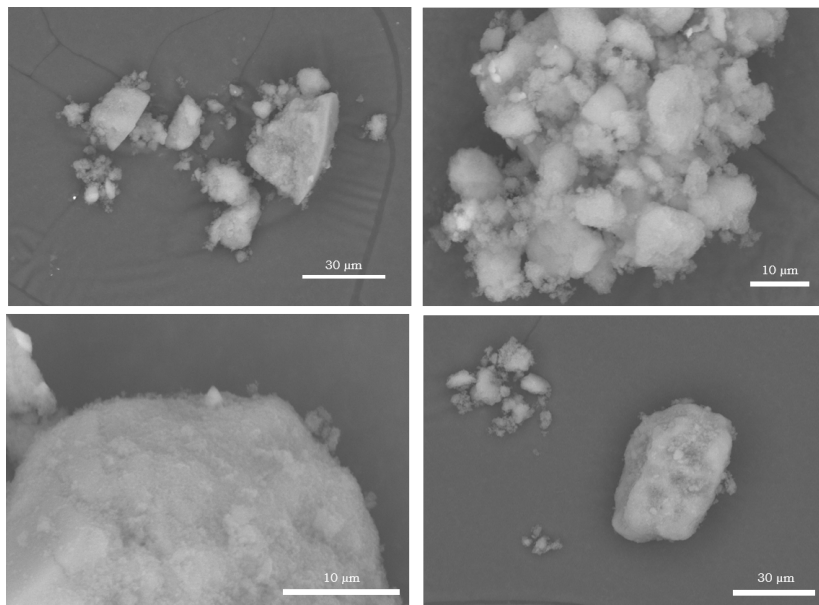


FIGURE 2.8 – Images obtenues de la poudre de silice Tixosil T68b à l'aide d'un microscope électronique à balayage.

## Cryo-microscopie à balayage haute résolution

Pour compléter l'observation de la structure multi-échelle des particules de silice, des images en cryo-microscopie ont été réalisées sur une suspension. L'acquisition de ces images a été faite par Philippe Legros, ingénieur en microscopie à PLACAMAT. Cette plateforme basée à Pessac est spécialisée en techniques d'analyses par imagerie et spectrométries appliquées à la caractérisation des matériaux. L'appareil utilisé est un SEM-FEG HR (JEOL 6700F) de chez Jeol, Ltd. Contrairement au microscope utilisé au LOF, dont la source est thermoïonique (flux d'électrons provenant du tungstène), cet appareil possède une source à effet de champ plus brillante. Le rapport signal sur bruit est donc bien plus important et permet d'obtenir des images avec une résolution très fine, de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Avant d'être placé dans l'appareil, l'échantillon est congelé à la température de l'azote liquide ( $-180^{\circ}\text{C}$ ) puis transféré sous vide sur la platine du microscope, elle aussi refroidie à la même température.

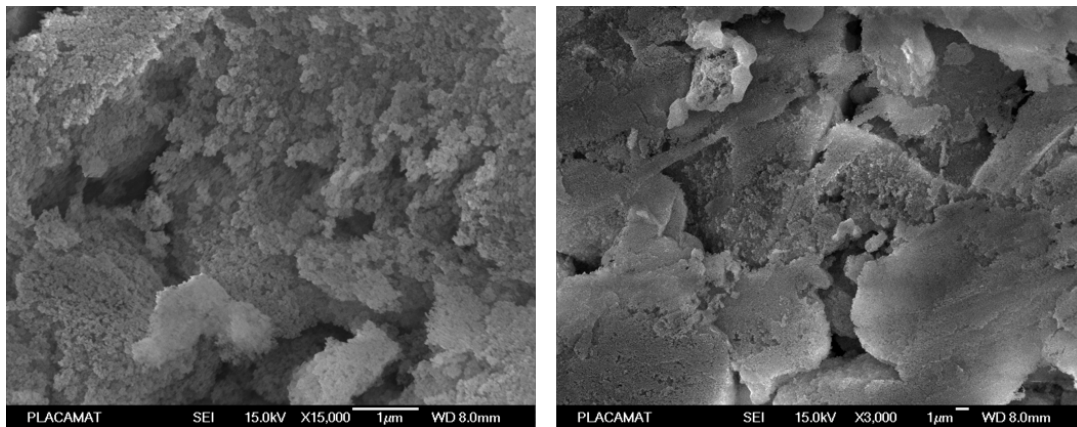


FIGURE 2.9 – Photographies d'une suspension de silice  $\phi^{\text{wt}}=0.29$  cryogénisée à  $-180^{\circ}\text{C}$  obtenues par microscopie électronique à balayage haute résolution.

La surface est composée de particules élémentaires comme le montre la Figure (2.9), de quelques nanomètres de diamètre qui définissent ainsi la rugosité de la particule de silice. Ces agrégats élémentaires s'organisent en un réseau dense possédant une dimension fractale  $D_f = 2.6$  [78] et forment à plus grande échelle une particule de silice comme le montrent les clichés réalisés ci-dessus.

### 2.2.3.2 Microscopie optique

Une dernière méthode de caractérisation avec un microscope optique a été réalisée. Il permet d'observer des échantillons invisibles à l'œil humain ou difficilement observables. Il est composé de deux lentilles : un objectif et un oculaire. Le microscope optique est un microscope Olympus IX73.

Dans cette configuration, il est possible d'observer l'état d'agrégation des particules. Pour ces particules, aucune force d'attraction n'est visible car il ne semble pas qu'elles se collent les

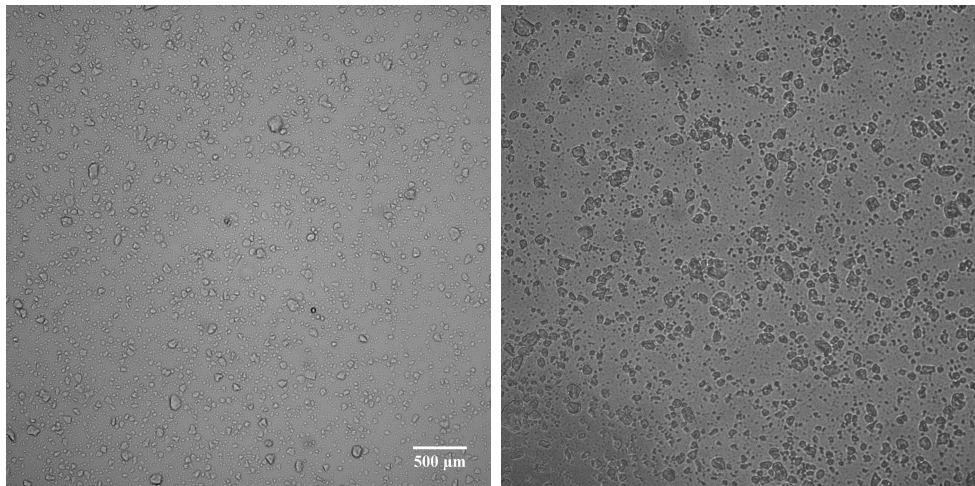


FIGURE 2.10 – Gauche : Image de particules de silice diluées dans l'eau obtenue par microscopie optique. Droite : après ajout de 4g de sel  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ .

unes aux autres. La présence de sel de type  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ , supposé écranter les charges, ne fait aucune différence. Pour s'en assurer, 4g de sel a été ajouté pour atteindre la saturation. L'image de droite sur la Figure (2.10) présente l'état des particules après cet ajout. Les particules ne semblent pas s'agréger davantage en présence de sel, confirmant ainsi que la quantité initialement présente est négligeable.

## 2.3 Calcul de la densité effective des particules

Nous avons vu que la silice est constituée d'agglomérats fractals. Une particule est donc composée de deux parties. Une première dite solide qui occupe un certain pourcentage du volume total et la seconde constituée de pores occupés soit par l'eau, soit par l'air.

Elle présente ainsi deux densités :

- la densité réelle correspondant à celle de ses éléments constitutants,
- la densité apparente qui tient compte des volumes de pores.

La densité  $d$  d'un matériau se définit comme le rapport de sa masse volumique sur la masse volumique de l'eau soit :

$$d = \rho / \rho_{\text{eau}} = \frac{m/V}{m_{\text{eau}}/V_{\text{eau}}} \quad (2.8)$$

La densité est une grandeur sans unité. Pour les particules de silice, la densité réelle est de 2.1. Cette valeur provient de la fiche de données de sécurité de la Tixosil T68b fournie par Solvay. Elle a également été vérifiée à l'aide d'un pycnomètre à hélium au Laboratoire des Composites ThermoStructuraux (LCTS) de Pessac.

La valeur de la fraction massique dans l'état le plus dense ou *Random Close Packing*  $\phi_{rcp}^{\text{wt}}$ , pour les particules de silice a pu être déterminée de façon empirique en formulant une suspension

sous vibrations jusqu'à atteindre saturation du milieu et l'obtention d'un mélange poudre/eau impossible à homogénéiser. Ce résultat sera détaillé dans la section suivante. On trouve alors une valeur  $\phi_{rcp}^{wt} = 0.3$ .

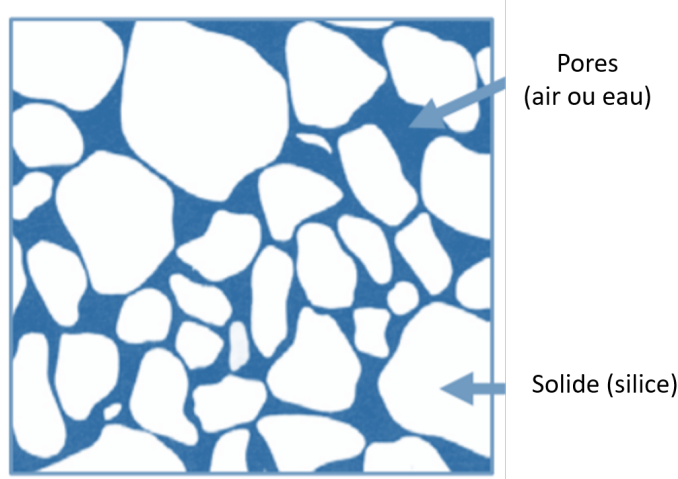


FIGURE 2.11 – Représentation schématique de l'intérieur d'une particule effective de silice.

En ce qui concerne la fraction volumique en particules effectives, on peut attendre une valeur de l'ordre de  $\phi_{rcp} \approx 0.7$  (ordre de grandeur attendu pour des particules polydisperses). Par déduction, on a une valeur de fraction volumique en eau libre de  $\phi \approx 0.3$ . Du fait de la grande porosité des particules, on peut décomposer une nouvelle fois la structure en deux parties : une proportion  $x$  % d'eau piégée au sein de l'agglomérat parmi le volume d'eau total ajouté et une proportion de solide comme le schématise la Figure (2.11). Pour cela, on écrit tout d'abord la formule de la fraction volumique en particules effectives (incluant l'eau piégée) :

$$\phi_{rcp} = \frac{\frac{m_p}{\rho_p} + x \frac{m_e}{\rho_e}}{\frac{m_e}{\rho_e} + \frac{m_p}{\rho_p}} = 0.7 \quad (2.9)$$

En sachant que la fraction massique en silice au random close packing est :

$$\phi_{rcp}^{wt} = \frac{m_p}{m_p + m_e} = 0.3 \quad (2.10)$$

avec  $m_e$  la masse d'eau,  $\rho_e = 1 \text{ g/cm}^3$  la masse volumique de l'eau,  $m_p$  la masse de particules et  $\rho_p = 2.1 \text{ g/cm}^3$  la masse volumique des particules.

En injectant l'Equation (2.10) dans l'Equation (2.9), on se retrouve avec :

$$x = 0.7 + \left( \frac{0.7}{\rho_p} - \frac{1}{\rho_p} \right) \frac{m_p}{m_e} \quad (2.11)$$



Après calcul, on peut en déduire que la proportion  $x$  d'eau piégée dans les particules est de 64 %. Ainsi, parmi toute la quantité d'eau distillée ajoutée, environ deux tiers sont captées par les particules et seulement un tiers se trouve dans l'eau libre.

On considère maintenant  $y$ , la proportion de particules solides au sein d'une particule effective. La fraction volumique s'exprime de cette façon :

$$\phi^{vol} = \frac{m_p/p_p}{m_p/p_p + m_e/p_e} = y \quad (2.12)$$

En injectant l'Equation (2.10), on se retrouve avec une proportion de solides d'environ 17 %. Il suffit maintenant de calculer la densité apparente en prenant la proportion de chaque composant (eau et particules). On obtient l'expression suivante :

$$\rho_{app} = \frac{y}{0.7} \rho_p + \frac{0.7 - y}{0.7} \rho_e \quad (2.13)$$

Au final, on se retrouve avec une densité apparente des particules de l'ordre de 1.26. Cette valeur n'est bien sûr qu'une estimation.

## 2.4 Formulation des suspensions

De nos jours, la formulation est omniprésente dans de nombreux domaines d'applications tels que la peinture, les cosmétiques, les pneumatiques et constitue l'un des secteurs clés de l'industrie chimique. Le but est d'obtenir un produit avec des propriétés fonctionnelles précises. Lorsqu'on parle de formulation, l'un des principaux aspects à prendre en compte est le mélange. En effet, le choix du procédé de mélange est important pour obtenir une suspension homogène. De manière générale, un mélange est considéré homogène lorsqu'on ne peut distinguer les différents constituants à l'oeil nu après agitation. La répartition entre le fluide et le solide est uniforme dans l'ensemble de l'échantillon. Cette notion d'homogénéité reste vague et possède de nombreuses définitions.

Par exemple, lorsqu'on travaille sur des matériaux avec des densités différentes, la sédimentation des particules est inévitable. Le mélange permet ainsi de maintenir l'homogénéité face à cette sédimentation. Une autre façon de qualifier un mélange d'homogène est de considérer que les particules qui le constituent sont distribuées de façon aléatoire. Si la probabilité de trouver une particule est la même en tout point du mélange, pour une taille d'échantillon donnée, alors le mélange est homogène [65].

Le mélange est un bon moyen de contrôler le niveau d'agrégation et l'aspect d'une suspension. En fonction de la durée de formulation, une poudre solide peut se transformer en une suspension homogène après quelques minutes de mélange [23]. Ceci est particulièrement vrai dans le secteur du BTP, pour la conception du béton comme illustré sur la Figure (2.12). Le choix du type de mélangeur est également important.

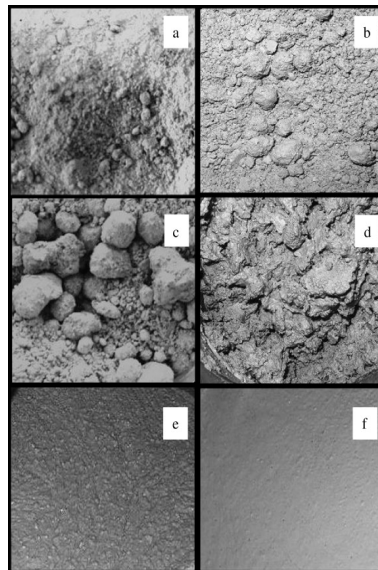


FIGURE 2.12 – Évolution du mélange de béton à haute performance SCC à différents temps de mélange : a. 0 '30, b. 1 '30, c. 2 '00, d. 3 '00, e. 6 '00 and e. 8 '00 après le début d'incorporation du liquide. D'après Cazacliu and Roquet [23]

En fin de compte, le mélange d'une suspension est une étape primordiale dans la formulation, que ce soit en terme de propriétés microscopiques ou macroscopiques, le système obtenu peut être complètement différent.

La suite de ce manuscrit se focalisera uniquement sur une composition basée sur deux éléments : la silice et l'eau. Aucune modification de surface ou de changement de solvant n'ont été effectués. La poudre utilisée est issue d'un même lot de silice amorphe produit et importé directement de l'usine Solvay basée aux États-Unis. Le solvant employé a été choisi selon les problématiques rencontrées lors du procédé de formulation, plus précisément au cours de l'étape de filtration/lavage où cette dernière est suspendue dans l'eau, sous forme de suspensions moyennement concentrées. Le solvant est une solution aqueuse contenant 0.5 wt% de sulfate de sodium  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ . Ce sel, présent sur la surface de la silice, provient de la réaction de précipitation (Equation (2.1)) avant de se dissoudre lors de sa mise en solution. Au vu de la faible quantité de sel présente, les potentiels effets seront négligés. Cette affirmation a été vérifiée en saturant la suspension en sel, on n'observe alors aucun changement de comportement.

L'objectif principal est d'obtenir une suspension homogène, avec un comportement reproductible et facilement manipulable, tout en ayant une concentration en silice suffisamment élevée pour reproduire, dans les conditions les plus proches, les suspensions obtenues avant les étapes de filtration/lavage.

## 2.4.1 Historique de la formulation

### 2.4.1.1 Une méthode de départ peu reproductible

Au début de ces travaux de thèse, la dispersion des particules dans l'eau se faisait à la main à l'aide d'une spatule. L'eau distillée est pesée en amont dans un contenant, avant d'y ajouter progressivement les particules de silice. Pendant cette phase d'incorporation, la solution est régulièrement mélangée afin de garder la suspension la plus homogène possible. Pour des faibles fractions massiques en particules, le mélange reste turbide et la suspension se comporte comme un fluide newtonien à l'échelle macroscopique. Une étude plus approfondie sur le comportement rhéologique de ces suspensions sera menée dans le Chapitre 3.



FIGURE 2.13 – Photographie d'une suspension de silice à  $\phi^{\text{wt}}=0.24$  présentant un seuil d'écoulement.

Lorsque la concentration augmente, la viscosité augmente et le matériau se comporte comme un solide plastique. De manière plus générale, ces matériaux ne s'écoulent qu'à partir d'une certaine contrainte, appelée seuil d'écoulement noté :  $\sigma_y$ . En dessous de cette contrainte, le matériau se déforme de manière réversible, il n'est pas possible de le faire couler. A l'inverse, si la contrainte appliquée est supérieure à  $\sigma_y$ , le matériau finit par s'écouler et se comporter comme un liquide. L'apparition de ce seuil d'écoulement est observable uniquement à partir d'une fraction massique, qui dans notre cas, vaut  $\phi^{\text{wt}}=0.24$ . La Figure (2.13) est une photographie d'une suspension de silice à cette fraction spécifique.

L'utilisation d'une spatule, bien que pratique, ne permet pas d'obtenir des matériaux identiques. D'un utilisateur à un autre, les suspensions ne sont pas reproductibles et des différences macroscopiques sont notables. Afin d'optimiser cette formulation, il est préférable de contrôler, au mieux, les différents paramètres d'agitation (type d'agitateur et durée de mélange) afin de



travailler dans les meilleures conditions.

Au-delà de  $\phi^{\text{wt}}=0.24$ , il n'est pas possible de préparer un matériau homogène sans y incorporer de l'air ou entraîner des fractures. Le matériau se trouve dans un état bloqué dit *jammed*, formant un mélange triphasique composé d'eau, d'air et de silice. Cet état est connu sous le nom de granulation et sera détaillé dans le paragraphe suivant.

### 2.4.1.2 Une nouvelle méthode plus douce ?

La méthode de mélange présentée par la suite a donné lieu à des découvertes fortuites sur le comportement du matériau. Elle a tout d'abord servi à développer le protocole de formulation détaillé ultérieurement. Mais plus important encore, elle a permis de donner une nouvelle direction à cette thèse et donner naissance au Chapitre 4.

L'appareil utilisé est un vortex Génie 2. Cet outil est très régulièrement utilisé en industrie pour les applications de mélange avec des exigences strictes ou spécifiques en terme de vitesse ou durée. Il effectue un petit mouvement de translation circulaire rapide, qui entraîne le récipient et mélange ainsi son contenu. La vitesse varie de 600 à 2700 tours/min. Pour notre formulation, la vitesse la plus élevée a été retenue, correspondant à une amplitude et fréquence de 5 mm et 45 Hz respectivement.

Contrairement à la partie précédente, le mélange des particules de silice dans l'eau s'est effectué au vortex. Une durée de 2 minutes 30 secondes a été fixée pour le temps de formulation. L'explication du choix de cette durée sera détaillée plus tard. D'un point de vue macroscopique, le matériau à  $\phi^{\text{wt}} = 0.24$  est beaucoup plus liquide que le matériau préparé manuellement à la spatule. Par curiosité, des particules de silice ont été ajoutées puis mélangées à nouveau avec le vortex. Initialement inhomogène et d'aspect granuleuse, la suspension est maintenant lisse et homogène après quelques secondes de vibrations. Cette opération a été réalisée plusieurs fois et le même phénomène est observé : la suspension semble désormais pouvoir être formulée à de très hautes fractions massiques. Ce point sera étudié en détail plus tard au cours de cette thèse. Grâce aux vibrations générées par le vortex, il semble possible de préparer des échantillons bien au-delà de la limite fixée précédemment à  $\phi^{\text{wt}} = 0.24$ . Cette première indication prouve que le matériau, initialement bloqué, peut se débloquent sous vibrations. Afin de mieux comprendre l'origine de l'apparition ou non de la granulation, une petite excursion dans la littérature s'impose.

## 2.4.2 La granulation, un peu d'histoire

Utilisée exclusivement dans le domaine pharmaceutique à ses débuts, la granulation s'est étendue à de nombreux secteurs industriels au fil des années. Que ce soit pour l'exploitation de mines, la métallurgie ou l'agro-alimentaire, tous intègrent la granulation dans leur procédé de formulation.

Par définition, la granulation permet d'assembler de fines particules solides, dispersées dans

un milieu gazeux ou liquide, afin de former des agglomérats solides entourés d'air, appelés granulés. Contrairement à notre cas où l'on souhaite un système diphasique, il s'agit d'un phénomène désiré. La littérature de la granulation peut cependant nous apporter des informations précieuses pour comprendre le comportement de nos assemblées de particules de silice.

De manière générale, la granulation est utilisée afin d'améliorer la processabilité d'une poudre et concevoir des granulés avec des propriétés physico-chimiques différentes du produit initial (distribution de taille, porosité, densité, etc..). L'intérêt de cette méthode peut être purement commercial, le produit présentant une meilleure esthétique, ou bien strictement technique. Parmi eux, on peut citer : la réduction de l'état pulvérulent émanant des poudres, l'amélioration des propriétés d'écoulement ou encore la minimisation des phénomènes de ségrégation.

Bien que certaines poudres cohésives s'agglomèrent spontanément par des forces physiques naturellement présentes dans le milieu (de type Van Der Waals), dans la plupart des cas, la granulation nécessite l'ajout d'un liant sous forme liquide ou sèche. Différents procédés de granulation existent selon les besoins et produits désirés.

### La granulation par voie sèche

La granulation par voie sèche s'effectue sans présence de liant ou à l'aide d'un agent liant sec (amidon, sucre, dérivés cellulosiques..). Cette méthode est privilégiée lorsque le produit est sensible à l'humidité et à la chaleur. Les granulés sont obtenus par compression à l'aide d'une presse à comprimés ou bien par compactage par roulement. La poudre est ensuite broyée puis calibrée pour ajuster la taille des granulés. Leur résistance mécanique est assurée par l'effet conjugué de la diminution de l'écart entre particules et de l'augmentation de leur surface de contacts.

### La granulation par voie humide

Dans le cas de la granulation par voie humide, une étape de mise en solution aqueuse est généralement utilisée pour assurer les liens entre particules, et est suivie d'un séchage. Aucune compression n'est appliquée. Des ponts liquides permettent la liaison entre les particules qui, après séchage, donnent naissance à des points solides assurant la cohésion des grains. En pratique, selon le degré de saturation, quatre états du granulé peuvent être distingués comme schématisés sur la Figure (2.14). A taux de saturation inférieur à 25 %, le liquide adsorbé se présente sous forme de grains retenus aux points de contacts des particules ; il s'agit de l'état *pendulaire*. Quand le taux de saturation dépasse 25 %, les grains coalescent et forment une continuité partielle du milieu interparticulaire. A ce stade, les grains sont à l'état *funiculaire*. L'état *capillaire* est atteint dès que l'espace interparticulaire est complètement rempli avec du liquide de mouillage, c'est-à-dire lorsque le taux de saturation s'approche de 100 %. Lorsque la saturation est supérieure à 100 %, la granulation cesse et donne naissance à une suspension dense en particules [99].

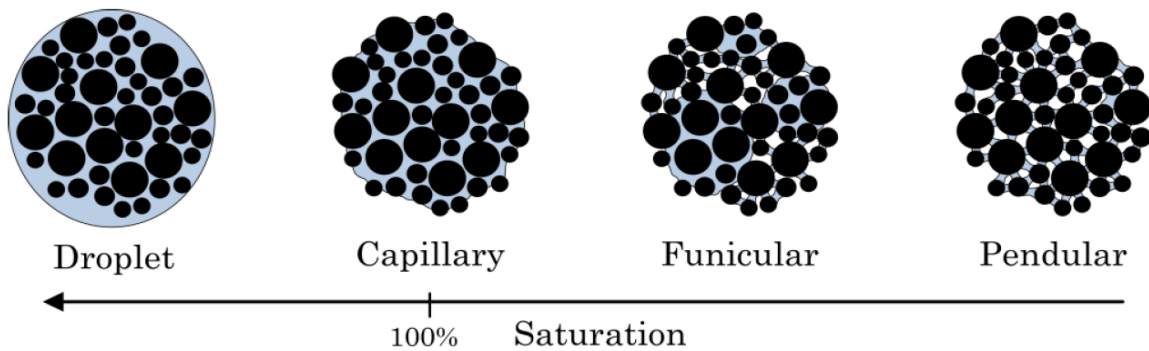


FIGURE 2.14 – Les différents types de granulés en fonction du taux de saturation en eau (%). D’après Hodgson et al. [66].

Les différents états présentés ci-dessus peuvent être corrélés avec les différentes phases obtenues lors de la vibration des suspensions au-dessus de  $\phi_m$ . En effet, avant l’application de vibrations, le mélange est loin de la saturation et se retrouve entre l’état pendulaire et funiculaire se traduisant par la présence de granulés. Par la suite, lorsque les vibrations sont appliquées, l’état de saturation devient de plus en plus important et la suspension se trouve dans l’état dit capillaire. A l’échelle locale, les grains sont partiellement mouillés par le liquide créant ainsi une certaine cohésion au sein du matériau.

#### 2.4.2.1 La cohésion capillaire des grains

La cohésion dans les milieux granulaires renferme de multiples origines possibles, aussi bien de type physique que chimique. Les mécanismes de cohésion sont pour la plupart des phénomènes à l’échelle locale qui permettent de lier des grains entre eux. Les forces de Van Der Waals, les forces électrostatiques et les liaisons chimiques sont des exemples bien connus dans la littérature. La compréhension de ces mécanismes constitue un enjeu majeur dans des domaines tels que la mécanique des sols ou encore la réalisation des bétons. Contrairement aux granulaires secs, les granulaires humides, de par la présence d’un liquide interstitiel, sont régis par une autre force : la force capillaire.

La présence d’eau au niveau des interstices entre deux grains engendre la création d’un pont liquide. L’interface liquide-gaz se comporte comme une membrane tendue qui a pour effet de maintenir les grains ensemble. Ces ponts liquides génèrent des forces capillaires attractives qui se manifestent à l’échelle macroscopique par une cohésion qui reste néanmoins relativement faible. En effet, la présence de ces ponts permet, entres autres, aux insectes de tenir à la surface de l’eau ou encore au château de sable de se maintenir tout seul (voir Figure (2.15)).

En considérant le cas de deux particules sphériques de même taille, la force capillaire  $F_{capillaire}$  s’exprime comme la somme de deux contributions : la différence de pression  $\Delta_p$  dans le pont liquide et la force due à la tension superficielle  $\Gamma$  :



FIGURE 2.15 – Exemples de phénomènes naturels du quotidien impliquant la présence d’une force capillaire.

$$F_{capillaire} = 2\pi r\Gamma + \pi r^2 \Delta_p \quad (2.14)$$

où  $\Delta_p$  est la différence de pression entre l’air et le liquide.

Cette différence de pression génère une attraction entre les grains et s’exprime à partir de l’équation de Young-Laplace [33] :

$$\Delta_p = p_{gaz} + p_{liquide} = \Gamma \left( \frac{1}{r} + \frac{1}{r^*} \right) \quad (2.15)$$

où  $r$  et  $r^*$  sont les rayons de courbure interne et externe du ménisque.

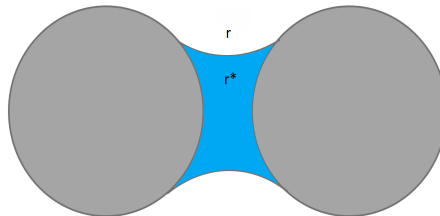


FIGURE 2.16 – Pont liquide formé entre deux grains de même taille.

### 2.4.2.2 Compaction d’un milieu granulaire à l’échelle locale

Scheel et al. [114] ont démontré que le réarrangement des grains, induit par les vibrations, entraîne une augmentation de la cohésion des grains. La coalescence des ponts liquides au sein d’un granulaire humide soumis à des tapes est représentée sur la Figure (2.17).

Au sein d’un milieu granulaire, les grains sont en contact les uns avec les autres tout en laissant un espace inoccupé appelé volume libre. L’arrangement de ces grains peut être modifié en appliquant une sollicitation mécanique extérieure. Les procédés couramment utilisés sont la compression uniaxiale ou la vibration verticale. Dans les deux cas, le même mécanisme gouverne : la compaction.[35, 110, 50].

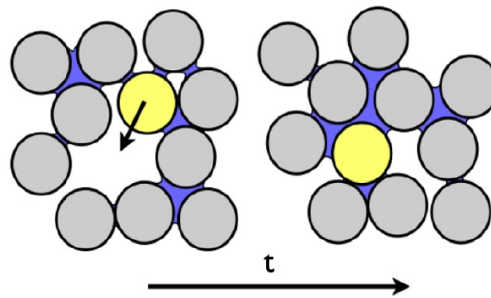


FIGURE 2.17 – Évolution des ponts liquides présents au sein d'un granulaire humide au cours du temps soumis à des tapes. D'après Fiscina et al. [50].

La compaction permet de créer des réarrangements successifs de grains afin de minimiser l'espace des pores, augmentant ainsi la densité du milieu. Il est alors possible de passer d'un état désordonné peu compact à un état compact organisé. L'un des paramètres clés, lorsqu'on parle de compaction, est la compacité. Elle représente le rapport du volume occupé par les grains sur le volume total :

$$\phi = \frac{V_{\text{grain}}}{V_{\text{total}}} \quad (2.16)$$

Knight et al. [72] propose une loi logarithme inverse pour décrire la compaction sous vibrations d'un granulaire d'un point de vue macroscopique. Cette loi dépend de la compacité initiale et infinie ainsi que du temps de relaxation  $\tau$  lui-même dépendant des caractéristiques des vibrations. Il fut l'un des premiers à mesurer la compacité  $\phi$  de billes de verre sphériques monodisperses en fonction de l'intensité de vibrations  $\Gamma$ . L'intensité de vibrations est définie comme le rapport de l'accélération  $a$  sur l'accélération gravitationnelle  $g$  selon l'expression  $\Gamma = a/g$ . La Figure (2.18) illustre l'évolution temporelle de la compacité de billes de verre monodisperses à différentes intensités.

Comme mentionné précédemment, l'ajout d'une quantité de liquide au sein d'un granulaire permet d'augmenter considérablement la cohésion des grains. La présence de ponts liquides entraîne l'augmentation de la tension de surface. Lorsqu'un granulaire humide est soumis à des vibrations ou des tapes  $t$ , Fiscina et al. [50] proposent que les ponts liquides formés coalescent peu à peu avec les grains voisins comme le montre la Figure (2.17). Cette coalescence est le résultat direct de la compaction des grains qui s'arrangent pour former un réseau compact et ordonné.

### 2.4.3 La rhéologie des suspensions et la granulation

Si la granulation est aujourd'hui un phénomène bien compris et étudié, son lien avec la rhéologie n'est pas aussi évident et reste encore à prouver. Ce lien "théorique" a déjà été mentionné dans la littérature [21][20] mais peu de preuves expérimentales ont été rapportées. Selon ces

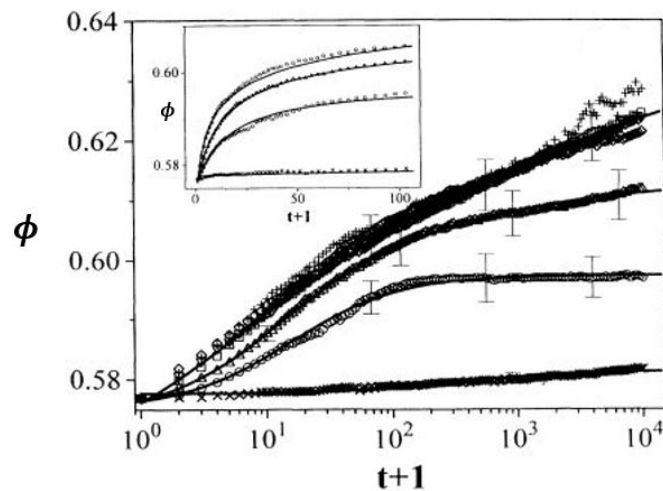


FIGURE 2.18 – Compacité  $\phi$  d'un granulaire sec en fonction du temps  $t$  à différentes intensités de vibrations  $\Gamma$ . L'intensité évolue de manière croissante du bas vers le haut et varie entre  $\Gamma = 1.4$  (X) et  $\Gamma = 5.4$  (+). D'après Knight et al. [72].

études, la granulation débute lorsque la fraction volumique en particules  $\phi$  est suffisamment importante pour que la viscosité de la suspension  $\eta$  diverge et que la rhéologie ne soit plus mesurable. Hodgson et al. [66] ont démontré que les conditions dans lesquelles apparaît la granulation peuvent être prédites par des mesures rhéologiques en étudiant l'impact de la contrainte appliquée à différentes fractions volumiques.

Le système étudié est une suspension de billes de verre industrielles de diamètre  $d = 7.2$   $\mu\text{m}$  dispersées dans un mélange d'eau/glycérol. Les contraintes sont appliquées avec deux méthodes d'agitation différentes. Pour de faibles contraintes, un vortex générant des contraintes de l'ordre de 0.5 Pa est utilisé [66]. A l'inverse, pour des fortes contraintes, un mélangeur à pales est privilégié ( $\tau = 10^5$  Pa). Les résultats sont illustrés dans la Figure (2.19). Selon la contrainte appliquée, les suspensions obtenues ont des aspects bien différents. L'effet de la fraction volumique en particules est également important à signaler. Trois régimes sont identifiés en fonction de  $\phi$ .

- \*  $\phi = 0.55$  (zone rouge) : la suspension se comporte comme un liquide, quelle que soit la contrainte appliquée.
- \*  $\phi = 0.65$  (zone jaune) : deux comportements en fonction de la contrainte. A haute contrainte, il en résulte des granulés solides formant un matériau inhomogène. En revanche, pour des faibles contraintes, la suspension est liquide et homogène. Si le mélange est de nouveau cisailé fortement, les granulés réapparaissent. Cette transition est donc réversible.
- \*  $\phi = 0.70$  (zone verte) : le matériau reste solide sous forme de poudre. La quantité de

liquide est trop faible pour obtenir une suspension homogène.

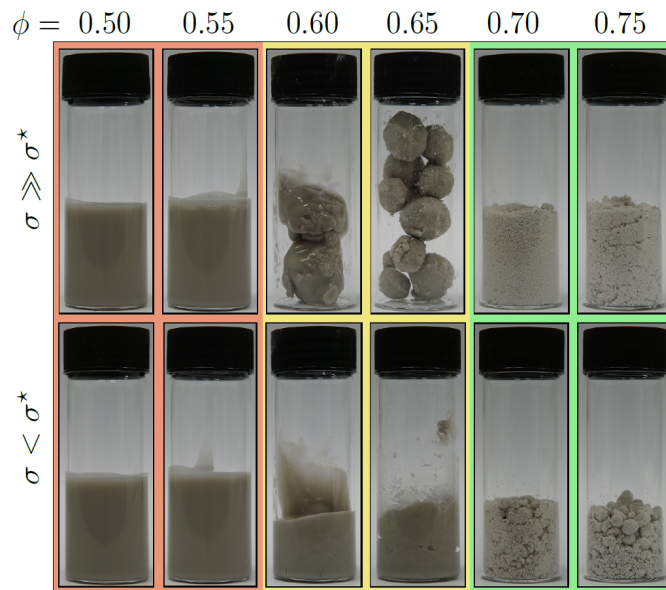


FIGURE 2.19 – Figure provenant de Hodgson et al. [66] montrant le résultat d'un mélange "high-shear" (ligne du haut) et "low-shear" (ligne du bas) sur des billes de verre répulsives dans un mélange d'eau et de glycerol à différentes fractions volumiques.

Ces trois régimes semblent délimités par deux fractions volumiques caractéristiques. Pour tenter de définir ces valeurs, des courbes d'écoulement ont été réalisées pour chaque fraction volumique. La viscosité du matériau augmente progressivement, transitant d'un plateau peu visqueux à faible cisaillement à un second plateau plus visqueux à haut cisaillement. Comme abordé dans le Chapitre 1, ce comportement est typique des matériaux rhéoépaississants et la transition s'effectue à une contrainte critique particulière notée ici  $\sigma^*$ .

La Figure (2.20) représente la viscosité relative  $\eta_r$  de chaque plateau récupérée en fonction de la fraction volumique  $\phi$ . L'insert correspond aux courbes d'écoulement à différentes fractions volumiques  $\phi$ . Le premier plateau visqueux à faible contrainte est représenté par les points rouges. Dans cette configuration, les particules circulent librement et les contacts interparticulaires sont lubrifiés, il n'y a donc pas de friction. La viscosité de la suspension  $\eta_L$  diverge à  $\phi = 0.662$ . Cette valeur représente la fraction volumique de blocage de la suspension non frictionnelle  $\phi_j^{(\mu_p=0)}$  notée  $\phi_{rcp}$  dans ce manuscrit.

Concernant le second plateau visqueux à haute contrainte, il correspond aux points noirs après la transition de rhéoépaississement. Une fois la contrainte critique  $\sigma^*$  surpassée, les contacts entre particules deviennent frictionnels. Le matériau peut toujours s'écouler dans un état très visqueux jusqu'à une certaine fraction volumique  $\phi_j$ . Si la quantité de particules dépasse  $\phi_j$ , le matériau n'est plus capable de s'écouler, on parle alors de transition de blocage ou « jamming ».



Macroscopiquement, cela se traduit par le passage d'un état liquide à la formation de granulés solides. La viscosité diverge à  $\phi = 0.568$  représentant la fraction volumique de blocage de la suspension frictionnelle  $\phi_j^{(\mu_p \neq 0)}$  notée  $\phi_m$  dans ce manuscrit. Ces résultats sont une première indication du lien entre la rhéologie et la granulation.

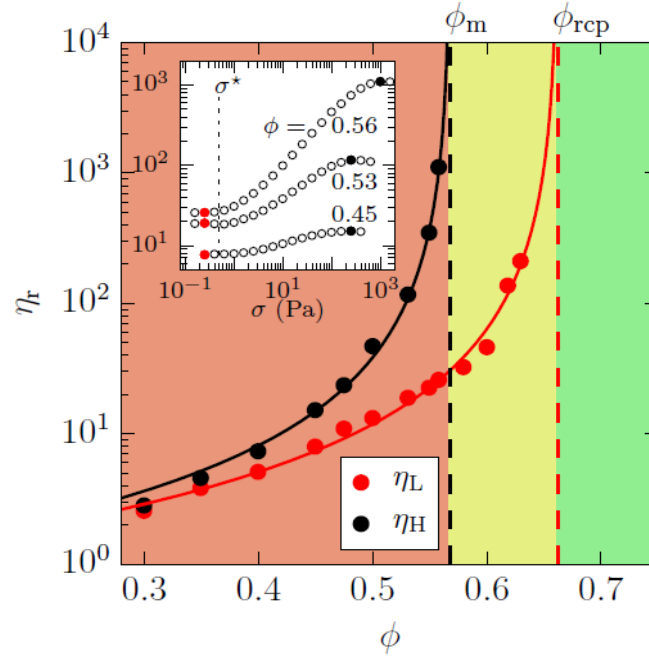


FIGURE 2.20 – Viscosité relative  $\eta_r$  en fonction de la fraction volumique pour une suspension de billes de verre d'environ  $10 \mu\text{m}$  de diamètre. La courbe rouge  $\eta_L$  ( $\bullet$ ) représente le matériau à faible contrainte alors que la courbe noire  $\eta_H$  ( $\bullet$ ) représente le matériau à haute contrainte. D'après Hodgson et al. [66].

Pour aller plus loin, Cates et Wyart [21] introduisent une contrainte de blocage  $\sigma_j(\phi)$  dépendante de la fraction volumique correspondant à la transition entre un état visqueux et bloqué entre  $\phi_m$  et  $\phi_{rcp}$ . Si on revient à notre problème de granulation, divers états sont possibles en fonction de la contrainte  $\sigma$ . Ainsi, pour une contrainte  $\sigma < \sigma_j(\phi)$ , le système reste fluide et homogène. Dans le cas inverse, une suspension subissant une contrainte  $\sigma > \sigma_j(\phi)$  sera dans un état bloqué piégeant les gouttes dans un état solide pour former des granulés comme le montre Hodgson et al. [66]. En effet, les particules présentes dans le mélange sont confinées par une pression capillaire de l'ordre de  $\Gamma_t/r_p$  avec  $\Gamma_t$  la tension de surface et  $a$  le rayon des particules. Si la contrainte générée par le cisaillement est plus grande que cette pression capillaire, les particules auront alors tendance à vouloir sortir de l'interface donnant cet aspect mat aux granulés.

Ces matériaux considérés comme "fragiles", forment un réseau de contacts le long de l'axe de compression. De part cette fragilité, l'application d'une faible contrainte incompatible ou anisotrope suffit à briser le réseau de contacts [22] [20]. Ainsi, n'importe quel moyen mécanique,



tel que tapoter ou secouer, permet de briser ce réseau. Le vortex générant des vibrations verticales est un bon candidat dans notre cas.

D'un point de vue industriel, la granulation ouvre de nombreuses possibilités dans le domaine de la formulation pour les produits chimiques, alimentaires et pharmaceutiques [11][123]. Le principal intérêt est de pouvoir contrôler la gamme de fractions volumiques où la granulation se produit en faisant varier les paramètres clés  $\phi_m$  et  $\phi_{rcp}$  par exemple. Plusieurs voies sont possibles notamment en ajustant la distribution de taille [95] ou la morphologie des particules [19]. Des simulations récentes montrent que  $\phi_m$  est très sensible au coefficient de frottement interparticulaire  $\mu_p$  [120][37][117]. Sur la base de tous ces éléments, le lien entre la rhéologie des suspensions et la granulation est maintenant irréfutable.

Comme nous l'avons observé sur la formulation des suspensions de silice, l'application de contrainte élevée avec une spatule par exemple, ne permet pas d'acquérir une suspension homogène mais plutôt un mélange de poudre et de granulés au-dessus de  $\phi_m$ . Cette observation est similaire à celle de Hodgson et al. [66] sur leur système. Par contre, l'application de vibrations au vortex permet de faire coalescer les granulés jusqu'à l'obtention d'une suspension lisse et homogène. Néanmoins, la perturbation d'un système par une énergie externe peut soulever quelques questions, notamment sur l'impact des vibrations sur les particules. On rappelle que ces particules sont des agglomérats d'agrégats fractals composés de particules élémentaires. Les vibrations ont-elles un effet sur les particules? La durée de vibrations est-elle un paramètre à prendre en compte?

#### 2.4.4 Influence du temps de vibrations

Une étude du temps de vibrations sur la suspension a été réalisée dans le but de définir la durée "idéale" de formulation mais également pour voir l'impact à l'échelle macroscopique et microscopique. Pour mener à bien cette étude, trois échantillons témoins ont été préparés avec des durées de formulation sous vortex plus ou moins importantes. Dans la suite de ce paragraphe, chaque échantillon sera numéroté 1, 2 ou 3 pour simplifier l'écriture. Les trois échantillons sont les suivants :

- **Echantillon 1** : une suspension à  $\phi^{wt} = 0.22$  formulée à l'aide d'une *spatule*,
- **Echantillon 2** : une suspension à  $\phi^{wt} = 0.29$  formulée à l'aide du *vortex* pendant 150 secondes qui sera diluée par la suite à  $\phi^{wt} = 0.22$ ,
- **Echantillon 3** : une suspension à  $\phi^{wt} = 0.29$  formulée à l'aide du *vortex* pendant 1200 secondes qui sera diluée par la suite à  $\phi^{wt} = 0.22$ .

Les échantillons 2 et 3 seront dans un premier temps comparés entre eux à la fraction massique  $\phi^{wt} = 0.29$ . L'échantillon 1 représente l'échantillon de **référence** étant considéré comme "non modifié" par les vibrations du vortex. Il permettra de comparer les résultats de granulométrie avec les autres échantillons dans un second temps.

Après formulation sous vibrations, leurs comportements macroscopiques sont relativement différents. En effet, les échantillons 2 et 3 ne s'écoulent pas de la même façon lorsque le contenant est incliné. L'échantillon 2 est un solide alors que l'échantillon 3 est totalement liquide. Pour un taux de cisaillement constant de  $\dot{\gamma} = 0.05 \text{ s}^{-1}$  appliqué, on note que l'échantillon 2 possède une viscosité apparente 100 fois plus élevée que l'échantillon 3. La concentration des deux échantillons étant identique, ces premiers résultats indiquent que des changements à l'échelle microscopique ont eu lieu.

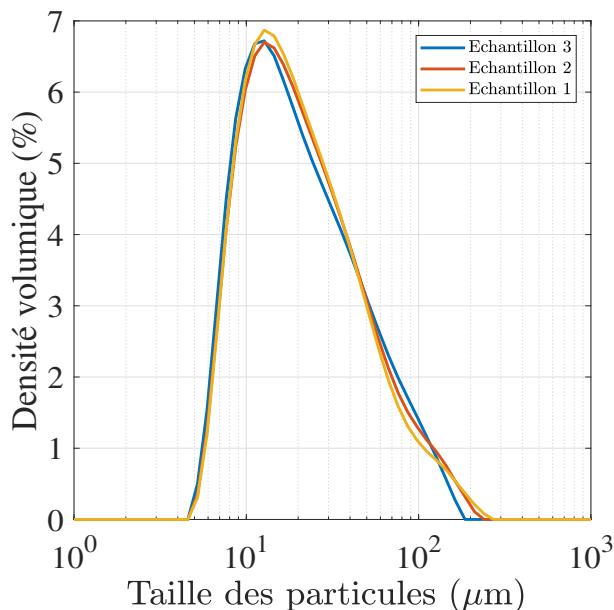


FIGURE 2.21 – Courbes de distribution de taille des particules de silice pour les trois échantillons après dilution.

Pour s'en assurer, des mesures de taille de particules ont été réalisées à l'aide d'un granulomètre Mastersizer 3000 de chez Malvern Panalytical. Le fonctionnement de cet appareil est détaillé dans le Chapitre 2 : Matériels et Méthodes. Afin de pouvoir comparer les échantillons avec la référence, il est nécessaire de les diluer à la même fraction massique en ajoutant de l'eau distillée. Une fois la même concentration atteinte, les mesures de granulométrie sont réalisées. A première vue, les trois échantillons semblent avoir la même distribution de taille comme le prouve la Figure (2.21). Les trois courbes sont *quasi* superposables si l'on néglige l'épaulement au niveau des tailles les plus grandes. L'existence d'un tel épaulement est due à la présence de micro-perles au sein du matériau comme le montre la Figure (2.22).

Le Tableau (2.1) récapitule les résultats obtenus en granulométrie laser. La valeur  $d[4,3]$  représente le diamètre moyen tandis que les valeurs  $d_{10}$ ,  $d_{50}$  et  $d_{90}$  donnent une idée de la distribution de taille des particules. Par exemple, si  $d_{10} = 9.05 \text{ μm}$ , cela signifie que 10% des grains (en volume) ont un diamètre inférieur à  $9.05 \text{ μm}$ . A partir de ces valeurs, il est possible de quantifier chaque distribution en utilisant le nombre sans dimension : Span. Le Span est un facteur

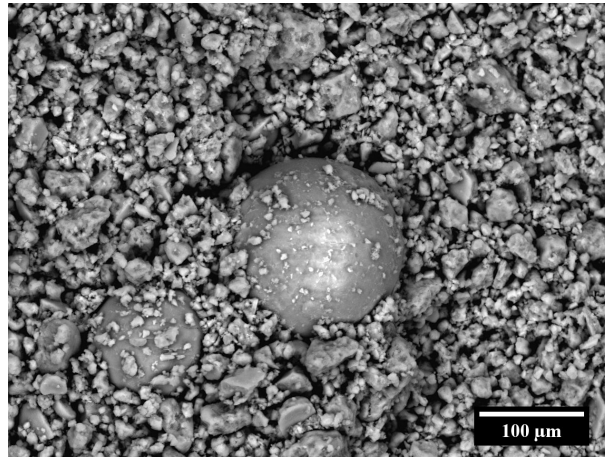


FIGURE 2.22 – Image d’une micro-perle de silice présente parmi la silice Tixosil prise à l’aide d’un microscope électronique à balayage.

$N^{\circ}$ éch.	$d[4, 3]$	$d_{10}$	$d_{50}$	$d_{90}$	Span
1	30.9	9.05	19.9	63.3	2.72
2	30.6	8.77	19.7	68.7	3.04
3	30.3	8.85	20.7	75.2	3.19

TABLE 2.1 – Tableau récapitulatif des données issues de la granulométrie laser. A l’exception du Span qui est un nombre sans unité, les données sont exprimées en micromètre.

caractérisant l’étalement de la distribution granulométrique : plus le chiffre est grand, plus la distribution est large. L’expression est la suivante :

$$\text{Span} = \frac{(d_{90} - d_{10})}{d_{50}} \quad (2.17)$$

Pour une formulation à la spatule, le Span vaut 2.72 alors que pour une formulation de 1200 secondes au vortex, la valeur est de 3.19. Pour résumer, plus la durée de formulation est grande, plus la distribution de taille est large.

#### 2.4.4.1 Ségrégation des petites particules par centrifugation

Les mesures de granulométrie laser effectuées ci-dessus ne suffisent pas à expliquer le changement spectaculaire de comportement macroscopique des divers échantillons. La granulométrie faite sur l’échantillon global n’est pas capable de faire la distinction entre les grandes et les petites particules. Les grandes particules occupant un volume plus important sont plus facilement détectables et écrantent les plus petites. De plus, le Span reste un paramètre purement arbitraire qui ne permet pas de quantifier la répartition des différentes populations.

Une deuxième approche plus quantitative est d'utiliser la centrifugation. Par définition, elle permet de séparer les constituants de taille et de masse différentes contenus dans un liquide. Toute particule présente au sein d'un liquide est soumise à deux forces : la gravité du haut vers le bas et la poussée d'Archimède du bas vers le haut. En centrifugeant, une nouvelle force apparaît : la force centrifuge. Elle s'exerce radialement vers l'extérieur de l'axe de rotation du rotor et entraîne le mélange dans un mouvement de rotation très rapide. Les particules les plus lourdes/grandes sont alors poussées vers les parois du tube pour former un sédiment alors que les particules plus légères/petites restent en surface, formant le surnageant. On peut alors séparer les différentes populations présentes au sein du mélange.

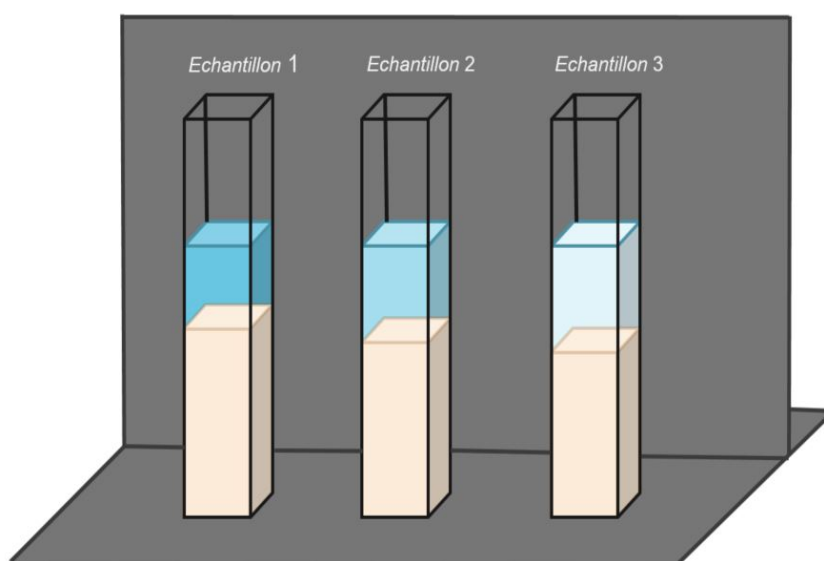


FIGURE 2.23 – Schéma représentant les trois échantillons après dilution et centrifugation. De gauche à droite, les surnageants sont d'autant plus turbides que les sédiments diminuent en proportion.

Les trois échantillons sont centrifugés à 4000 rpm pendant dix minutes pour s'assurer que la sédimentation est complète. Une fois terminée, le sédiment et le surnageant sont analysés macroscopiquement puis quantifiés par un extrait sec. Un premier élément important concerne les proportions de surnageant et de sédiment qui diffèrent d'un mélange à un autre comme schématisé sur la Figure (2.23). Le pourcentage de surnageant est d'autant plus grand que la durée de formulation est longue et inversement. Les données d'extrait sec ainsi que les proportions de surnageant/sédiments sont rassemblées dans le Tableau (2.2). L'extrait sec est réalisé à l'aide d'une Thermo-balance. Une quantité fixe de produit est pesée puis chauffée à 120 °C jusqu'à stabilisation de la masse, c'est-à-dire jusqu'à évaporation complète de l'eau. Le pourcentage obtenu (en masse) permet de déduire la quantité de particules présentes dans le surnageant. L'aspect du surnageant est également modifié. Pour l'échantillon 1, la solution est très claire

alors que pour l'échantillon 3, le surnageant est beaucoup plus turbide. Cela s'explique par la présence de petites particules qui diffusent davantage la lumière.

N° éch.	% surnageant	wt% surnageant	% sédiment	wt% sédiment
1	12	0.80	88	10
2	20	4.9	80	20.48
3	27	8.02	73	23.84

TABLE 2.2 – Tableau récapitulatif des données issues des extraits secs réalisés sur chaque échantillon.

En plus des extraits secs, chaque sédiment et surnageant est passé en granulométrie laser. La Figure (2.24) rapporte les distributions pour les trois échantillons. Les courbes bleues correspondent aux sédiments, tandis que les courbes rouges représentent le surnageant.

Concernant tout d'abord l'échantillon de référence ayant subi aucune vibration, les deux distributions sont relativement proches. On a donc une population de particules approximativement homogène. A l'inverse, les tailles de particules dans le sédiment et le surnageant des deux autres échantillons ont des ordres de grandeur bien différents. Le surnageant est composé de petites particules de l'ordre de 60 nm alors que le sédiment tourne autour de la dizaine de micromètres. La largeur de la distribution pour le sédiment diminue fortement avec la durée de vibrations. Cette diminution s'accompagne de la disparition de l'épaulement, initialement présent au niveau des tailles les plus grandes. Cette disparition s'interprète par une diminution de la distribution de taille pour la population de grandes particules.

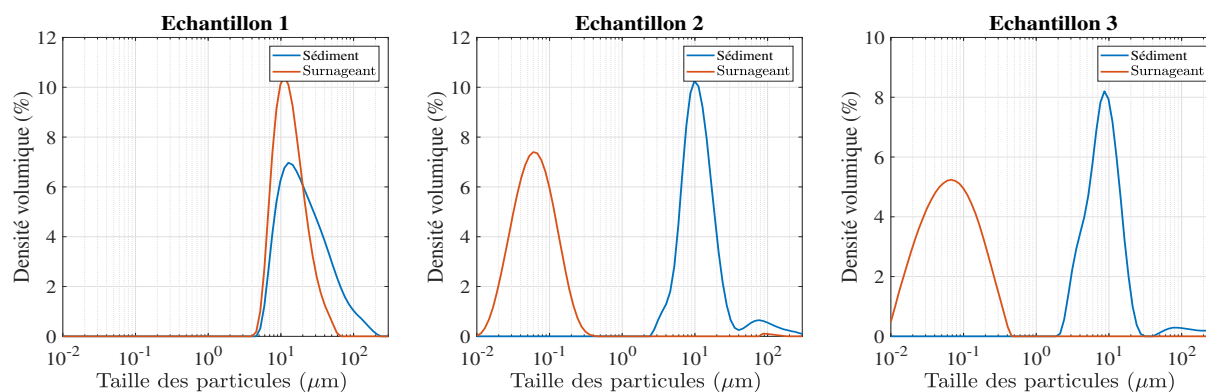


FIGURE 2.24 – Distribution de taille des particules dans les trois échantillons : pour le sédiment (courbe bleue) et le surnageant (courbe rouge).

L'effet de la durée de vibrations sous vortex semble influencer sur la distribution de taille des particules. En effet, lorsque le matériau est formulé à l'aide d'une spatule (échantillon 1), l'as-

semblage des particules est composé principalement d'agglomérats de particules de l'ordre d'une dizaine de micromètres avec une petite quantité de particules (0.8 wt%) agrégées se traduisant par une belle courbe en cloche. Lorsque la durée de formulation augmente, la quantité de petites particules devient de plus en plus importante, entraînant ainsi une augmentation de la largeur de la courbe en cloche et donc un accroissement de la polydispersité (Figure (2.24)). L'effet est d'autant plus marqué lorsque le matériau est vibré pendant 20 minutes. Le pourcentage massique de petites particules présentes dans le surnageant augmente considérablement, passant de 0.8 wt% à 8 wt%. La turbidité du surnageant de plus en plus prononcée est également une bonne indication de l'augmentation de population de petites particules.

Les vibrations générées par le vortex permettent le renouvellement des contacts, les particules entrent en collision et s'érodent entre elles du fait des fortes contraintes générées. Le fait de vibrer plus ou moins longtemps, augmente la probabilité de rencontre et donc d'érosion. La population de petites particules s'agrandit au détriment des grandes particules. Pour rappel, les particules de silice sont composées d'agrégats liés entre eux par des liaisons faibles. L'érosion des particules entraîne un détachement de ces agrégats et donc une diminution de la distribution de taille des grosses particules comme le montre la Figure (2.24). En d'autres termes, différents assemblages de particules sont possibles en fonction du temps de formulation. La Figure (2.25) illustre les diverses configurations obtenues en fonction du temps de vibrations. Cela reste une représentation schématique.

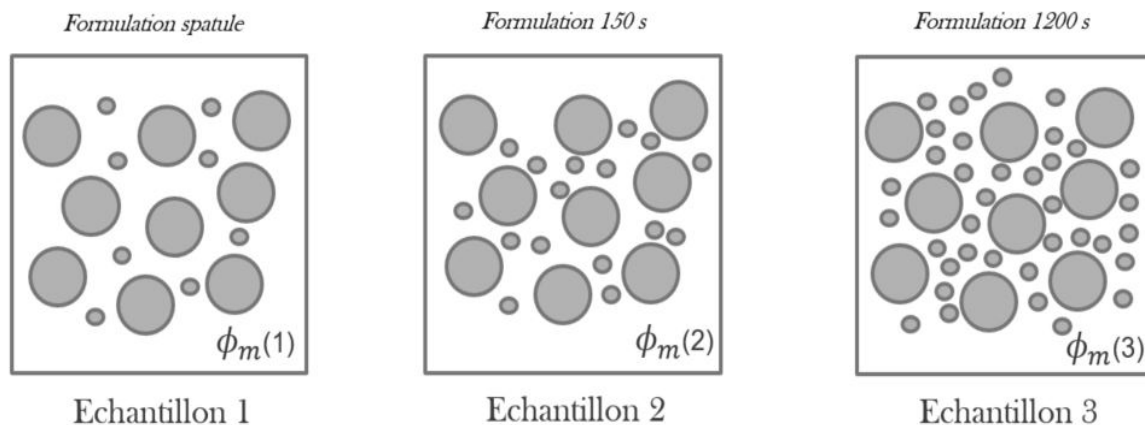


FIGURE 2.25 – Schéma représentant les différents types d'assemblage de particules en fonction du temps de formulation sous vortex.

Une question reste à élucider : pourquoi l'échantillon 3 est-il liquide ? La réponse est simple : l'arrangement des particules permet au matériau de mieux s'écouler et sa fraction massique maximale est augmentée. Cette observation est compréhensible dans la mesure où la viscosité évolue fortement avec la fraction volumique dans les suspensions concentrées. Un changement dans la distribution de taille d'une suspension entraîne, pour une même fraction volumique solide, une diminution de la viscosité, pouvant atteindre un facteur 50 [8]. Ainsi, pour une même

fraction volumique, la viscosité d'un système polydisperse sera plus faible que celle d'un ensemble monodisperse. Il en sera de même pour la fraction massique où la viscosité diverge  $\phi_m$  qui sera également plus grande.

#### 2.4.4.2 Test de formulation sous vibrations contrôlées

Contrairement au vortex où l'énergie ne peut pas être contrôlée de manière précise, le pot vibrant utilisé lors des mesures de rhéologie (qui sera présenté dans le Chapitre 4) peut générer des énergies de vibrations très précises et beaucoup plus faibles. En contrôlant à la fois la durée de formulation et l'énergie injectée, l'état initial des suspensions serait alors pratiquement identique pour chaque formulation. Pour ce test, une suspension de  $\phi^{wt} = 0.29$  est incorporée dans le pot sans mélange au préalable. L'image de gauche de la Figure (2.26) montre le mélange de poudre et eau avant l'application des vibrations. L'énergie de vibrations la plus élevée a été utilisée à savoir  $\sigma_{vib} = 15$  Pa. Cette énergie est environ 100 fois plus faible que l'énergie du vortex. L'amplitude du pot vibrant est de l'ordre du micromètre alors que celle du vortex est de l'ordre du millimètre.

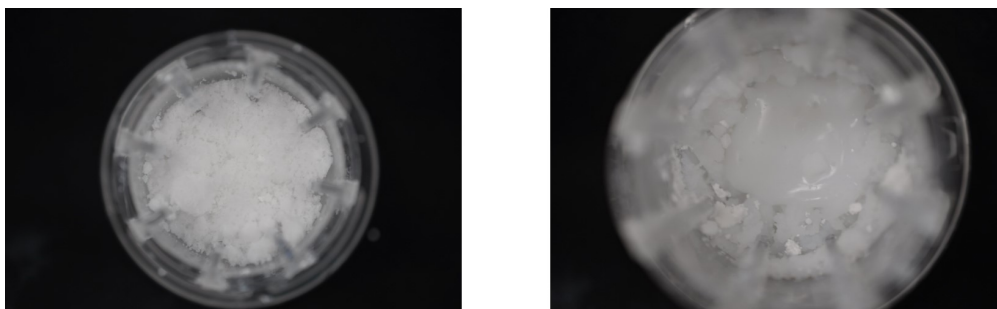


FIGURE 2.26 – Photographies d'une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  formulée à l'aide d'un pot vibrant avant (gauche) et après (droite).

Les photographies démontrent que les résultats obtenus ne sont pas satisfaisants. Malgré un mélange de plus de trente minutes sous vibrations, la suspension n'est pas homogène (image de droite). Les zones entre les chicanes restent sous forme de granules et ne semblent pas se mélanger au reste de la suspension. Les vibrations sont purement verticales, contrairement au vortex où les vibrations sont générées dans plusieurs directions. Il n'est donc pas possible de formuler des suspensions au-delà de  $\phi_m^{wt}$  avec le dispositif vibrant.

#### 2.4.5 Le protocole final

Après avoir passé en revue les différents paramètres pouvant influencer la formulation, le protocole suivant a été établi. Il est valable pour tous les échantillons utilisés dans la suite du manuscrit. Comme abordé précédemment, l'impact des vibrations sur la distribution de taille des particules est un élément à ne pas négliger. Il est important de fixer la durée de vibrations

pour caractériser une seule distribution de taille identique pour toutes les formulations. Cette durée a été fixée à 150 secondes avec une amplitude et fréquence de vibrations maximales : 45 Hz et 5mm. A noter que cette énergie de vibrations est 100 fois plus grande que l'énergie injectée lors des mesures rhéologiques qui seront présentées dans le Chapitre 4. Ces dernières n'auront donc aucun impact sur la distribution de taille.

Dans ces conditions, la fraction massique maximale pouvant être atteinte pour une suspension homogène est de  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . Par analogie avec les expériences réalisées par Hodgson et al. [66], cette fraction massique correspond à la fraction maximale proche du *Random Close Packing*. En outre, il est possible d'atteindre des concentrations en silice plus élevées, toutefois la durée de formulation sera beaucoup longue. Par exemple, pour formuler une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.35$ , le temps de vibrations nécessaire est de 20 minutes environ. En contrepartie, la distribution de taille sera différente, ainsi que la valeur de la fraction maximale qui passera à  $\phi^{\text{wt}} = 0.35$ .

En résumé, la silice est rajoutée petit à petit dans l'eau préalablement pesée jusqu'à atteindre  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ , puis la suspension est mélangée sous vortex pendant 150 secondes. Une fois obtenue, elle est caractérisée telle quelle, ou bien diluée à la concentration désirée puis mélangée délicatement à la spatule. L'intérêt principal est d'éviter à nouveau la vibration de la solution pour ne pas induire d'autres modifications de taille.

### 2.4.6 Identification des deux fractions massiques caractéristiques

De manière analogue aux résultats de Hodgson et al. [66] sur la granulation, on peut représenter les trois régimes possibles en fonction de  $\phi_m^{\text{wt}}$ ,  $\phi_{\text{rcp}}$  et du type de contrainte appliquée. Dans la configuration choisie, on a donc une estimation de la distribution de taille grâce aux mesures de granulométrie, avec un pourcentage de particules fines estimé à 6 % du volume total. La Figure (2.27) représente les trois régimes. Concernant la zone rouge à gauche, en dessous de  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.24$ , le matériau reste homogène. Il s'écoule comme un liquide et ne présente pas de seuil d'écoulement. Entre  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.24$  et  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} = 0.29$ , le matériau présente deux états d'équilibre en fonction de la contrainte appliquée. Si la formulation se fait à la spatule, le mélange n'est pas homogène et des granulés apparaissent (suspension de gauche). Au contraire, si la formulation est faite sous vortex, la suspension est homogène (à droite). Le passage d'un état à l'autre est réversible. Si on mélange à la spatule une suspension vibrée, elle se fracture et inversement. Au-dessus de  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , il n'est pas possible d'obtenir une suspension homogène (dans le temps fixé au préalable).

A partir des observations et affirmations faites précédemment, la valeur de la fraction massique de blocage pour des suspensions frictionnelles est estimée à  $\phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24$  et celle sans friction à  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . La quasi-totalité des expériences a été réalisée pour des fractions massiques comprises entre  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , c'est-à-dire dans la gamme de fraction massique où la suspension frictionnelle est *a priori* bloquée.





FIGURE 2.27 – Formulation de suspensions concentrées de silice à différentes fractions massiques.

## Conclusion

L'utilisation du vortex pour la formulation des suspensions concentrées a permis d'obtenir une large gamme d'étude de fractions massiques variant de  $\phi_m^{\text{wt}}=0.24$  à  $\phi_{rcp}^{\text{wt}}=0.30$ . Entre ces deux fractions massiques, les suspensions sont dans un état bloqué frictionnel. La préparation de cet état bloqué est plus facile à réaliser et moins sensible aux légères modifications de la composition du mélange. En calculant le rapport  $\phi_j(\mu_p)/\phi_j(\mu_p = 0) = \phi_m^{\text{wt}}/\phi_{rcp}^{\text{wt}}$ , on obtient une valeur  $\phi_m/\phi_{rcp} \simeq 0.8$ . A titre de comparaison, pour des sphères frictionnelles, ce rapport vaut  $\phi_m/\phi_{rcp} \gtrsim 0.9$ . Cette différence provient probablement de la forme irrégulière et de la grande rugosité des particules étudiées. Dans la littérature, le rapport  $\phi_m/\phi_{rcp} \simeq 0.8$  est également retrouvé pour des particules de fécule de maïs par Fall et al. [46].

La prochaine étape de ce manuscrit consiste à caractériser ces suspensions frictionnelles d'un point de vue rhéologique afin de mieux appréhender leurs comportements sous écoulement.

# Chapitre 3

## Rhéologie des suspensions de silice

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Les concepts de base en rhéologie . . . . .</b>	<b>76</b>
3.1.1	Cas d'un cisaillement simple . . . . .	77
<b>3.2</b>	<b>Les différentes géométries . . . . .</b>	<b>78</b>
3.2.1	Géométrie cône-plan . . . . .	78
3.2.2	Géométrie de Couette . . . . .	79
3.2.3	Géométrie vane . . . . .	81
3.2.4	Analogie de Couette . . . . .	82
<b>3.3</b>	<b>Comportement des suspensions en dessous de <math>\phi_m</math> . . . . .</b>	<b>83</b>
<b>3.4</b>	<b>Comportement des suspensions au-dessus de <math>\phi_m</math> . . . . .</b>	<b>85</b>
3.4.1	Protocole expérimental . . . . .	86
3.4.2	Fluide à seuil hétérogène . . . . .	87
3.4.3	Régime frictionnel stationnaire . . . . .	89
3.4.4	Origine du seuil d'écoulement . . . . .	90
3.4.5	Exemple de matériaux où la gravité domine $p_{grav}$ . . . . .	94
3.4.6	Exemple de matériaux où la capillarité domine $p_{cap}$ . . . . .	95
3.4.7	Diminution de la force capillaire $p_{cap}$ . . . . .	97
3.4.8	Effet Janssen . . . . .	98

---

### 3.1 Les concepts de base en rhéologie

La mesure des propriétés rhéologiques s'applique à tous les matériaux : des fluides tels que des solutions de polymères, jusqu'aux solides comme le bitume en passant par les pâtes et les crèmes. Pour mesurer les caractéristiques rhéologiques d'un fluide, on utilise un appareil de mesure appelé rhéomètre. Il permet de mesurer la contrainte et la déformation d'un fluide en fonction du temps en réponse à une sollicitation. Le matériau est confiné entre une partie fixe nommée stator et une partie mobile appelée rotor. La distance séparant les surfaces de l'échantillon est appelée entrefer noté  $H$ . Le rhéomètre impose un couple  $T$  et mesure la vitesse de rotation  $\Omega$  du rotor engendrée (contrainte imposée) ou vice versa en fonction du type de rhéomètre utilisé (contrainte ou déformation imposée). Le couple est relié à la contrainte  $\sigma$  appliquée sur le matériau et la vitesse de rotation au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . En fonction du type de géométrie choisi, les relations entre les différentes grandeurs varient comme nous le verrons ultérieurement.

Le rhéomètre utilisé au cours de cette thèse est un rhéomètre Kinexus Ultra + à contrainte imposée de la marque Netzsch (anciennement Malvern). Il peut toutefois fonctionner à taux de cisaillement imposé grâce à une boucle de rétroaction qui permet d'ajuster la contrainte appliquée au taux de cisaillement désiré. Il est équipé d'un dispositif à effet Peltier qui permet le contrôle de la température.



FIGURE 3.1 – Rhéomètre à contrainte imposée Kinexus Ultra + (image issue la brochure fournie sur le site Netzsch).

Plusieurs types de mesures sont possibles en fonction de l'application et des informations nécessaires : par exemple, le suivi de viscosité en fonction du taux de cisaillement pour obtenir une courbe d'écoulement afin d'étudier le comportement d'un matériau, ou encore, définir le comportement viscoélastique d'un échantillon en régime oscillatoire en appliquant une fréquence

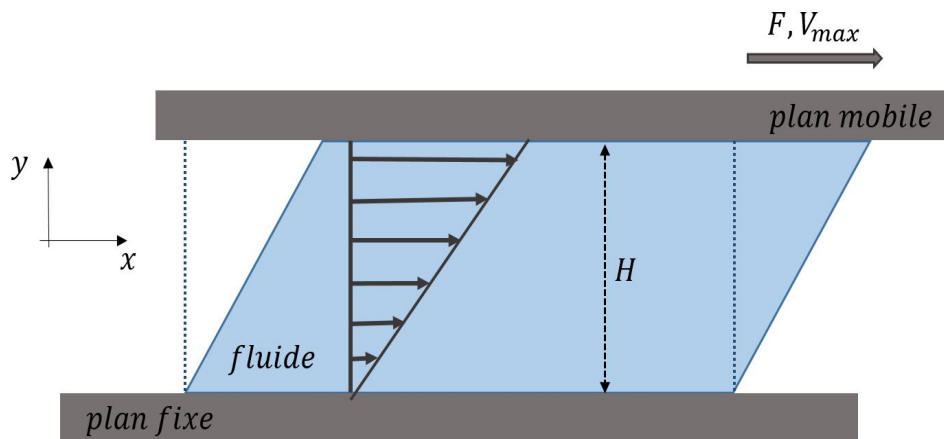


FIGURE 3.2 – Représentation schématique d'un cisaillement simple entre deux parois parallèles.

ou une déformation et mesurer les modules élastiques  $G'$  et visqueux  $G''$ .

### 3.1.1 Cas d'un cisaillement simple

Dans le cas d'un cisaillement simple entre deux parois parallèles, les couches du matériau tendent à glisser les unes par rapport aux autres sans transfert de matière. En supposant que le fluide adhère aux parois, on considère qu'il n'y a pas de glissement. Le gradient de déplacement, appelé également déformation  $\gamma$  s'exprime :

$$\gamma = \frac{dx}{dy} \quad (3.1)$$

La vitesse de déplacement varie en fonction de la distance entre les parois. On peut ainsi représenter un gradient de vitesse ou vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}$  comme :

$$\dot{\gamma} = \frac{d\gamma}{dt} = \frac{dV}{dy} = \frac{V_{max}}{H} \quad (3.2)$$

Une force de frottement tangentielle à la surface apparaît suite au déplacement des différentes couches du fluide. On peut alors définir la contrainte de cisaillement  $\sigma$  comme le rapport de cette force  $F$  sur la surface  $S$ .

$$\sigma = \frac{dF}{dS} \quad (3.3)$$

La viscosité caractérise la résistance à l'écoulement d'un fluide. Elle est définie comme le rapport entre la contrainte et le taux de cisaillement.

$$\eta = \frac{\sigma}{\dot{\gamma}} \quad (3.4)$$

L'unité la plus fréquemment utilisée est le Poise, P, ou le centiPoise noté cP. Notons que 1 cP=1 mPa.s.

Différentes géométries permettent de mesurer ces grandeurs : cône-plan, double gap, cylindre coaxiaux. Dans cette première partie, un rappel sur les différentes géométries utilisées ainsi que les éléments de base des calculs seront présentés.

## 3.2 Les différentes géométries

### 3.2.1 Géométrie cône-plan

Dans une géométrie cône-plan, le fluide étudié est placé entre un plan fixe et un cône mobile de rayon  $R$  et d'angle  $\theta_0$ . Le cône est tronqué, généralement de l'ordre de 0.05 mm à sa base, pour éviter les frottements du sommet " fictif " du cône sur le plan fixe. Le cône est mis en rotation à une vitesse angulaire  $\Omega$  autour de son axe  $z$ .

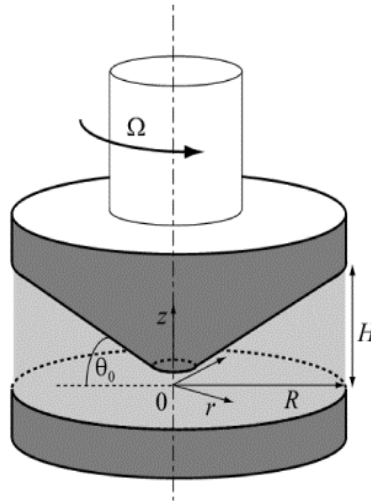


FIGURE 3.3 – Schéma de la géométrie cône-plan d'après Coussot [28].

Contrairement à la géométrie plan-plan, la géométrie cône-plan présente l'avantage de compenser la variation du gradient de vitesse avec la distance radiale grâce à la faible valeur de l'angle. Le gradient de vitesse est donc constant dans tout l'entrefer. Il s'écrit donc  $\dot{\gamma} = \Omega/\theta_0$ . De même, on peut calculer le couple  $T$  en faisant la somme des éléments de force sur des bandes circulaires d'épaisseur  $dr$  multipliée par la distance  $r$  soit :

$$T = \int_0^R 2\pi r^2 \sigma(r) dr \quad (3.5)$$

On peut alors directement obtenir les valeurs de contrainte  $\sigma$  et de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à partir des équations ci-dessus.

$$\sigma = \frac{3T}{2\pi R^3} \quad (3.6)$$

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\theta_0} \quad (3.7)$$

La géométrie de type cône-plan est en général le meilleur choix pour la caractérisation d'un matériau car elle permet d'obtenir un cisaillement pratiquement homogène en tout point de l'entrefer grâce à l'angle du cône  $\theta_0$ . De plus, elle permet de tester de petits volumes de matériaux avec une mise en place et un nettoyage facile. L'utilisation de cette géométrie peut poser quelques problèmes, notamment avec des suspensions. La présence du cône tronqué au centre de la géométrie provoque la formation d'une zone où le fluide se trouve entre deux disques parallèles. Si l'écart entre ces deux surfaces est trop faible, les grains présents peuvent alors former un réseau de contacts entraînant des blocages. Enfin, les effets de bord sont susceptibles de perturber les mesures.

Durant le travail de thèse, cette géométrie cône-plan a été utilisée pour les mesures de viscosité du fluide interstitiel des pâtes ou des huiles de silicone pour la calibration.

### 3.2.2 Géométrie de Couette

Dans une géométrie de type Couette, le matériau est cisailé entre deux cylindres coaxiaux de rayons  $R_i$  (rayon interne) et  $R_e$  (rayon externe). Le cylindre extérieur reste fixe et le cisaillement est induit par la rotation du cylindre interne de hauteur  $H$  autour d'un axe de symétrie à une vitesse angulaire  $\Omega$ . Le fond de la géométrie est souvent sous forme conique (type cône-plan) pour prendre en compte les effets du fond. En fonction de la taille de l'entrefer, deux cas sont à différencier : entrefer mince ou large.

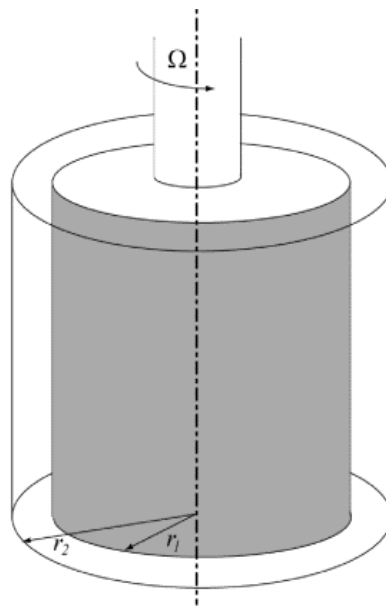


FIGURE 3.4 – Schéma géométrie de Couette d'après Coussot [28].

### Cas entrefer mince

On peut qualifier l'entrefer de mince lorsque ce dernier est petit devant le rayon, soit  $R_e - R_i \ll R_e$ . Dans ce cas, on considère que la contrainte et le taux de cisaillement sont constants dans tout l'entrefer. La contrainte varie de manière proportionnelle à l'inverse du carré du rayon. Par conséquent, plus l'entrefer est large, plus la variation de contrainte est importante. Le couple appliqué  $T$  sur le cylindre intérieur est le produit de la force issue du frottement entre deux couches dans l'entrefer de distance  $r$ , soit  $2\pi r H \sigma$  par cette distance  $r$ . On peut alors en déduire l'expression de la contrainte en fonction de la distance :

$$\sigma(r) = \frac{T}{2\pi H r^2} \quad (3.8)$$

où  $T$  est le couple et  $H$  la hauteur du Couette.

Le gradient peut être estimé en divisant la vitesse relative des deux surfaces par l'entrefer. Le taux de cisaillement s'obtient de la façon suivante :

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

Dans cette configuration, les valeurs de contrainte et de taux de cisaillement sont facilement calculables. En revanche, si l'entrefer est grand devant  $(R_e - R_i)$ , on parle d'entrefer large et la situation devient bien plus complexe à cause de l'inhomogénéité des champs de contrainte  $\sigma$  et du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

### Cas entrefer large

Parfois, le choix d'un entrefer suffisamment grand par rapport à la taille de particules s'impose. Cependant, un entrefer large induit d'autres phénomènes indésirables rendant les mesures et résultats souvent incorrects. Le cisaillement est hétérogène au sein de l'entrefer. La contrainte décroît comme  $1/r^2$  où  $r$  est la position radiale dans l'entrefer. La grande majorité des suspensions granulaires étant des matériaux à seuil, la contrainte de cisaillement locale devient inférieure à la contrainte seuil du matériau, loin du cylindre interne. Dans ces conditions, le matériau ne s'écoule que dans une certaine portion de l'entrefer (à proximité du rayon interne), on parle de localisation de l'écoulement. [43].

Les équations présentées plus haut ne peuvent pas être appliquées dans le cas d'un entrefer large et les résultats expérimentaux doivent être exploités différemment en fonction du type de matériau étudié.

Le gradient de vitesse n'est plus homogène dans tout l'entrefer et l'évaluation du taux de cisaillement devient difficile. Cependant, quelle que soit la loi de comportement du matériau, on peut montrer que [28] :

$$2T \frac{\partial \Omega}{\partial T} = [\dot{\gamma}(\sigma(R_i)) - \dot{\gamma}(\sigma(R_e))] \quad (3.10)$$

Pour un fluide simple, la sommation de termes  $2T \partial\Omega/\partial T$  (pour une série de couples  $T$  décroissants) jusqu'à ce que le terme  $\dot{\gamma}(\sigma(R_e))$  soit nul, est une opération longue et complexe. Cette équation peut être simplifiée dans le cas d'un fluide à seuil, lorsque le cisaillement est localisé. Le cisaillement au niveau du rayon externe est alors nul et il reste seulement le terme  $\dot{\gamma}(\sigma(R_i))$ .

### 3.2.3 Géométrie vane

La géométrie vane est composée d'un croisillon à pales avec un nombre variant de 2 jusqu'à 8. Conçue à l'origine pour la mesure de force de cisaillement des sols en mécanique des sols, aujourd'hui, elle est principalement utilisée pour l'étude du comportement de pâtes concentrées contenant des particules larges comme le ciment ou le béton.

Cette géométrie présente deux avantages majeurs. Le premier permet d'abord d'étudier les propriétés de matériaux structurés avec une perturbation minimale de la structure du matériau pendant l'insertion du vane [38]. Le second est la réduction des effets de glissement du fait que les contacts entre le fluide et la paroi sont réduits.

En effet, de nombreuses simulations [104] ont montré que pour de faibles taux de cisaillement, le matériau contenu entre les pales du vane se comporte comme un corps rigide qui cisaille le matériau extérieur de manière équivalente à une cellule de Couette (Figure (3.5)), même si la symétrie cylindrique est perdue.

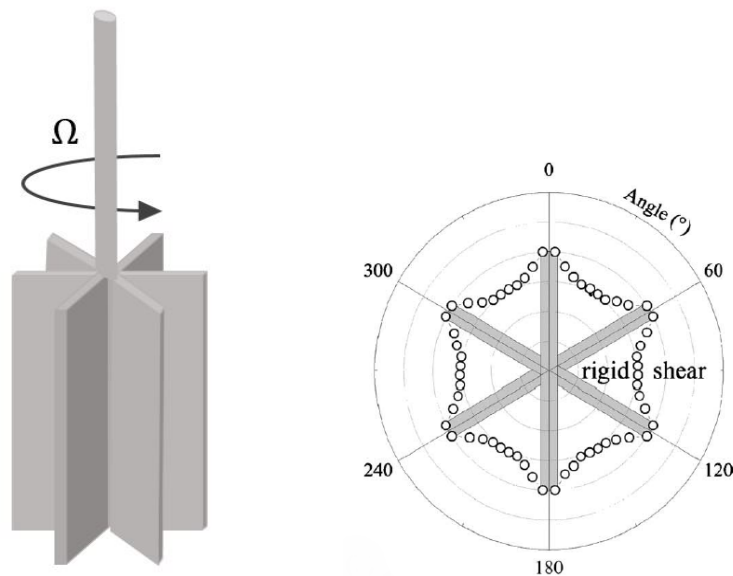


FIGURE 3.5 – Gauche : Schéma 3D d'une géométrie de type vane à 6 pales. Droite : Coupe transversale de la géométrie mettant en évidence la limite entre le mouvement rigide et le cisaillement d'un matériau dans la géométrie à six pales ; les rectangles gris correspondent aux pales. D'après Ovarlez et al. [105].



Diverses géométries de type vane sur deux rhéomètres différents ont servi au cours de ces trois années de thèse. Les mesures nécessitant une précision remarquable ont été réalisées à l'aide d'un rhéomètre Kinexus Ultra + (Netzsch). Ce rhéomètre possède un palier à air avec une sensibilité élevée et une large gamme de couple, ce qui lui permet d'avoir une contrainte limite relativement faible  $\sigma = 0.05$  Pa avec les géométries utilisées. Deux géométries ont été utilisées : un vane à quatre pales, un vane à six pales avec une cuve en PMMA de 50 mm de diamètre dans les deux cas. Pour les mesures de rhéologie couplées aux vibrations, le rhéomètre AR 1500 (TA instrument) a été utilisé avec une géométrie vane à six pales et une cuve en PMMA équipée de chicane de 4mm. La précision de ce dernier reste bien moins importante avec une contrainte limite de  $\sigma = 0.4$  Pa.

### 3.2.4 Analogie de Couette

Au vu du grand nombre de géométries utilisées et de l'utilisation de plusieurs rhéomètres, des différences au niveau des valeurs locales (viscosité, contrainte...) sont attendues. Cet effet est d'autant plus notable sur les matériaux non linéaires (type non-newtonien). La plupart du temps, une analogie de Couette est utilisée pour étudier les propriétés d'écoulement de ces matériaux non linéaires. Le principe de cette méthode repose sur le remplacement d'une géométrie de type réacteur agité par une géométrie de Couette équivalente qui aurait les mêmes facteurs de géométrie (rayon équivalent) que pour un matériau linéaire. Elle permet ainsi de calculer de façon quantitative, à partir des données couple-vitesse angulaire de rotation, les contraintes et le taux de cisaillement associés pour des géométries non conventionnelles.

Une approche similaire a été abordée au cours de cette thèse. Les lois constitutives seront déduites des formules de Couette pour un matériau à seuil telles que :

$$\tau = \frac{3T}{2\pi R^2 h_v} \quad (3.11)$$

où  $T$  est le couple,  $R$  le rayon du vane et  $h_v$  la hauteur immergée,

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega R}{e} \quad (3.12)$$

où  $\Omega$  est la vitesse angulaire de rotation du vane et  $e$  le gap effectif.

On a choisi ici de calculer la contrainte au niveau du cylindre interne car cela donne la meilleure estimation du seuil d'écoulement de matériaux à seuil [101].

### Calibration avec un fluide newtonien

La première étape de cette calibration consiste à mesurer la viscosité d'un fluide newtonien bien connue. Le fluide choisi est une huile silicone VWR de viscosité 500 cSt. La mesure de viscosité se fait avec une géométrie cône-plan à diverses valeurs de contraintes : 0.05 Pa, 0.1 Pa, 0.5 Pa et 1 Pa. Les valeurs de couple et de vitesse angulaire extraites sont ensuite incorporées

dans les Equations (3.6) et (3.7) pour en déduire la contrainte et le taux de cisaillement associés. La valeur moyenne de viscosité est alors déduite et vaut  $\eta = 0.481$  Pa.s.

### Calcul du gap effectif $e$

Le même protocole est réalisé pour toutes les géométries employées par la suite. Une fois les valeurs de couple et de vitesse angulaire récupérées, la contrainte et le taux de cisaillement sont calculés à partir des équations présentées ci-dessus ((3.11) et (3.12)). Afin de retomber sur la valeur de viscosité obtenue précédemment, il suffit de faire varier le gap effectif  $e$ . Le Tableau (3.1) récapitule pour chaque géométrie utilisée au cours de cette thèse, leurs caractéristiques et la valeur du gap effectif  $e$ .

Rhéomètre	Géométrie	Rayon (mm)	$e$ (mm)	Rayon cuve (mm)
Kinexus	Couette striée	12.5	1.13	13.75
Kinexus	Vane 4 pales	7.5	3.7	25
Kinexus	Vane 6 pales	12.5	4.63	25
TA instrument	Vane 6 pales	11	3.55	25

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des géométries utilisées pour la calibration.

Pour s'assurer que l'analogie de Couette demeure efficace suite à la calibration des différentes géométries, des courbes d'écoulement sont réalisées sur une suspension de silice à  $\phi^{wt}=0.22$ . Une rampe de  $\dot{\gamma}=10^{-2} s^{-1}$  à  $\dot{\gamma}=100 s^{-1}$  est réalisée avec une vitesse de rampe de 1min/décade, soit un temps de 240 secondes. Ces courbes d'écoulement sont tracées et comparées sur la Figure (3.6) avant et après calibration. Le régime transitoire en dessous de  $\gamma = 0.1s^{-1}$  n'est pas représenté. On peut voir que les courbes se superposent relativement bien après calibration, prouvant ainsi que la calibration est efficace pour rendre compte des comportements non linéaires.

## 3.3 Comportement des suspensions en dessous de $\phi_m$

Dans cette partie, le comportement rhéologique des suspensions en dessous de  $\phi_m$  est brièvement présenté. L'objectif principal de la thèse étant l'étude des suspensions concentrées au-dessus de  $\phi_m$ , une description non exhaustive sera réalisée. L'étude sera menée sur des suspensions de silice entre  $\phi^{wt} = 0.05 < \phi^{wt} < \phi^{wt} = 0.23$ .

Une géométrie de type Couette a été utilisée, compte-tenu de la faible viscosité du fluide employé ( $\eta_f = 9.5.10^{-4}$  Pa.s à 25°C), et donc de la suspension à faible fraction massique. Le rayon intérieur est de 12,5 mm et le rayon extérieur de la cuve de 13,75 mm avec une hauteur de 37,5 mm. La surface de la géométrie est striée pour éviter le glissement aux parois. La durée des expériences a été choisie la plus courte possible pour éviter une éventuelle sédimentation due à la différence de densité entre les particules et le fluide.

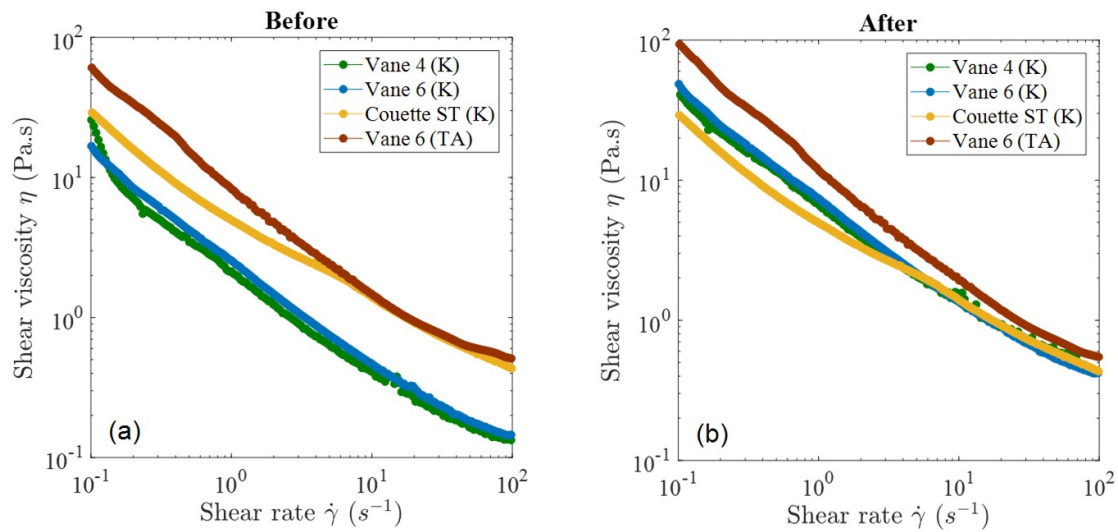


FIGURE 3.6 – Courbes d’écoulement d’une suspension à  $\phi^{wt}=0.22$  avant (a) et après (b) calibration. Chaque courbe représente une géométrie différente : courbe verte : vane 4 pales du Kinexus, courbe bleue : vane 6 pales du Kinexus, courbe jaune : Couette strié du Kinexus, courbe rouge : vane 6 pales du TA instrument.

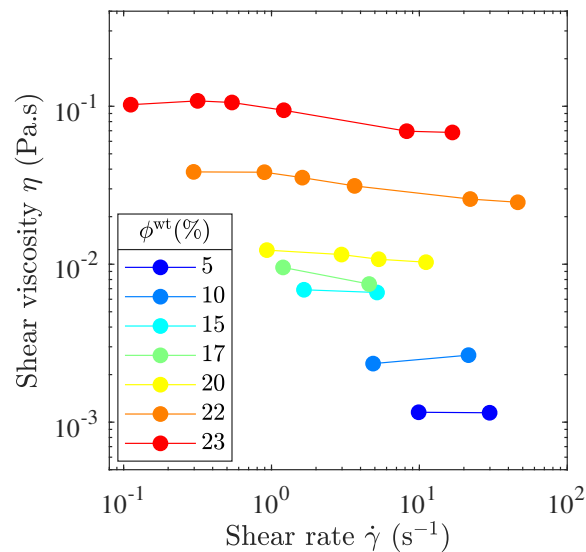


FIGURE 3.7 – Courbes d’écoulement des suspensions de silice pour des fractions massiques comprises entre  $5 < \phi^{wt} < 0.24$ .

Pour caractériser au mieux les suspensions, les mesures ont été faites à contrainte imposée. Plusieurs contraintes constantes ont été appliquées jusqu’à atteindre un état stationnaire. Les données ont été collectées uniquement à faible contrainte de cisaillement inférieure à 0.1 Pa aux plus basses fractions massiques. En effet à ces faibles viscosités, le matériau entre en régime inertiel pour des contraintes plus élevées conduisant à une augmentation apparente de la contrainte de cisaillement avec le taux de cisaillement. De plus, en raison de la limite du rhéomètre, seuls

les points de données pour des contraintes inférieures à 0.01 Pa ont été enregistrés. La gamme de contrainte appliquée dans laquelle les suspensions peuvent être caractérisées à faible fraction massique est donc très limitée. Les courbes d'écoulement en régime permanent obtenues dans ces conditions sont illustrées sur la Figure (3.7).

Comme attendu, la viscosité globale de la suspension augmente avec la fraction massique  $\phi^{\text{wt}}$ . Pour les faibles fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$ , le comportement est cohérent avec un comportement pseudo-newtonien où la viscosité est peu dépendante du taux de cisaillement appliqué. Les valeurs de viscosité sont proches de celles du fluide. La forte augmentation de la viscosité autour de  $\phi^{\text{wt}} = 0.20$  s'accompagne d'une transition vers un comportement rhéofluidifiant. Ce comportement est couramment observé pour des fractions volumiques élevées dans les suspensions concentrées et est probablement lié aux variations du coefficient de frottement  $\mu_p$  [24, 87, 112]. Plus précisément, Chatté et al. [24] et Lobry et al. [87] ont combiné des simulations numériques avec des expériences en utilisant respectivement des particules non-browniennes de polychlorure de vinyl (PVC) dans un plastifiant (Dinch) et des particules de polystyrène dans de l'huile silicone. Les études ont montré que la rhéofluidification provient de la déformation élastique des aspérités de surface des particules conduisant à une diminution de leur coefficient de frottement, confirmant les conclusions faites initialement par Archard [6].

Au final, la viscosité relative  $\eta_r(\phi^{\text{wt}}) = \eta(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  peut être tracée en fonction de la fraction massique pour une contrainte constante  $\sigma = 0.01$  Pa à partir des données mesurées ci-dessus. Les résultats sont présentés dans la Figure (3.8). Afin d'estimer la fraction de blocage de la suspension  $\phi_m^{\text{wt}}$ , la viscosité relative est ajustée avec une loi de Maron-Pierce :

$$\eta_r = \left(1 - \frac{\phi^{\text{wt}}}{\phi_m^{\text{wt}}}\right)^{-2} \quad (3.13)$$

Le meilleur ajustement est obtenu pour une valeur de fraction massique  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.255$ . Cette valeur correspond à la fraction volumique de blocage de la suspension frictionnelle  $\phi_j^{(\mu_p \neq 0)}$  décrite dans le Chapitre 1. A proximité de la fraction massique de blocage, l'évolution de  $\eta(\phi^{\text{wt}})$  est bien moins évidente à caractériser. Il s'agit ici d'une estimation grossière de la véritable fraction massique de blocage de la suspension frictionnelle. Néanmoins, la valeur estimée est cohérente avec le début de granulation observé pour les suspensions non vibrées étudiées dans le Chapitre 2, confirmant que la valeur obtenue n'est pas absurde [66].

### 3.4 Comportement des suspensions au-dessus de $\phi_m$

Au fur et à mesure que la concentration en particules augmente, ce qui fait émerger de nouveaux comportements, les interactions mises en jeu entre particules évoluent. En effet, les interactions de contacts directs semblent jouer un rôle important à forte fraction massique [80]. Dans cette partie, on s'intéressera aux suspensions entre  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ .

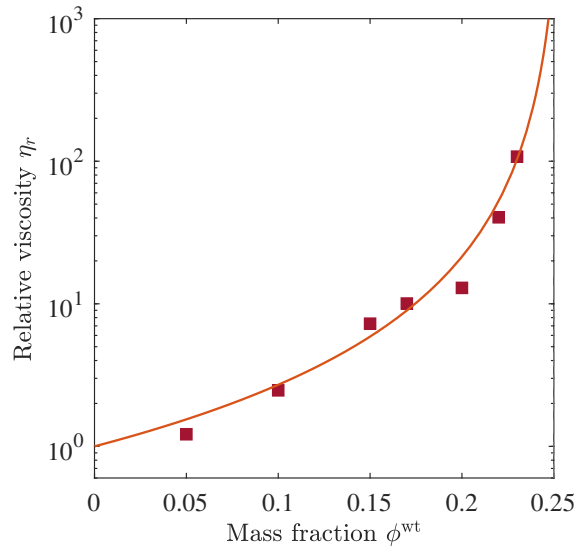


FIGURE 3.8 – Viscosité relative  $\eta_r$  estimée à  $\sigma = 0.01$  Pa en fonction de la fraction massique des particules de silice  $\phi^{\text{wt}}$ . La ligne rouge continue est un ajustement des données à la loi de Maron-Pierce  $\eta_r = (1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_m^{\text{wt}})^{-2}$  avec  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.255$ .

Nous avons vu dans le Chapitre 2 que les suspensions, au-dessus de  $\phi_m^{\text{wt}}$ , sont dans un état bloqué. Il est donc préférable d'utiliser ici une géométrie vane pour faciliter son insertion et éviter les glissements. Les mesures de rhéologie ont été effectuées à l'aide du TA instrument, couplé au dispositif de vibrations présenté dans le Chapitre 4. L'utilisation des vibrations dans cette partie sert uniquement en début de mesure afin d'obtenir un même état initial. Les courbes d'écoulement sont réalisées en l'absence de vibrations dans ce chapitre. De manière analogue à un pré-cisaillement, le matériau est pré-vibré à la contrainte de vibrations la plus grande ( $\sigma_v = 18$  Pa) entre chaque mesure pendant 10 minutes. Cette durée a été choisie méticuleusement en appliquant un faible taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$  puis en faisant varier le temps de vibrations entre deux mesures. Pour des temps inférieurs à 10 minutes, la valeur de viscosité atteinte est légèrement inférieure à celle de départ. Il faut donc 10 minutes entre deux mesures pour obtenir un même état initial.

### 3.4.1 Protocole expérimental

Le protocole expérimental choisi est une courbe d'écoulement à taux de cisaillement imposé variant de  $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$  à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  à la température  $T=25^\circ\text{C}$ . La vitesse de rampe est de 1min/décade. Au repos, toutes les suspensions sont caractérisées par un état solide. Au début de la rampe, une réponse transitoire à faible cisaillement est présente pour chaque suspension en raison de leur comportement élasto-plastique et de leur dilatation initiale comme le montre la Figure (3.9). Dans ces conditions, seules les données pour des déformations cumulées supérieures à 2 sont montrées par la suite (ligne noire en pointillés). Ainsi, lorsque les rampes de taux de cisaillement sont appliquées sur le matériau initialement au repos, cela nous conduit à ne

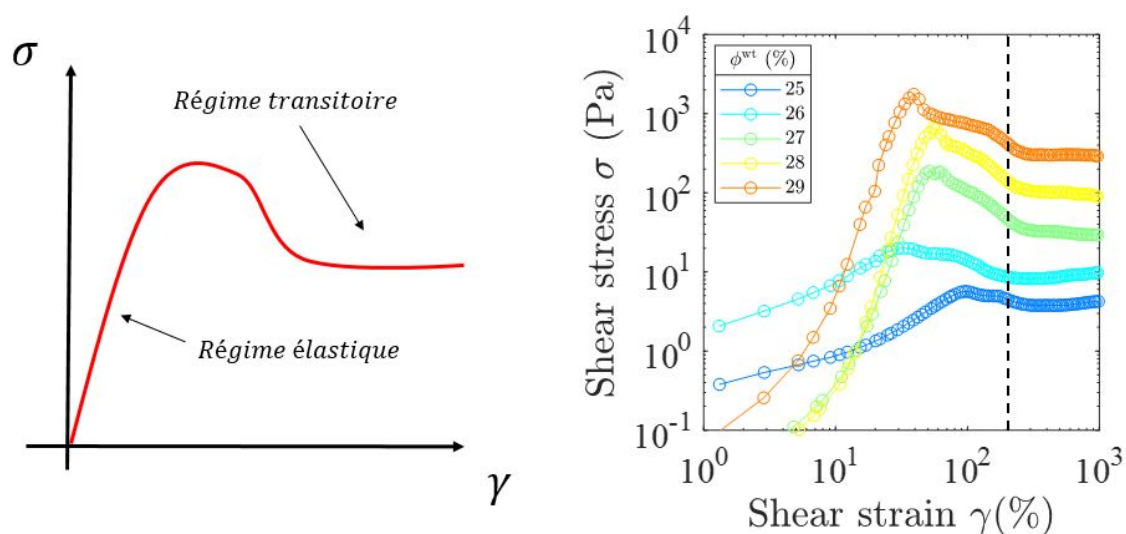


FIGURE 3.9 – Contrainte de cisaillement  $\sigma$  fonction de la déformation  $\gamma$  pour différentes fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$ . La ligne noire en pointillés représente une déformation de 2.

rapporter que les données à des taux de cisaillement supérieurs à  $0,1 \text{ s}^{-1}$ .

Il est important de préciser ici que le matériau n'est pas homogène lors du cisaillement. En effet, une rupture et un creusement progressif de la surface libre sont visibles, cette observation étant classique avec les matériaux plastiques. L'écoulement imposé par la rotation de la géométrie implique que la fraction volumique diminue jusqu'à une valeur locale inférieure  $\phi_m$  près du vane (dilatance), tandis que le reste du matériau est bloqué [113] et voit sa fraction volumique augmenter pour s'assurer que la fraction volumique globale reste inchangée. Ce phénomène est connu sous le nom de localisation de l'écoulement [43]. Ce creusement progressif entraîne la diminution initiale de la contrainte de cisaillement lors de l'augmentation du taux de cisaillement. Les valeurs de taux de cisaillement fournies ne sont donc que des valeurs apparentes, de même que la contrainte seuil  $\sigma_y$  observée. Les courbes d'écoulement obtenues pour diverses fractions massiques sont représentées sur la Figure (3.10). La figure de gauche est représentée en fonction de la viscosité  $\eta$  et celle de droite en fonction de la contrainte de cisaillement  $\sigma$ .

Les matériaux semblent se comporter comme des fluides à seuil rhéofluidifiants. Une diminution de la viscosité apparente  $\eta(\dot{\gamma}) \simeq \sigma_y/\dot{\gamma}$  avec le taux de cisaillement avec une loi de puissance proche de  $-1$  est observée initialement.

### 3.4.2 Fluide à seuil hétérogène

Pour toutes les fractions massiques étudiées, les suspensions présentent une contrainte seuil  $\sigma_y$ . En dessous de cette valeur, aucun écoulement stationnaire n'est possible. Pour des faibles taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , la contrainte de cisaillement  $\sigma$  n'évolue pas et reste constante une partie de la rampe. Ce comportement est souvent retrouvé dans les matériaux granulaires secs [90, 126] et

humides [4, 62] avec l'observation d'un plateau plastique en géométrie de type Couette. L'origine de la contrainte seuil sera détaillée ultérieurement, cependant on peut tout de même affirmer que la pression des particules est fixée par la force capillaire  $p_{cap}$  dans notre cas. La contrainte de cisaillement peut s'exprimer avec une loi de Coulomb telle que :

$$\sigma = \mu_p(I_v)p_{cap} \quad (3.14)$$

avec  $\mu_p(I_v)$  le coefficient de friction qui dépend du nombre visqueux  $I_v = \eta_f \dot{\gamma} / p$  défini par Boyer et al. [13].

Dans nos expériences, la valeur de ce nombre visqueux varie entre  $10^{-8}$  et  $10^{-5}$ . Cette gamme correspond à la zone quasi-statique où la valeur  $\mu_p(I_v)$  est supposée constante [13, 58]. Ce dernier point permet d'expliquer la valeur constante de  $\sigma$  et donc l'observation d'un plateau plastique  $\sigma_y = \mu_p(I_v = 0)p$  sur la Figure (3.10).

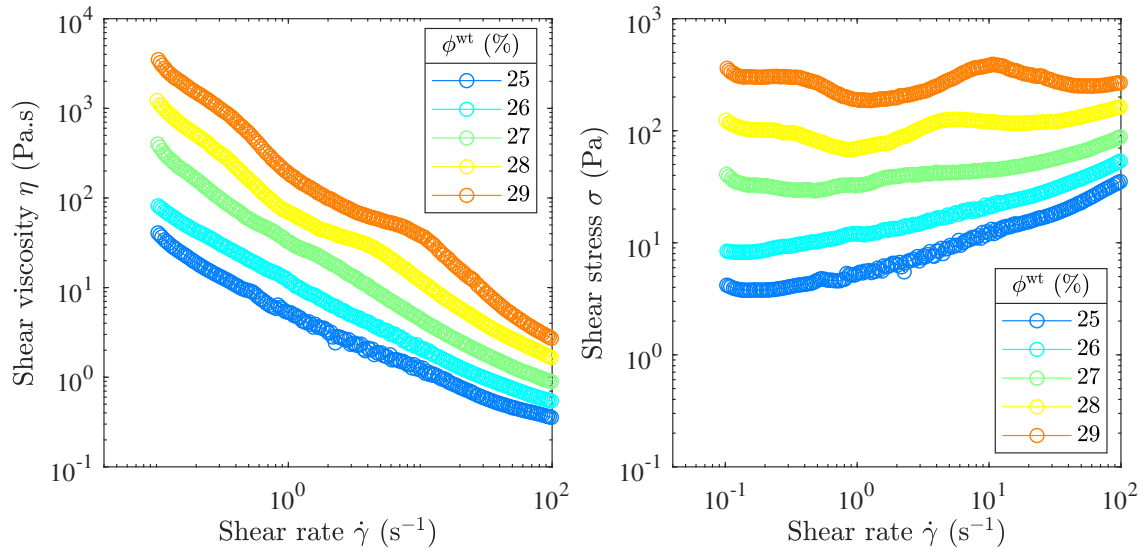


FIGURE 3.10 – Courbes d'écoulement des suspensions de silice entre  $\phi_m^{wt} < \phi^{wt} < \phi_{rcp}^{wt}$  : Gauche : viscosité  $\eta$ , Droite : contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ .

La présence de ce plateau suggère une origine purement frictionnelle du comportement observé [90, 4]. Ce régime d'écoulement frictionnel est généralement suivi d'un régime visqueux pour des taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  plus élevés [7]. Ce dernier se caractérise par une augmentation de la viscosité avec le cisaillement telle que  $\eta \propto \dot{\gamma}$ . Ancy et Coussot [4] interprètent ce changement par une transition entre un régime frictionnel où les particules sont en contact direct et un régime visqueux où les forces visqueuses sont capables de lubrifier ces contacts. Pour les plus fortes fractions massiques étudiées ici, ce régime visqueux est négligeable pour la gamme de  $\dot{\gamma}$  choisie.



Un second point important notable est l'évolution de la contrainte seuil avec la fraction massique. En effet, cette contrainte seuil  $\sigma_y$  observée semble diminuer à mesure que  $\phi^{\text{wt}}$  diminue. Étant donné l'origine de la contrainte seuil discutée plus tard, cette diminution est due à une réduction de la dilatation de la suspension induite par l'écoulement à mesure que la fraction massique  $\phi^{\text{wt}}$  se rapproche de la fraction d'état critique  $\phi_c^{\text{wt}} = \phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24$ . Par conséquent, la tendance des particules à vouloir sortir de l'interface est plus faible et donc la pression capillaire  $p_{\text{cap}}$  générée également. Comme explicité dans l'Equation (3.16), la dépendance de la contrainte seuil avec la pression capillaire  $p_{\text{cap}}$  entraîne donc sa diminution, puisque le coefficient de friction  $\mu_p(I_v = 0)$  reste constant dans la limite quasi-statique.

### 3.4.3 Régime frictionnel stationnaire

Pour caractériser plus en détail le régime frictionnel, des mesures à des taux de cisaillement fixes ont été réalisées sur un matériau à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  pour obtenir des états pseudo-stationnaires.

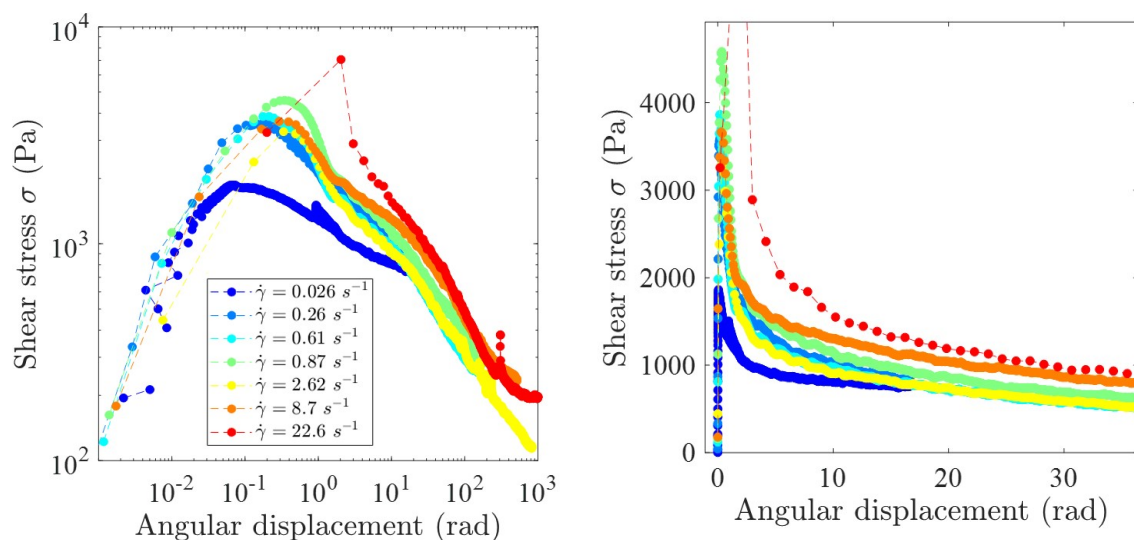


FIGURE 3.11 – Contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du déplacement angulaire pour une suspension à  $\phi^{\text{wt}}=0.29$ . Échelle à gauche : en logarithme, droite : en linéaire.

Plusieurs taux de cisaillement pour une durée de 600 s ont été appliqués entre  $\dot{\gamma} = 0.026 s^{-1}$  et  $\dot{\gamma} = 22.6 s^{-1}$ . L'évolution de la contrainte de cisaillement  $\sigma$  est représentée sur la Figure (3.11). Le creusement progressif de la géométrie dans la suspension est responsable de l'évolution très lente de la contrainte de cisaillement.

Pour une valeur fixe de déplacement angulaire de 10 radians, on peut en extraire la valeur de la contrainte seuil  $\sigma_y$  qui est d'environ 1000 Pa. Cette valeur est bien plus grande que celle obtenue sur la Figure (3.10) où la valeur  $\sigma_y$  était de 300 Pa. Cette différence s'explique par le fait que le matériau n'est pas dans le même état de déformation et ne possède pas le même historique de cisaillement. Comme on peut le voir sur la Figure (3.11), pour une valeur de



$\sigma = 300$  Pa, le déplacement angulaire est de l'ordre de 200 radians, soit 10 fois plus grand. Ce résultat est cohérent étant donné que ce dernier a subi une rampe de cisaillement, donnant le temps au matériau de se déformer et se fracturer davantage. A cette fraction massique, un seuil de contrainte  $\sigma_y = 1000$  Pa semble plus représentatif.

La Figure (3.12) affiche les courbes d'écoulement obtenues grâce aux mesures précédentes de la suspension frictionnelle en fonction de la viscosité  $\eta$  et de la contrainte de cisaillement  $\sigma$ . Les valeurs de viscosité ont été extraites de la Figure (3.11) pour un déplacement angulaire fixe de 10 pour avoir une idée de la valeur stationnaire s'il n'y avait pas de creusement.

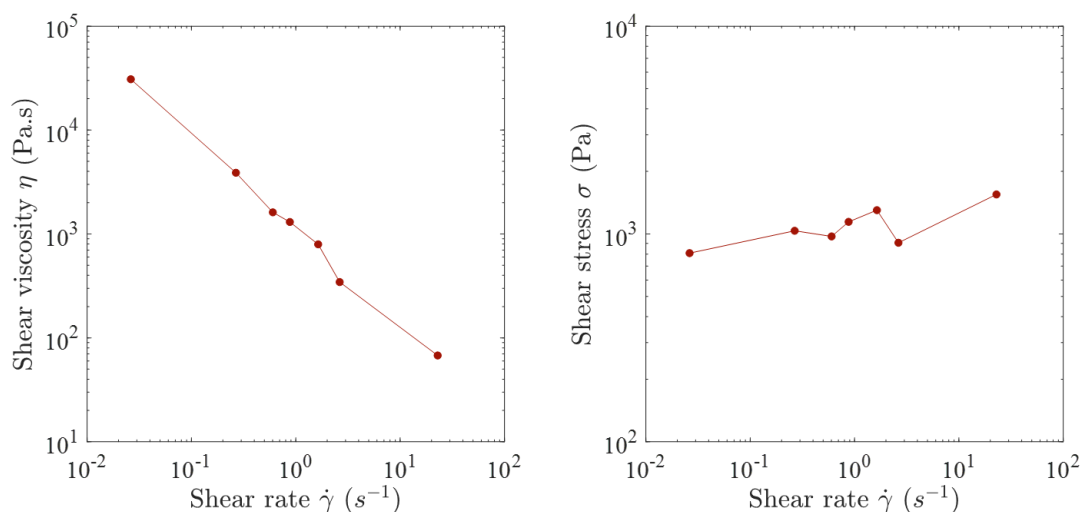


FIGURE 3.12 – Courbes d'écoulement stationnaire pour suspension à  $\phi^{wt}=0.29$ . Gauche : viscosité  $\eta$ , Droite : contrainte de cisaillement  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$

Les matériaux étudiés dans cette partie sont des fluides possédant un seuil de plus en plus élevé à mesure que la fraction massique augmente. L'origine de ce seuil reste à déterminer afin de pouvoir comprendre les différences observées entre nos systèmes et ceux de Hanotin et al. [62], Gaudel et al. [56] par exemple.

### 3.4.4 Origine du seuil d'écoulement

En 1999, Ancy et Coussot [4] ont mis en évidence la transition frictionnelle/visqueuse pour un mélange de billes dans différents fluides newtoniens. Ainsi, pour des suspensions frictionnelles saturées en fluide, le couple  $T$  dans une géométrie de type Couette est une fonction quadratique de la hauteur immergée  $H$  de la géométrie rotative. Cette dépendance est représentée sur la Figure (3.13), où l'ordonnée est décrite comme le couple par unité de hauteur  $M=C/h$ .

En revanche pour des suspensions visqueuses, le couple est linéaire avec la hauteur  $H$ . Cette différence s'explique facilement en rappelant que le couple  $T$ , le long du cylindre intérieur de rayon  $R$  et de hauteur immergée  $H$ , peut être calculé comme suit :

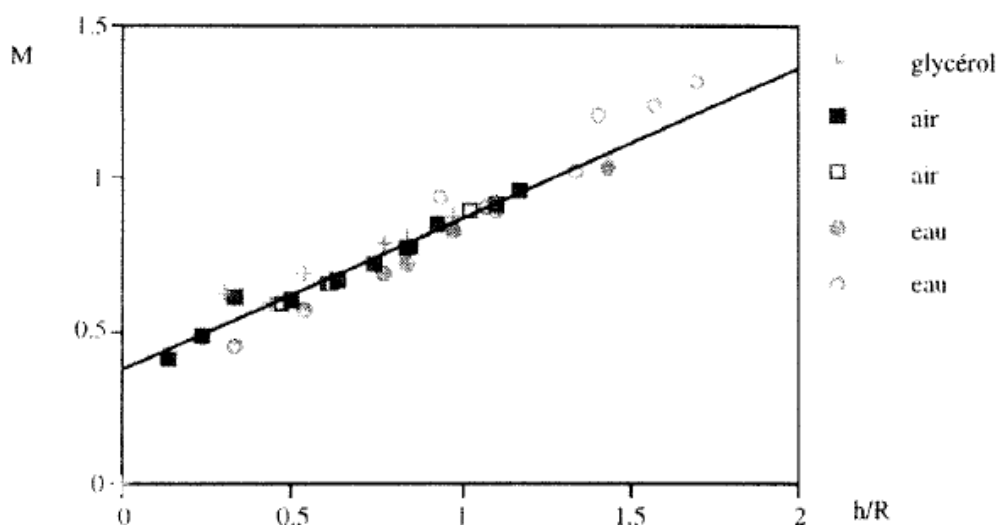


FIGURE 3.13 – Couple de frottement adimensionnel  $M = C/2\pi\rho ghR_i^3$  en fonction de la hauteur cisailée  $h/R$  pour différents mélanges de billes de verre dans différents fluides. La droite représente l'ajustement des points par un modèle linéaire. D'après Ancy et Coussot [4].

$$T = 2\pi R^2 \int_{z=0}^{z=H} \sigma(z) dz \quad (3.15)$$

Pour la plupart des matériaux, la contrainte ne varie pas avec la profondeur  $z$  ( $\sigma(z) = \sigma_0$ ). L'Equation (3.15) se simplifie et peut s'écrire :  $T = 2\pi R^2 H \sigma_0$ . Le couple est alors proportionnel à la hauteur  $T \propto H$ . Dans le cas des matériaux frictionnels, les contacts entre grains permettent de distribuer la force de pesanteur le long du réseau de particules en contact. Dans le cas où l'on néglige l'effet Janssen, la contrainte supportée par ce réseau de grains est appelée pression granulaire notée  $p(z)$  et définie par  $p(z) = \phi \Delta \rho g z$ . A l'échelle macroscopique, on peut écrire la loi de Coulomb sous la forme :

$$\sigma(z) = \mu_p p(z) \quad (3.16)$$

avec  $\mu_p$  le coefficient de friction et où  $p(z)$  la pression particulaire dépendant de la profondeur  $z$ . C'est le cas des granulaires secs à surface libre ou encore les suspensions granulaires saturées où la relation entre le couple  $T$  et la hauteur  $H$  est une fonction quadratique :  $T \propto H^2$ .

En revanche, il existe une exception lorsque qu'une pression de confinement, plus importante que la pression gravitaire, est appliquée directement sur les grains. Cette pression peut s'appliquer directement à l'aide d'une grille [13] ou bien par la tension de surface  $\Gamma_t$  lorsque les particules tentent de traverser l'interface liquide/air à cause de la dilatation comme présenté ci-dessous sur la Figure (3.14). Brown et Jaeger [16] ont tenté de modéliser cette pression comme :  $p_{\text{cap}} \propto \beta \Gamma_t / a$  avec  $a$  le rayon de courbure et  $\beta$  un préfacteur qui varie en fonction de

la rugosité des particules ou de l'angle de mouillage. Cet ordre de grandeur est justifié par la limite supérieure de la contrainte particulaire mise en évidence expérimentalement par Garland et al. [54] où  $\beta = 1.3$ . Dans notre cas, la valeur de cette pression est estimée à  $p_{cap} \simeq 5000$  Pa, contrairement à celle de Hanotin et al. [62] qui vaut  $p_{cap} = 0$  en raison de la présence de surnageant. Au cours de cette thèse, la valeur du coefficient  $\beta$  est fixée à 1, en l'absence de donnée permettant d'être plus précis.

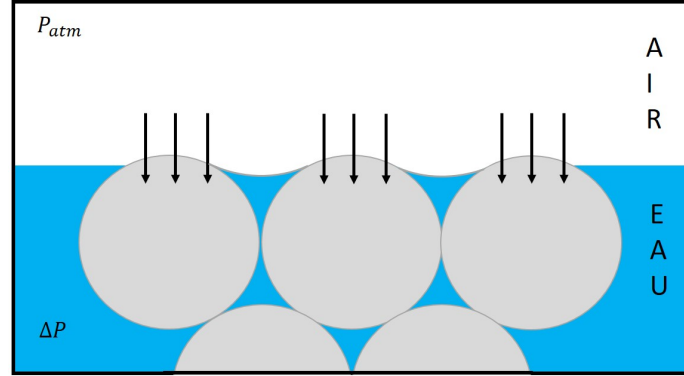


FIGURE 3.14 – Représentation schématique de la pression capillaire  $p_{cap}$  qui s'exerce sur une particule au niveau de l'interface eau/air.

La pression totale qui s'applique sur l'ensemble des grains se décompose de la façon suivante :

$$p(z) = p_{cap} + p_{grav}(z) \quad (3.17)$$

avec  $p_{cap}$  la pression capillaire provenant de l'interface  $p_{cap} \simeq \Gamma_t/r_p$ , indépendante de  $z$  et  $p_{grav}$  la pression gravitaire issue de la gravité.

Dans l'éventualité où la pression capillaire est grande devant la pression granulaire  $p_{cap} \gg p_{grav}$ , cette dernière est négligeable et on retrouve une indépendance de la contrainte avec la profondeur. On a alors le couple proportionnel à la hauteur immergée  $H$  :  $T \propto H$ .

Afin d'être plus quantitatif, l'anisotropie des contraintes normales des particules peut être considérée. Dans un écoulement en cisaillement simple, on considère 1 la direction de l'écoulement, 2 la direction du gradient et 3 la direction de la vorticit . Pour des suspensions denses, les contraintes normales des particules sont  $\sigma_{11}^p \simeq \sigma_{22}^p$  et  $\sigma_{33}^p \simeq 0.5\sigma_{22}^p$  [58]. Des caractéristiques similaires sont attendues pour les matériaux granulaires. Dans la g om trie vane, la direction de la vorticit  est la m me que la gravit , on peut donc  crire simplement que  $\sigma_{33}^p = \phi\Delta\rho gz$ . Sur les c t s, la contrainte de cisaillement s'exprime comme  $\sigma = \mu_p\sigma_{22}^p \simeq 2\mu_p\sigma_{33}^p$ . Par analogie, au fond de la cuve, la contrainte de cisaillement s'exprime  $\sigma' = \mu_p\sigma_{33}^p$ , soit  $\sigma' \simeq \sigma/2$ .

De manière générale, pour les écoulements plastiques avec une géométrie vane où l'écoulement est localisé au niveau de la géométrie, l'effet du fond s'exprime de la manière suivante :

$$T = 2\pi \int_{r=0}^{r=R} \sigma'(z=H) r^2 dr = \frac{2\pi R^3}{3} \sigma'(z=H) \quad (3.18)$$

Dans cette équation, on introduit une nouvelle contribution de  $\sigma'(z=H)$ , représentant la composante  $\sigma_{\theta z}$  du tenseur des contraintes qui s'exerce sur le fond. A ne pas confondre avec la contrainte de cisaillement  $\sigma$  (composante  $\sigma_{r\theta}$ ) qui agit sur les bords. Ce terme  $\sigma'$  s'ajoute comme une constante supplémentaire dans le cas d'une indépendance avec la profondeur (Equation (3.20)). A l'inverse, dans le cas où la gravité domine, la contrainte s'ajoute comme un terme en  $T \propto H$  (Equation (3.19)).

Sur la base des éléments présentés ci-dessus, deux expressions pour les mesures quasi-statiques du couple  $T$  effectuées sur des suspensions granulaires peuvent être définies :

$$T = \pi R^2 \phi K \mu \Delta \rho g \left( H^2 + \frac{2RH}{3K} \right) \quad (3.19)$$

lorsque la pression particulaire est d'origine gravitaire, avec  $K = \sigma_{22}^p / \sigma_{33}^p \simeq 2$ , et

$$T = 2\pi R^2 \mu_p p_{\text{cap}} \left( H + \frac{R}{6} \right) \quad (3.20)$$

lorsque la pression capillaire  $p_{\text{cap}}$  prédomine. Dans cette dernière expression, le préfacteur  $K$  n'est pas inclus puisque  $p_{\text{cap}}$  est une estimation de la contrainte normale des particules. Dans les conditions expérimentales fixées dans le régime frictionnel, la contribution du fond sur la valeur totale du torque est estimée à environ 5%. Pour les écoulements visqueux, cette contribution est encore plus faible. Elle n'est donc pas prise en compte dans le calcul de contraintes.

Afin d'illustrer ces propos, des mesures de couple à plusieurs hauteurs sur divers matériaux sont réalisées à l'aide du Kinexus Ultra + avec une géométrie vane à 4 pales. L'échantillon est lentement incorporé dans une cuve puis la géométrie est abaissée jusqu'à la limite air/matériau. Pour obtenir de manière rigoureuse la hauteur correspondant à l'interface, la force normale  $F_n$  est mesurée. Une fois la géométrie en contact avec l'échantillon, la force normale commence à augmenter et c'est à ce moment-là que l'on considère que la géométrie a atteint son *zero gap*. On s'assure bien que la même quantité (en terme de hauteur dans la cuve) est utilisée pour chaque mesure. Ce détail est important pour la suite, car les effets de fond seront considérés. La seconde étape consiste à faire descendre la géométrie dans l'échantillon à intervalles réguliers. Le choix de faire descendre la géométrie plutôt que de la faire remonter en partant du fond permet de réduire les fractures que la géométrie pourrait occasionner. Pour terminer, un taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$  est appliqué pour mesurer la résistance du matériau en régime quasi-statique. Un intervalle de 10 points par seconde est affecté jusqu'à atteindre une déformation de l'ordre de  $\gamma = 10$  lorsque le matériau est dans son régime stationnaire et où la fraction massique n'évolue plus (état critique  $\phi_c$ ).

### 3.4.5 Exemple de matériaux où la gravité domine $p_{grav}$

Le premier matériau choisi pour cette étude est un granulaire sec composé de billes de verre monodisperses de diamètre  $125 \mu\text{m} < d < 150 \mu\text{m}$ . Les résultats sont représentés sur la Figure (3.15) a). Les données s'ajustent parfaitement à une loi quadratique (ligne rouge) comme le montre l'Equation (3.19). On peut ainsi remonter au coefficient de friction des billes en supposant qu'elles sont dans leur état critique  $\phi = 0.6$  [5], et la différence de densité est égale à la densité des billes soit  $\Delta\rho \simeq 2500 \text{ kg.m}^{-3}$ . La valeur du coefficient trouvée est de  $\mu_p \simeq 0.6$ , ce qui semble cohérent avec les valeurs référencées dans la littérature pour des billes de verre [5].

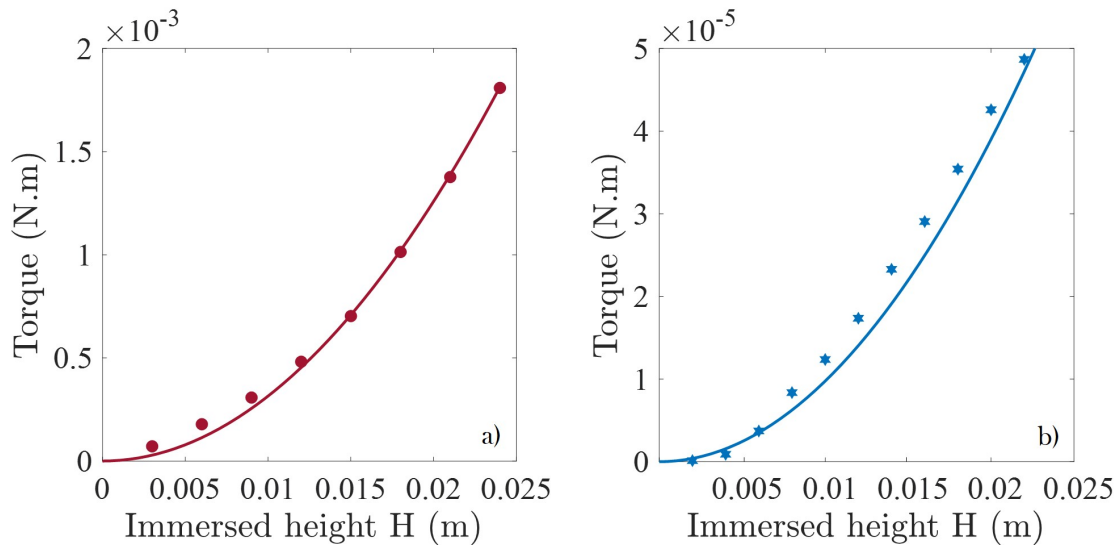


FIGURE 3.15 – a) Couple en fonction de la hauteur immergée pour des billes de verre monodisperses. b) Couple en fonction de la hauteur immergée pour une suspension de particules de silice sédimentée. Les lignes modélisent une fonction quadratique issue de l'Equation (3.19).

Le deuxième exemple choisi est une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.22$  directement préparée dans la cuve puis mise au repos pendant une journée jusqu'à obtenir une sédimentation complète. La géométrie est introduite lentement dans le sédiment pour éviter une resuspension. Le matériau est cisailé à faible taux de cisaillement  $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$  pour rester en régime quasi-statique comme annoncé précédemment. La Figure (3.15) b) présente le couple en fonction de la hauteur immergée. Comme précédemment, on retrouve une fonction quadratique  $T \propto H^2$ . En considérant  $\Delta\rho \simeq 400 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\phi = 0.5$ , la valeur de coefficient de friction est estimée à  $\mu_p \simeq 0.13$  à l'aide d'un ajustement. A noter également que les valeurs de couple plus faibles pour la suspension s'expliquent par la présence d'eau qui diminue avec la pression gravitaire. Ce bon accord avec le modèle frictionnel de l'Equation (3.19) indique qu'il n'y a pas d'attraction entre les particules confirmant ainsi qu'elles interagissent majoritairement par contacts frictionnels. Dans le cas contraire, s'il y avait eu un seuil de contrainte résultant d'attraction entre particules,

on aurait eu  $T \propto H$ .

L'origine du seuil d'écoulement est maintenant bien identifiée dans les deux cas présentés ci-dessus. Que ce soit pour le matériau granulaire sec ou bien la suspension en dessous de  $\phi_m$ , la gravité semble gouverner la pression particulaire qui s'exerce sur eux.

### 3.4.6 Exemple de matériaux où la capillarité domine $p_{cap}$

Une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  préparée à l'aide du protocole expérimental (détaillé dans le Chapitre 2) est utilisée pour mesurer le couple  $T$ . Le matériau est une pâte solide très concentrée extrêmement sensible au cisaillement qu'on lui applique. Il faut donc être très rigoureux lors de la descente de la géométrie afin de la perturber au minimum et faire le moins de fractures possibles. La Figure (3.16) représente une fracture faite lors de l'insertion de la géométrie. Une première approche fut d'appliquer des vibrations sous vortex entre chaque hauteur immergée  $H$  pour "éliminer" les fractures faites par la géométrie au cours de sa descente. Les résultats obtenus n'étaient cependant pas satisfaisants. Avec du recul, nous savons maintenant que les vibrations générées par le vortex étaient probablement trop fortes, entraînant l'érosion des particules et modifiant de manière irréversible le matériau à chaque fois. A l'époque, nous n'avions pas encore à disposition le rhéomètre couplé aux vibrations pour éviter ces problèmes.

La deuxième approche consiste à changer d'échantillon entre chaque hauteur immergée. Malgré le temps perdu et le gaspillage en silice/eau, cette méthode fut privilégiée.

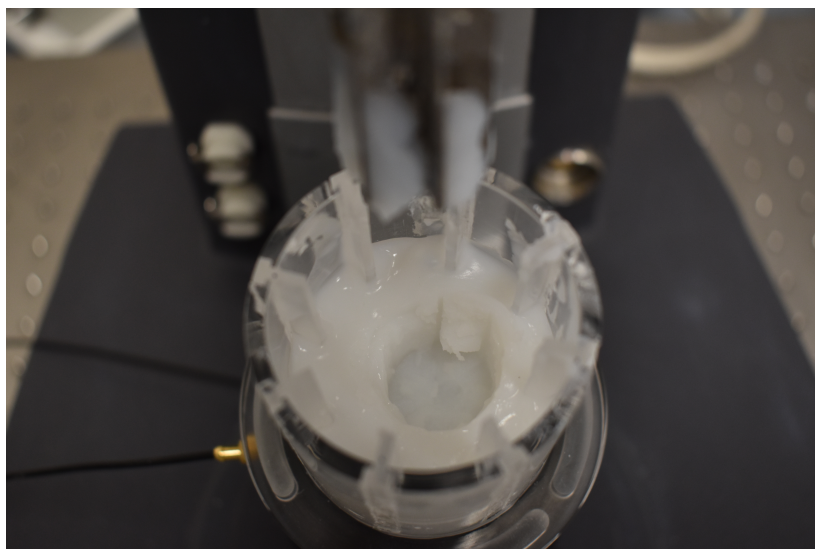


FIGURE 3.16 – Photographie d'une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  dans une cuve présentant une fracture due à l'insertion du vane.

La Figure (3.17) présente les résultats obtenus. Le couple évolue principalement de quelques unités de déformation dans son régime élastique lorsque le matériau est cisailé, suivi d'un

pic de dilatance typique dans les matériaux granulaires dilatants. Par la suite, on observe une diminution progressive de la contrainte dans le temps attribuée au creusement progressif de la surface libre, dû au comportement plastique de l'échantillon. Nous avons donc choisi de rapporter les valeurs de couple atteintes pour une déformation fixe  $\gamma = 10$ , qui devraient fournir une bonne estimation du comportement en régime permanent.

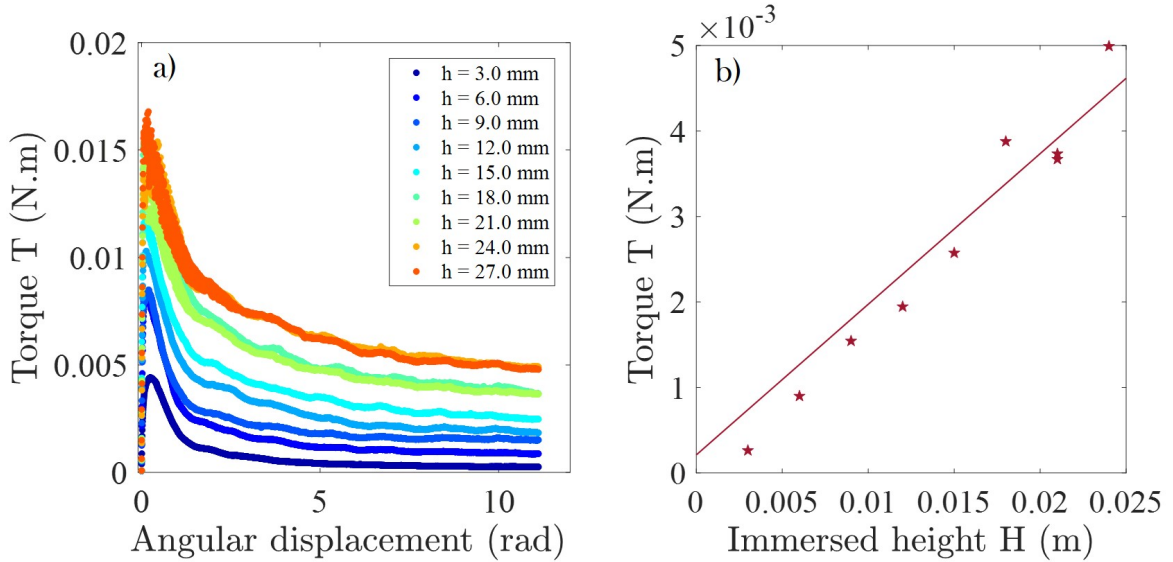


FIGURE 3.17 – a) Couple en fonction du déplacement angulaire pour une suspension silice à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . b) Couple en fonction de la hauteur immergée pour la même suspension. La ligne est une fonction linéaire issue de l'Equation (3.20).

La fraction volumique de blocage du matériau granulaire frictionnel a été précédemment estimée et vaut  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.24$ . On s'attend donc à une dilatation de ce dernier, à la fois dans les directions radiales et verticales. D'un point de vue macroscopique, on observe un changement d'aspect de la surface de l'échantillon qui passe de brillante à mate. C'est une preuve que les particules tentent de traverser l'interface air/liquide.

Cette "traversée" fournit une pression capillaire de confinement maximale que l'on peut facilement estimer avec l'expression suivante :  $p_{\text{cap}} \simeq \Gamma_t / r_p$ . Le rayon des particules est approximativement égal à  $15 \mu\text{m}$  et la tension de surface vaut  $\Gamma_t = 0.07 \text{ N.m}^{-1}$ . On a donc une pression capillaire  $p_{\text{cap}}$  d'environ 5000 Pa.

Cette valeur est beaucoup plus élevée que la contrainte gravitaire d'environ 10 Pa pour la hauteur  $H$  étudiée. On se retrouve dans la configuration décrite précédemment où les forces capillaires dominent.

De manière cohérente, les contraintes de cisaillement résultantes sont 100 fois plus élevées



que lorsque la gravité est dominante. On observe sur la Figure (3.17) b) une augmentation linéaire du couple  $T$  avec  $H$ . L'ajustement à l'aide de l'Equation (3.20) permet de déterminer un coefficient de frottement de l'ordre de  $\mu_p = 0.12$ . Cette valeur estimée du coefficient de friction  $\mu_p$  est cohérente avec les valeurs retrouvées dans la littérature sur les granulaires secs. Toutefois, cette valeur ne peut être quantitative étant donné l'approximation grossière faite sur  $p_{cap}$  et sur la densité effective de nos particules.

### 3.4.7 Diminution de la force capillaire $p_{cap}$

Pour mettre davantage en évidence le rôle des forces capillaires, des expériences supplémentaires sur le même matériau ont été réalisées, l'objectif étant de modifier ces forces capillaires pour voir l'effet sur le couple mesuré à différentes hauteurs. L'ajout d'un tensioactif est largement reconnu pour abaisser la tension de surface et donc la pression capillaire au sein d'un milieu. Cependant, cette méthode n'a pas été testée car la formulation ne doit pas être modifiée ou impactée par le rajout de potentielles interactions au sein du mélange. En revanche, l'ajout d'eau distillée au niveau de la surface de l'échantillon permet de supprimer l'interface air/liquide et donc de diminuer largement la pression capillaire.

Pour ce faire, un taux de cisaillement de  $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$  est appliqué pendant 300 secondes sur trois échantillons différents. Dans la Figure (3.18), le couple  $T$  est tracé en fonction du déplacement angulaire pour différentes hauteurs (6 mm et 9 mm). Pour chaque hauteur, trois courbes simultanées sont représentées :

- la courbe bleue est la suspension frictionnelle à  $\phi^{wt} = 0.29$ ,
- la courbe rouge est la suspension frictionnelle à  $\phi^{wt} = 0.29$  saturée avec de l'eau en surface,
- la courbe jaune représente la suspension à  $\phi^{wt} = 0.22$  sédimentée.

Pour toutes les courbes, un régime transitoire est observé. Le couple  $T$  tend vers une valeur stationnaire et se stabilise pour un déplacement angulaire d'environ 5 radians pour chaque échantillon. La valeur stationnaire du couple  $T$  pour la suspension à  $\phi^{wt} = 0.29$  saturée en eau est bien inférieure à celle de la suspension frictionnelle sans eau ajoutée et relativement proche de celle observée pour le sédiment. Il semblerait que l'ajout d'eau en surface diminue considérablement la valeur du couple qui chute d'un facteur 100.

De plus, on observe un pic initial du même ordre de grandeur pour les deux premiers échantillons. Ce pic est caractéristique de la dilatation initiale du matériau lors du cisaillement. La grande valeur de contrainte observée est probablement due aux fortes contraintes internes initiales dues au chargement de la suspension. La diminution relativement lente vers une valeur très faible de couple, confirme l'absence de forces de cohésion significatives dans la suspension préparée à  $\phi^{wt} = 0.29$ . En effet, grâce à la présence d'un surnageant, la dilatation est maintenant possible dans la direction verticale. Il est fort probable que la pression capillaire générée soit beaucoup plus faible que celle de la suspension frictionnelle. La suspension  $\phi^{wt} = 0.29$  saturée



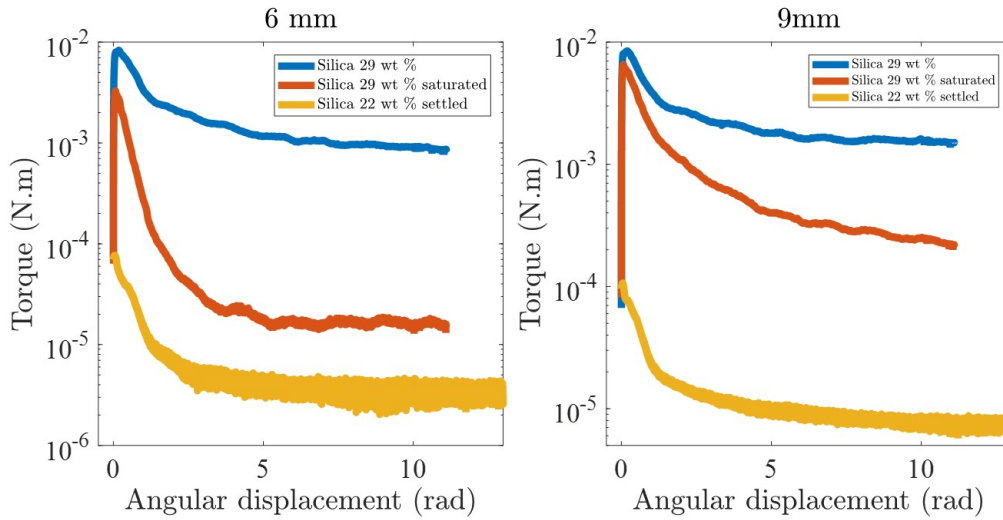


FIGURE 3.18 – Couple  $T$  en fonction du déplacement angulaire mesuré à un taux de cisaillement macroscopique de  $\dot{\gamma} = 0,1 \text{ s}^{-1}$  pour une hauteur d’immersion  $H = 6 \text{ mm}$  et  $H = 9 \text{ mm}$  dans trois matériaux différents : une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.22$  sédimentée, une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  et une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  au-dessus de laquelle de l’eau est ajoutée (à gauche : échelle linéaire, à droite : échelle semi-logarithmique).

en eau est maintenant dominée par la gravité  $\Delta\rho gh$  (comme le sédiment à  $\phi^{\text{wt}} = 0.22$ ) et non plus par la capillarité  $p_{cap}$ .

### 3.4.8 Effet Janssen

Dans cette section, on travaille uniquement à des faibles hauteurs pour éviter l’effet Janssen. Découvert en 1895 par H.A Janssen en étudiant la loi de pression d’un granulaire dans un silo rempli de maïs [68], il développe un modèle expliquant comment la friction entre grains mais également avec la paroi du silo permet de redistribuer de manière horizontale une partie du poids des grains en prenant appui sur les parois du silo comme le montre la Figure (3.19) a). Cet effet conduit à une saturation de la pression au bas du silo. Au-delà d’une certaine hauteur, l’ajout de grains n’entraîne pas d’augmentation de la pression mesurée initialement [100].

Cette saturation est visible lors des expériences réalisées sur une suspension frictionnelle à  $\phi^{\text{wt}}=0.29$ . A partir de cette valeur, comme le montre la Figure (3.19) b), le couple ne dépend plus de la hauteur immergée. L’effet Janssen est à l’origine de cette saturation observée comme expliqué précédemment. Les effets sont généralement observés pour des profondeurs supérieures à 1,5 fois la taille du gap [59] lorsque la pression particulière est régie par la gravité.

C’est pour cette raison que les mesures de couple  $T$  en fonction de la hauteur ne sont présentées que jusqu’à une hauteur de 25 mm. Dans la même idée, toutes les mesures de rhéologie sur l’impact des vibrations sont faites à une hauteur de 21 mm.

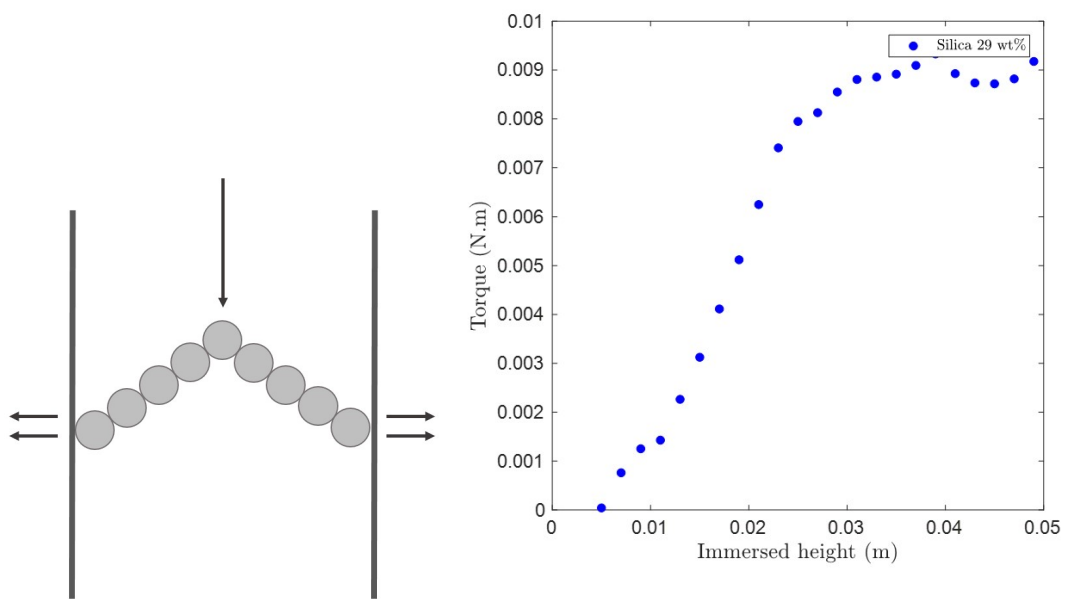


FIGURE 3.19 – a) Effet de voûte dans une colonne résultant de la transmission des contacts frictionnels entre grains. b) Saturation du couple  $T$  en fonction de la hauteur immergée pour une suspension à  $\phi^{\text{wt}}=0.29$ .



# Chapitre 4

## Comportements des suspensions sous vibrations

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Le dispositif expérimental</b>	<b>102</b>
<b>4.2</b>	<b>Vibrations d'une suspension au-dessus de <math>\phi_m</math></b>	<b>103</b>
4.2.1	Test de reproductibilité	104
4.2.2	Influence des vibrations sur la granulométrie	104
4.2.3	Courbe d'écoulement	105
4.2.4	Interprétation à l'échelle locale	107
4.2.5	Effets de la contrainte de vibration $\sigma_v$	110
4.2.6	Effets de la fraction massique $\phi^{wt}$	112
4.2.7	Viscosité relative de la suspension sans friction	114
<b>4.3</b>	<b>Modélisation du blocage dans les suspensions vibrées</b>	<b>115</b>
<b>4.4</b>	<b>Prédiction du modèle Wyart et Cates</b>	<b>117</b>
4.4.1	Diagramme de blocage	119
<b>4.5</b>	<b>Inversion de cisaillement : une nouvelle preuve de contacts</b>	<b>120</b>
4.5.1	Historique sur les inversions de cisaillement	120
4.5.2	Principe d'une inversion de cisaillement	122
4.5.3	Protocole expérimental	123
4.5.4	Régime transitoire en fonction de la fraction massique $\phi^{wt}$	124
4.5.5	Comparaison des viscosités $\eta_{min}$ et $\eta_{vib}$	126

---

Dans une précédente section, nous avons vu l'impact des vibrations sur la formulation des suspensions concentrées de silice. Au-delà de  $\phi_m$ , il est maintenant possible de passer d'une suspension initialement inhomogène avec un mélange de poudre et d'air piégé dans des granulats, à une suspension homogène grâce à l'application de vibrations. Les vibrations génèrent une faible contrainte verticale qui permet de débloquent le système et de rendre la suspension à nouveau homogène mais toujours bloquée lorsque les vibrations s'arrêtent. Pour reprendre les termes employés en granulation, on passe d'un état pendulaire à un état saturé en eau. Ce résultat permet de faire un lien entre le phénomène de granulation et la rhéologie des suspensions, déjà initié par Hodgson et al. [66] comme démontré dans le chapitre précédent.

L'étude du comportement rhéologique des suspensions granulaires (ou granulaires secs) sous vibrations a fait l'objet de nombreuses publications au cours des dernières années [39, 36, 73, 71]. Que ce soit pour des suspensions gravitaires ou des granulaires secs, les mêmes phénomènes de liquéfaction/compaction sont observés.

## 4.1 Le dispositif expérimental

Le set-up expérimental présenté ci-dessous est une réplique du dispositif présent au Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique Appliquée (LEMETA) à Vandoeuvre-lès-Nancy dans l'équipe de Sébastien Kiesgen de Richter.

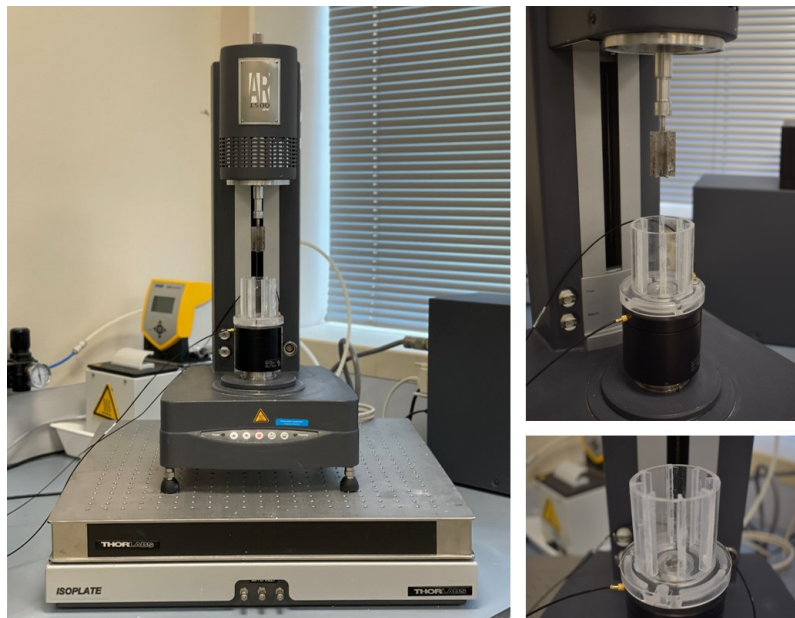


FIGURE 4.1 – Dispositif expérimental comprenant un rhéomètre AR 1500 et une géométrie vane et une cuve en PMMA avec un pot vibrant

L'appareil de mesure est un rhéomètre à contrainte imposée (TA Instrument, AR 1500). L'échantillon est placé dans une cellule de mesure analogue à une cellule de Couette. La confec-

tion de cette cuve s'est faite à l'aide d'un logiciel OpenScad. Le pot vibrant étant limité à une force de 10 N, il a fallu réduire au maximum les dimensions de la cuve pour éviter un poids trop important. De nombreux essais ont été réalisés à l'aide d'une imprimante 3D de technologie SLA avant d'obtenir la version finale. Une fois le prototype bien défini, une cuve en PMMA Poly(methyl-methacrylate) a été faite sur mesure à l'atelier mécanique du CRPP par Emmanuel Texier. L'utilisation du PMMA au lieu de la résine permet un contrôle de l'aspect du matériau, le PMMA étant transparent contrairement à la résine.

Cette cuve est munie de chicanes de 5 mm de largeur pour éviter les glissements aux parois [70]. La mesure s'effectue avec un vane à 6 pales de hauteur  $L=50$  mm et de rayon  $R=11$  mm. Cette cuve est elle-même reliée à un pot vibrant électromagnétique (type 4840, Brüel&Kjær) connecté à un amplificateur, permettant de générer des vibrations verticales et sinusoïdales. Un système de boucle de rétroaction fermée permet de réguler les vibrations à l'aide d'un contrôleur de vibrations relié à un amplificateur et un accéléromètre fixé dans l'orifice présent sur la base de la cuve (Figure (4.1)). Le rhéomètre est installé sur une table anti-vibrations de chez Thorlabs. Ce système d'isolation passif permet de réduire la transmission des vibrations générées par le pot ou en périphérie. On retrouve également ces systèmes sur la grande majorité de microscopes de type AFM, MEB ou encore MET pour éviter toute perturbation extérieure.

Marchal et al. [90] ont défini l'énergie injectée par le pot vibrant au système comme l'énergie cinétique d'un oscillateur harmonique de même masse  $m$  que l'échantillon. Cette énergie de vibration  $E_v$  peut s'exprimer en fonction de l'amplitude  $A$  et la fréquence  $f$  telle que :  $E_v = 1/2mA^2(2\pi f)^2$ . Afin de comparer au mieux cette énergie à la contrainte de cisaillement  $\sigma$ , on peut la convertir en  $\sigma_v$  la densité d'énergie cinétique injectée au système, qui est aussi une contrainte de vibration  $\sigma_v$  en divisant par le volume  $V$  de l'échantillon, ce qui donne :

$$\sigma_v = \frac{1}{2}\rho_s A^2 (2\pi f)^2 \quad (4.1)$$

avec  $\rho_s$  la densité de la suspension et  $\sigma_v$  la densité d'énergie cinétique injectée au système qui s'exprime en Pascal (Pa).

Au cours des mesures rhéologiques, l'amplitude  $A$  et la fréquence  $f$  ont été variées (indépendamment l'une de l'autre) de 100  $\mu\text{m}$  à 500  $\mu\text{m}$  et de 10 Hz à 50 Hz respectivement. La géométrie vane utilisée est immergée à une hauteur de 21 mm pour éviter l'effet Janssen comme abordé dans le chapitre précédent. Pour la hauteur choisie, aucun effet n'a été observé ce qui nous permet de négliger l'effet Janssen.

## 4.2 Vibrations d'une suspension au-dessus de $\phi_m$

Une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$ , entre  $\phi_m$  et  $\phi_{rcp}$ , a été soumise à des vibrations à l'aide du pot vibrant au cours de différentes mesures rhéologiques.

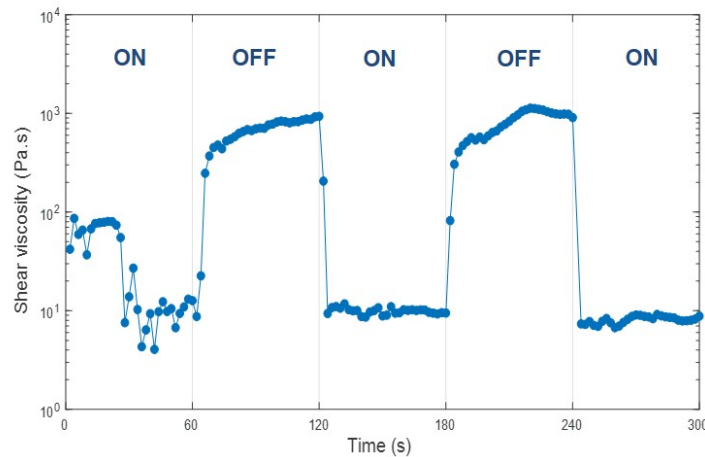


FIGURE 4.2 – Suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  soumise à des phases de vibrations toutes les trente secondes. La viscosité  $\eta$  est représentée en fonction du temps de l'expérience.

### 4.2.1 Test de reproductibilité

Un premier test simple pour visualiser l'effet des vibrations sur la viscosité consiste à appliquer un faible cisaillement de  $\dot{\gamma}=0.1 \text{ s}^{-1}$  et d'appliquer des vibrations de façon alternée avec une phase de repos toutes les trente secondes. La contrainte de vibration choisie est la plus grande que le pot peut atteindre, à savoir  $\sigma_v = 18 \text{ Pa}$ .

La Figure (4.2) présente le résultat obtenu pour ce test. La viscosité varie entre un plateau à haute viscosité  $\eta = 10^3 \text{ Pa.s}$  pendant la phase de repos et un autre plateau visqueux de faible viscosité  $\eta = 10 \text{ Pa.s}$  lorsque les vibrations sont allumées. La transition entre les deux états est réversible. La viscosité revient à sa même valeur de plateau à chaque phase de repos. Contrairement à ce qu'on peut penser, aucune compaction due aux vibrations n'est visible dans cette expérience. Ce résultat confirme que le matériau n'évolue pas au cours de l'expérience et reste homogène malgré les vibrations appliquées.

### 4.2.2 Influence des vibrations sur la granulométrie

De manière analogue aux résultats présentés sur l'influence des vibrations d'un vortex sur une suspension, nous allons vérifier que les vibrations du pot ne modifient pas l'échantillon en cassant les particules. Pour rappel, les contraintes de vibrations générées par le pot sont 100 fois plus faibles que celle générées par le vortex.

Pour cela, une suspension à  $\phi^{wt} = 0.29$  est formulée en suivant le protocole expérimental décrit dans le Chapitre 2. Cette suspension est divisée en deux échantillons. Le premier servira de référence pour la comparaison finale et le deuxième subira les vibrations à l'aide du dispositif vibration à la contrainte de vibration  $\sigma_v = 18 \text{ Pa}$  pendant dix minutes. Il est inutile de choisir

une durée plus élevée car au maximum, une mesure de rhéologie dure quatre minutes.

Une fois les vibrations terminées, les deux échantillons sont dilués jusqu'à  $\phi^{wt} = 0.22$  puis centrifugés à 4000 rpm pendant dix minutes. L'objectif est le même que dans le Chapitre 2 sur l'étude de l'influence du vortex sur la granulation. Une fois séparés en deux parties, le surnageant ainsi que le sédiment sont analysés par granulométrie laser. Des extraits secs sont également réalisés pour vérifier le pourcentage massique de chaque partie. Les résultats ne montrent aucune différence entre la suspension ayant subi les vibrations et celle n'ayant rien enduré. Les vibrations du pot vibrant n'ont donc aucun impact sur la granulométrie des particules. Ce résultat est important pour la compréhension des comportements rhéologiques observés dans le Chapitre 4.

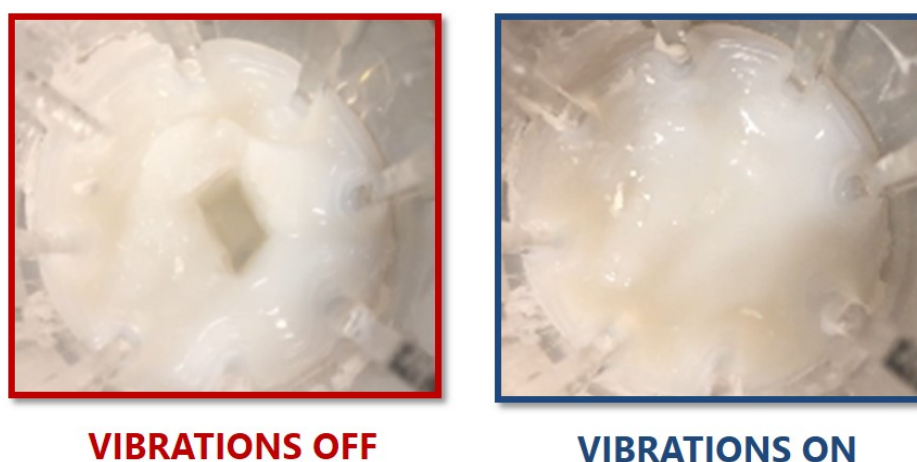


FIGURE 4.3 – Photographies d'une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  présentant une fracture avant (gauche) et après (droite) l'application de vibrations.

### 4.2.3 Courbe d'écoulement

Une courbe d'écoulement à taux de cisaillement imposé variant de  $\dot{\gamma} = 0.01 \text{ s}^{-1}$  à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  a été réalisée à la température  $T = 25^\circ\text{C}$ . La même vitesse de rampe que pour les mesures sans vibrations a été choisie soit 1 minute par décade (ou 1s/point).

Comme expliqué en amont, le matériau étant caractérisé par un plateau plastique d'origine frictionnel, il est difficile de le quantifier avec précision en contrainte imposée, ce qui explique le choix de contrôler le taux de cisaillement [29]. L'amplitude et fréquence de vibrations ont été fixées à 500  $\mu\text{m}$  et 20 Hz respectivement tout au long de la mesure correspondant à une contrainte de vibration  $\sigma_v = 3 \text{ Pa}$ . De façon équivalente à un pré-cisaillement, les suspensions les plus denses ( $\phi^{wt} = 0.28 - 29$ ) sont pré-vibrées à une fréquence  $f = 50 \text{ Hz}$  et une amplitude  $A = 500 \mu\text{m}$  pendant dix minutes avant chaque mesure pour assurer un état reproductible et homogène. Cette étape est cruciale, en particulier lorsque le matériau dans son état bloqué a été fracturé par



le vane sous cisaillement. Ces fractures disparaissent sous vibrations et la surface du matériau semble à nouveau homogène, comme le montre la Figure (4.3). Cela suggère une homogénéité du matériau dans son ensemble. Cela se confirme par la bonne reproductibilité des expériences comme nous le verrons par la suite. A des fractions massiques inférieures, les suspensions sont agitées manuellement avant chaque mesure. En effet, l'application de vibrations pendant dix minutes entraîne une légère sédimentation due à la compaction sous vibrations [50, 110].

Il est à noter également que grâce à l'utilisation d'une géométrie vane, toute la masse du matériau est vibrée. Si une géométrie Couette avait été utilisée à la place, un écoulement de cisaillement orthogonal secondaire aurait été généré [122]. Un tel écoulement 3D conduit à une fluidification apparente comme observé pour les écoulements superposés de fluides à seuil [103, 106]. Ici, ce n'est pas la superposition de l'écoulement qui génère la fluidification du matériau mais bien un phénomène à l'échelle macroscopique.

La Figure (4.4) représente les courbes d'écoulement du matériau vibré (bleue) et non-vibré (symbole vide rouge) avec a) la viscosité  $\eta$  et b) la contrainte  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement. Les symboles remplis correspondent à des suspensions non-vibrées et les symboles vides à des suspensions vibrées. Tout comme Hanotin et al. [62], lorsque des vibrations sont appliquées, on observe premièrement que le matériau n'a plus de contrainte seuil. Le matériau, se comportant initialement comme un solide plastique, devient un matériau liquide avec un plateau pseudo-newtonien à faible taux de cisaillement. La viscosité chute de trois décades avec une valeur de départ à  $\eta = 10^4$  Pa.s pour finir autour de  $\eta = 10$  Pa.s. Au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente, on observe une augmentation soudaine de la viscosité à un taux de cisaillement critique de l'ordre de  $\dot{\gamma}_c = 0.5$  s<sup>-1</sup>. Cette valeur a été obtenue en choisissant le dernier point de données avant le saut de viscosité.

Pour déterminer la contrainte critique de rhéoépaississement  $\sigma_c$ , les mesures étant réalisées en taux de cisaillement imposé, le saut discontinu de viscosité entraîne des grandes variations de contrainte de plus d'un facteur quatre. Il est donc difficile de déterminer directement sa valeur avec précision. Cette dernière est estimée en multipliant la valeur de la moyenne du plateau de viscosité observé dans le régime de faible taux de cisaillement (ici, 10 Pa.s) avec le taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ . Le choix étant arbitraire, la valeur obtenue reste donc une estimation.

Contrairement à une transition classique de rhéoépaississement (où l'on passe d'un état peu visqueux à un état très visqueux), ici on passe d'un état visqueux à un état bloqué. On parle de transition *shear-jamming*. Dans ce régime bloqué, comme pour la suspension non vibrée, l'écoulement forcé par la rotation du vane aboutit à la séparation du système en deux : une bande d'écoulement de faible densité avec une fraction volumique locale inférieure  $\phi_m$  et une zone bloquée à haute densité. La valeur rapportée du taux de cisaillement est donc une valeur apparente. Enfin, à des taux de cisaillement plus élevés, le comportement plastique de la suspension non

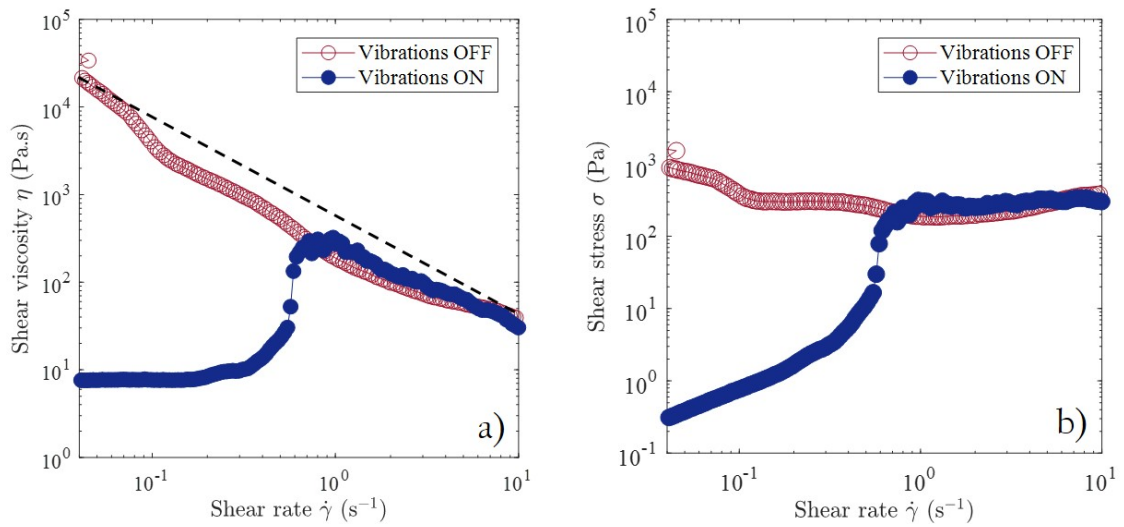


FIGURE 4.4 – Courbes d'écoulement d'une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$  avec a) la viscosité  $\eta$  et b) la contrainte  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement. La ligne en pointillés représente une pente  $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$  pour mettre en évidence le comportement plastique de la suspension non vibrée.

vibrée est récupéré avec une viscosité apparente  $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$ . Il est important de préciser que cette transition est possible uniquement lorsque la contrainte seuil  $\sigma_y$  est petite devant  $\sigma_c$ . Dans ce cas, le système possède un seuil à surpasser puis s'écoule avant la transition de rhéoépaississement [45]. A l'inverse, lorsque  $\sigma_y > \sigma_c$ , la contrainte seuil masque cette transition et n'est donc pas visible [57, 15].

#### 4.2.4 Interprétation à l'échelle locale

De manière équivalente à  $\phi_c$  qui représente l'état critique des matériaux granulaires,  $\phi_m$  est la fraction volumique de blocage  $\phi_j(\mu_p = \mu_0)$  pour une suspension frictionnelle de particules avec un coefficient de friction interparticulaire  $\mu_0 \neq 0$ . Expérimentalement, c'est la fraction volumique à laquelle la viscosité de la suspension diverge et également à laquelle commence la granulation. De plus,  $\phi_j(\mu_p = 0)$  est la fraction volumique de blocage des mêmes particules en l'absence de friction, comme si les particules étaient sans frottement.

Les deux régimes observés en fonction du taux de cisaillement peuvent être interprétés de la façon suivante :

##### A faible taux de cisaillement $\dot{\gamma}$

Les vibrations dominant provoquant l'apparition d'un régime visqueux. La contrainte seuil  $\sigma_y$  ayant disparu, la contrainte de vibration  $\sigma_v$  devient prédominante devant la contrainte de rhéoépaississement  $\sigma_c$  et un régime visqueux est observé. Les vibrations générées permettent

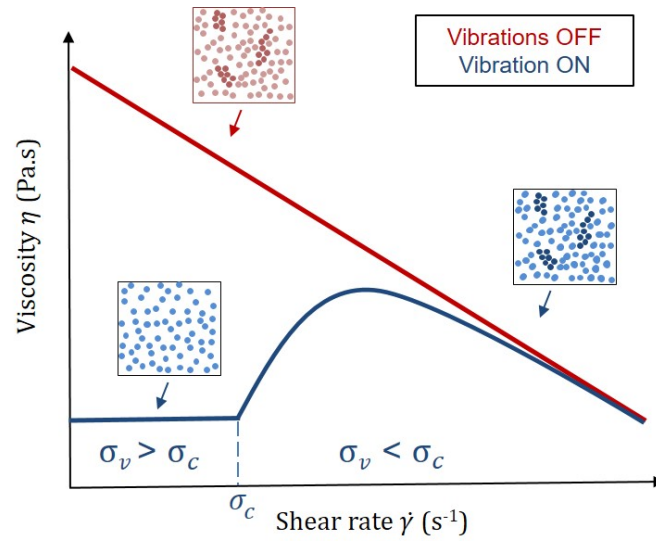


FIGURE 4.5 – Représentation schématique du comportement d’une suspension  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ .

de renouveler et ainsi diminuer, au moins partiellement, les contacts entre particules, comme le propose Hanotin et al. [62]. Ce renouvellement permanent des contacts permet de diminuer la valeur du coefficient de friction  $\mu_p$ . En conséquence, la valeur de la fraction volumique de blocage  $\phi_j$ , initialement égale à  $\phi_m$  mais inférieure à la fraction volumique de silice  $\phi$ , a été augmentée. Cette dépendance de la fraction volumique de blocage  $\phi_j$  avec le coefficient de friction  $\mu_p$  est indéniable. En partant de ce principe, la valeur de  $\phi_j$  peut a priori tendre vers  $\phi_{\text{rcp}}$  si tous les contacts sont supprimés sous l’action des vibrations [66]. La suspension se comporterait alors comme une suspension de particules sans friction avec un coefficient  $\mu_p \approx 0$ . Cette possibilité est discutée ultérieurement avec des expériences d’inversion de cisaillement.

### A grand taux de cisaillement $\dot{\gamma}$

En augmentant le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , le comportement de la suspension frictionnelle est retrouvé. La contrainte de vibration  $\sigma_v$  n’est plus suffisante pour permettre de maintenir un régime visqueux. Après une transition de *shear-jamming* à un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c \simeq 0.5 \text{ s}^{-1}$  (et donc une contrainte critique  $\sigma_c \simeq 5 \text{ Pa}$ ), le matériau se comporte à nouveau comme un fluide à seuil. Le cisaillement oblige les particules à se rencontrer de nouveau entraînant une augmentation du coefficient de friction  $\mu_p$ . La fraction volumique de blocage  $\phi_j$  est de nouveau réduite en dessous de  $\phi$ , pour revenir à sa valeur initiale  $\phi_m$ . Cette transition entre deux régimes indique une compétition entre la rupture de contacts par vibrations et la formation de contacts par cisaillement : il existe une valeur critique de contrainte  $\sigma_c$  (ou de taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_c$ ) pour laquelle la formation de contacts induite par le cisaillement commence à être plus efficace. Nous verrons par la suite l’influence des vibrations sur cette valeur critique.

Pour résumer cette partie, une première transition à bas taux de cisaillement se produit entre

une suspension frictionnelle et une suspension sans friction, lorsque les vibrations sont appliquées. La fraction volumique de blocage  $\phi_j$  transite alors de  $\phi_j^{(\mu_p=\mu_0)} = \phi_m$  à  $\phi_j^{(\mu_p=0)} = \phi_{rcp}$  lors de l'activation des vibrations à faible taux de cisaillement. La fraction massique  $\phi^{wt}$  initialement entre  $\phi_j^{(\mu_p=\mu_0)}$  et  $\phi_{rcp}$ , passe en dessous de  $\phi_j^{(\mu_p=\mu_0)}$ , se retrouvant alors dans un régime visqueux où le matériau est libre de s'écouler. Gaudel et al. [55] ont montré que le comportement de type Newtonien observé à faible cisaillement est attribué à un processus diffusif à l'échelle des particules. Le temps de réarrangement dû aux vibrations  $\tau_{vib} \sim 1/f \sim 100$  est plus petit que le temps de réarrangement des grains dû à l'écoulement  $\tau_{\dot{\gamma}} \sim 1/\dot{\gamma} \sim 1000$  s.

Au fur et à mesure que le taux de cisaillement croît, une seconde transition entre une suspension sans friction et une suspension frictionnelle émerge. La fraction de blocage  $\phi_j^{(\mu_p=0)}$  repasse au-dessus de  $\phi$  à  $\phi_j^{(\mu_p=\mu_0)} = \phi_m$ . Le matériau se trouve à nouveau dans le régime bloqué entre les deux fractions caractéristiques. Un schéma récapitulatif est exposé sur la Figure (4.6).

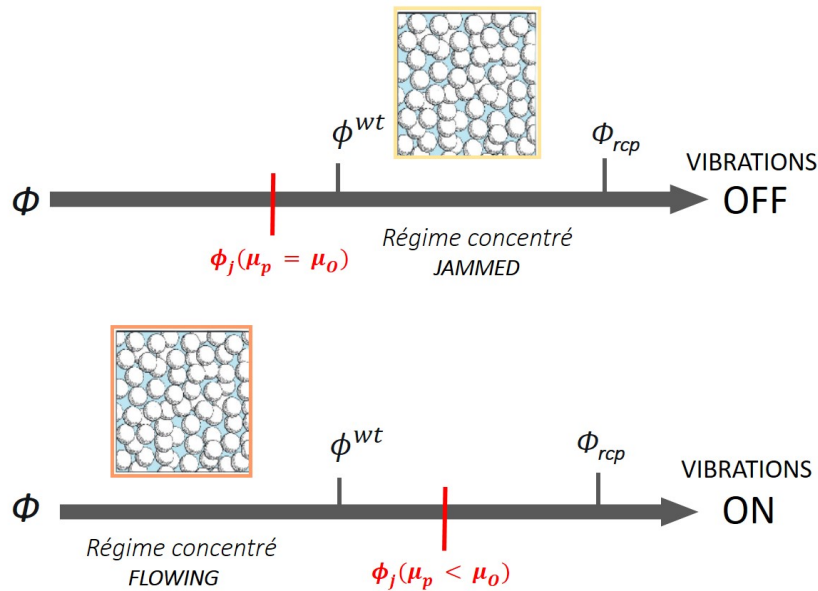


FIGURE 4.6 – Schéma représentant le changement de régime et de valeurs de  $\phi_j$  en fonction des vibrations appliquées ou non pour une valeur  $\phi^{wt} = 0.29$ .

Le scénario d'une compétition entre une rupture de contacts par les vibrations et la formation de contacts par cisaillement est similaire au mécanisme proposé par Hanotin et al. [62]. En revanche, aucune transition de *shear-jamming* n'a été remarquée. Au cours de leurs expériences, les matériaux étudiés étaient, pour la plupart du temps, des suspensions gravitaires libres de se dilater dans la direction de la vorticit , alors que la suspension étudi e dans cette th se est confin e par la tension de surface   fraction volumique  $\phi$  fixe.

En effet, dans Hanotin et al. [62], une contrainte de confinement constante,   savoir la gravit   $\Delta\rho gh$ , a  t  appliqu e sur une suspension s diment e. La fraction volumique  tait libre de

varier au cours de la mesure, empêchant probablement le blocage des particules de se produire. Par conséquent, en augmentant le taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , la fraction volumique  $\phi$  diminue simultanément avec la valeur de  $\phi_j$ . En d'autres termes, la fraction volumique  $\phi$  peut rester en dessous de  $\phi_j$  même lorsque les vibrations ne sont plus efficaces contrairement à notre cas.

#### 4.2.5 Effets de la contrainte de vibration $\sigma_v$

Pour mieux comprendre le rôle des vibrations, l'impact d'un changement d'amplitude  $A$  et/ou de fréquence  $f$  sur les suspensions est étudié. Le même protocole que précédemment est utilisé avec pour seul paramètre modifié la contrainte de vibration. Tous les autres paramètres (vitesse de rampe, concentration en silice..) restent inchangés. Entre chaque courbe, la suspension est pré-vibrée pendant dix minutes pour repartir d'un état homogène sans fracture à la contrainte de vibration la plus grande. La Figure (4.7) présente les courbes d'écoulement d'une suspension vibrée à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ , pour différentes valeurs de  $A$  et  $f$ . L'échelle de couleurs représente les valeurs de  $\sigma_v$  et la légende montre les différentes valeurs de fréquence et amplitude. Une même contrainte de vibration peut être obtenue pour un couple amplitude/fréquence différent. La gamme de fréquence et d'amplitude choisie correspond aux limites du pot vibrant :  $0.7 < \sigma_v < 15$  Pa. Il n'est pas possible de générer des contraintes plus grandes avec les conditions expérimentales choisies.

Globalement, le même comportement rhéologique est observé pour toutes les contraintes de vibration choisies à savoir une disparition de la contrainte seuil accompagnée d'une fluidification à faible taux de cisaillement. Pour des taux de cisaillement suffisamment élevés, une transition de *shear-jamming* à un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  est notable. La diminution de la contrainte de vibration entraîne une réduction du taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  avec à la fois  $A$  et  $f$ . Ainsi, plus l'énergie injectée au système est grande, plus la transition sera retardée. A l'inverse, si l'énergie est trop faible, aucune fluidification n'est observée et le matériau se comporte comme un solide plastique.

En contrepartie, le changement d'amplitude  $A$  et de fréquence  $f$  ne semble pas avoir d'impact significatif sur la viscosité au niveau du plateau visqueux où les vibrations dominent. La valeur de viscosité reste approximativement la même autour de 10 Pa.s. Cette caractéristique diffère des observations faites par Hanotin et al. [62] où la valeur du plateau dépend de la contrainte de vibration appliquée. Plus les vibrations sont grandes, plus la valeur du plateau visqueux est faible. Ils ont montré par des mesures locales que le temps caractéristique de réarrangement des particules  $\tau_R$ , correspondant au temps entre deux sorties de cage, est cohérent avec celui obtenu par mesures rhéologiques. Ce temps décroît avec les vibrations tel que  $\tau_R = (\sqrt{\sigma_v})^{-1}$ . Cette dépendance a été attribuée à l'augmentation de la proportion des contacts ouverts avec  $\sigma_v$  [64]. Dans notre cas, on peut faire l'hypothèse que les vibrations sont pleinement efficaces pour ouvrir tous les contacts à faible taux de cisaillement. Cette hypothèse reste à prouver

et ne peut être considérée comme une affirmation pour le moment. De nombreuses questions restent à soulever telles que : existe-t-il des valeurs critiques de  $\sigma_v$  pour initier la fluidification et/ou atteindre la fluidification complète ? Cependant, en raison des limites du dispositif vibrant ( $0.7 \text{ Pa} \leq \sigma_v \leq 15 \text{ Pa}$ ), il n'est pas possible d'y répondre.

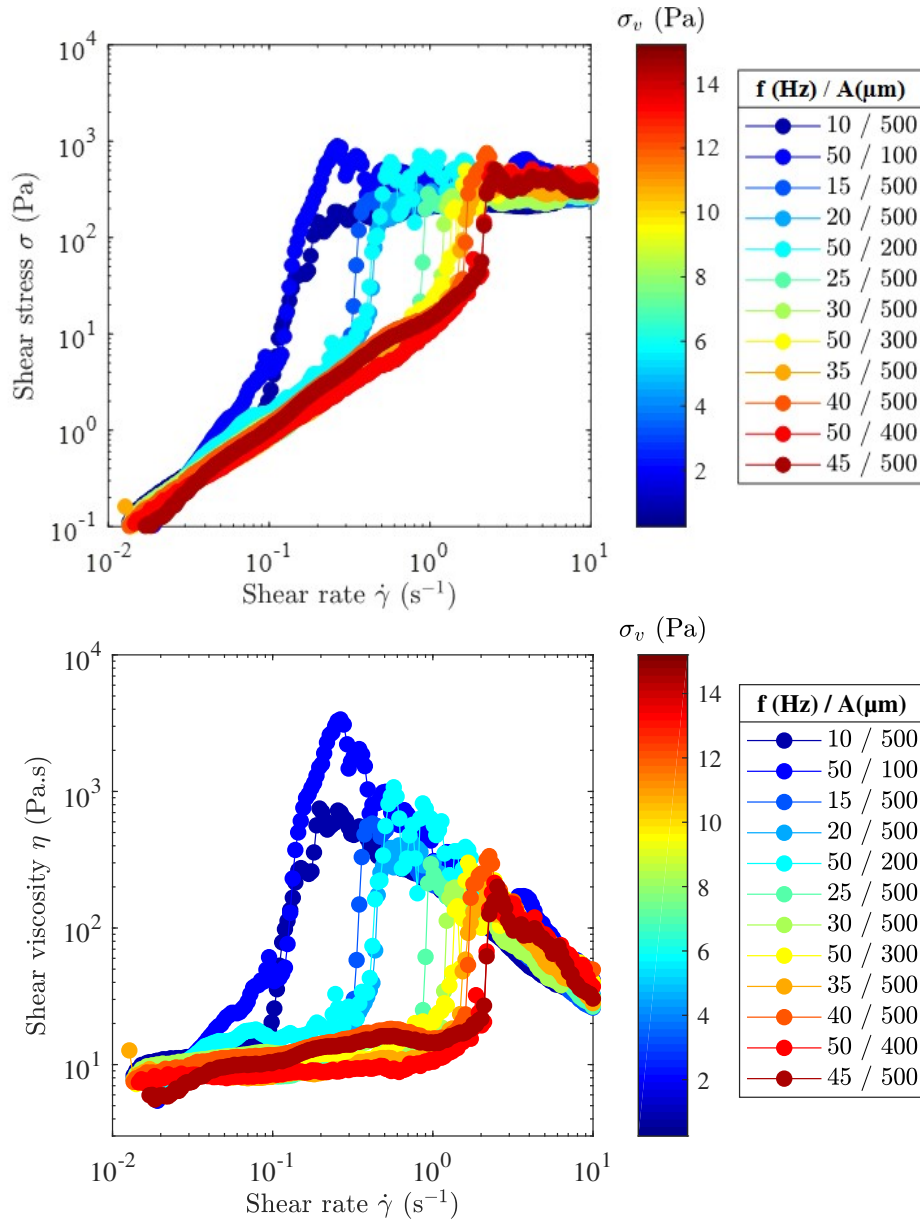


FIGURE 4.7 – Courbes d'écoulement d'une suspension de silice vibrée  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . En haut, la contrainte  $\sigma$  et en bas la viscosité  $\eta$  sont tracées en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour différentes valeurs d'amplitude  $A = [100 - 500] \mu\text{m}$  et fréquence  $f = [10 - 45] \text{ Hz}$  de vibration. L'échelle montre également les valeurs de la contrainte de vibration correspondante  $\sigma_v$ .

Pour tester davantage l'idée que la contrainte de vibration peut être assimilée à une densité

d'énergie injectée au système, le taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  ainsi que la contrainte critique  $\sigma_c$  sont tracés en fonction de  $\sigma_v$  sur la Figure (4.8).

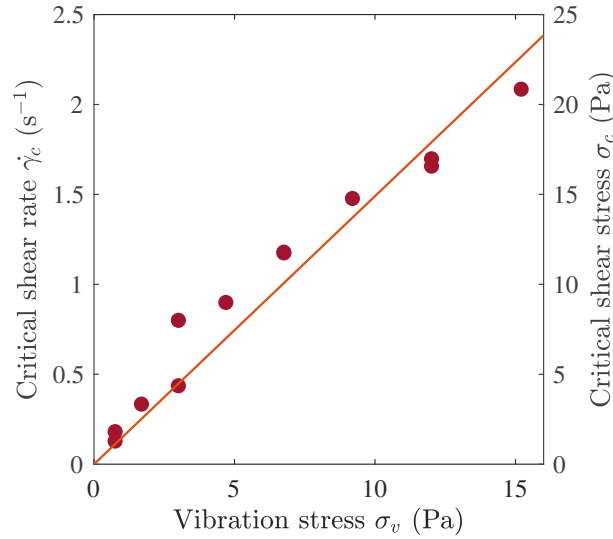


FIGURE 4.8 – Taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  et contrainte critique  $\sigma_c$  en fonction de  $\sigma_v$  pour une suspension  $\phi^{wt} = 0.29$ . La ligne rouge est une loi affine de type  $y=f(x)$ . On trouve un coefficient directeur de  $\sigma_c \simeq 1.5\sigma_v$ .

Le taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  et la contrainte critique  $\sigma_c$  semblent être linéairement proportionnels à  $\sigma_v$ . Un ajustement linéaire permet de sortir un coefficient directeur de  $\sigma_c = 1.5\sigma_v$ . La conséquence de cette proportionnalité sera étudiée plus en détail lors de la modélisation du comportement des suspensions vibrées.

Cette proportionnalité avec à la fois  $A^2$  et  $f^2$  est également claire lorsque la contrainte critique est tracée indépendamment par rapport à  $A$  pour une valeur fixe de  $f$ , et par rapport à  $f$  pour une valeur fixe de  $A$ . Les données obtenues sur la Figure (4.9) sont cohérentes avec une dépendance  $A^2$  et  $f^2$  comme le prouvent les lignes rouges représentant des fonctions quadratiques.

#### 4.2.6 Effets de la fraction massique $\phi^{wt}$

Après avoir vu l'impact d'un changement de contrainte de vibration  $\sigma_v$ , un changement de la fraction massique en particules  $\phi^{wt}$  sur les courbes d'écoulement a été réalisé entre  $\phi_m^{wt} < \phi^{wt} < \phi_{rcp}^{wt}$ . A partir d'une suspension de silice à  $\phi^{wt} = 0.29$ , des dilutions avec de l'eau distillée ont été faites pour obtenir les concentrations inférieures. Pour éviter de modifier la granulométrie, le mélange est effectué à l'aide d'une spatule.

Le même protocole que les sections précédentes a été utilisé pour les courbes d'écoulement. La contrainte de vibration choisie est de  $\sigma_v = 3$  Pa avec une amplitude  $A = 500$   $\mu m$  et une fréquence  $f = 20$  Hz. Les différentes fractions massiques étudiées sont affichées sur la Figure (4.10). Les valeurs en dessous de  $\sigma = 0.1$  Pa ne sont pas affichées.



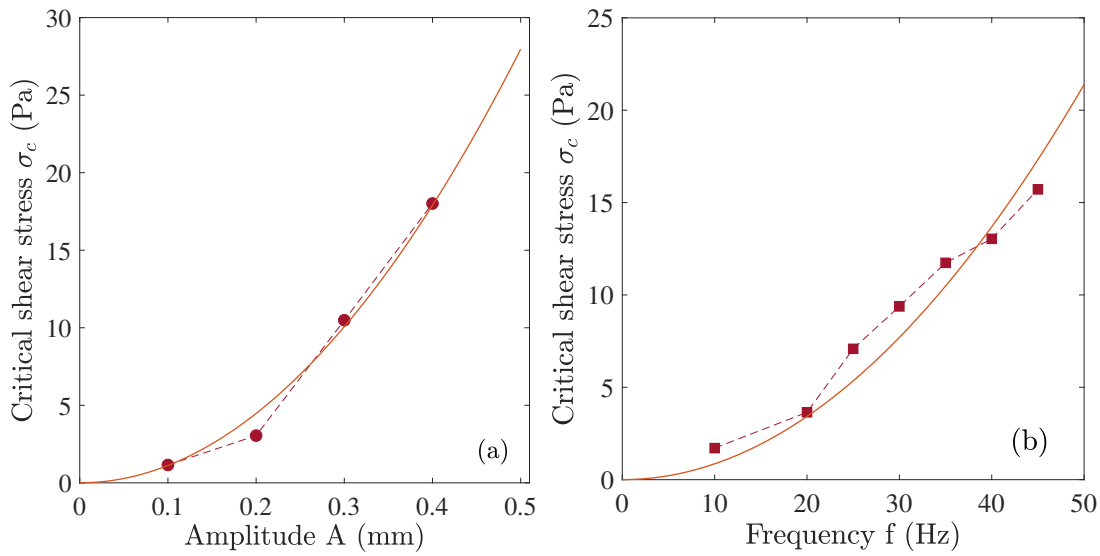


FIGURE 4.9 – Contrainte critique  $\sigma_c$  : (a) en fonction de l'amplitude de vibration  $A$  pour une valeur donnée de fréquence  $f = 50$  Hz, et (b) en fonction de la fréquence de vibration  $f$  pour une valeur donnée de l'amplitude  $A = 500 \mu\text{m}$ . Les lignes pleines correspondent à des fonctions quadratiques.

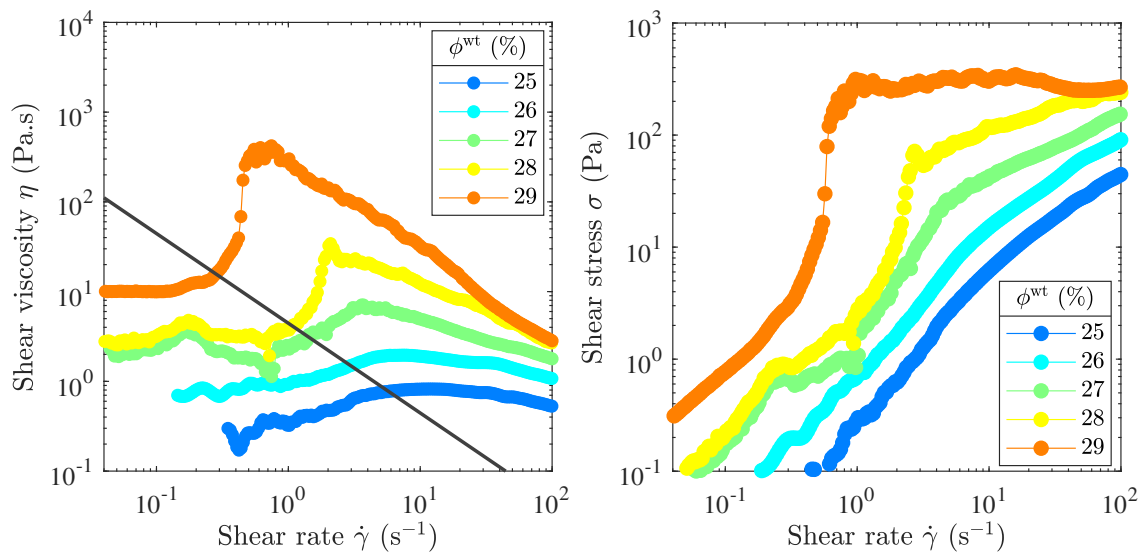


FIGURE 4.10 – Courbes d'écoulement des suspensions de silice à différentes fractions massiques. Gauche : viscosité  $\eta$  Droite : contrainte  $\sigma$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ . L'amplitude de vibration est fixée à  $A = 500 \mu\text{m}$  et la fréquence  $f = 20$  Hz, correspondant à  $\sigma_v = 3$  Pa. La ligne pleine noire est une ligne de contrainte constante à  $\sigma = 4.5$  Pa.

En présence de vibrations, pour toutes les fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$  étudiées, la contrainte seuil disparaît pour donner lieu à un comportement pseudo-newtonien à faible taux de cisaillement. Les courbes d'écoulement présentent, comme précédemment, une transition de *shear-jamming* à



un certain taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_c$ , où le comportement en l'absence de vibrations est récupéré. Comme observé classiquement pour les suspensions rhéoépaississantes [96], la viscosité de plateau augmente à mesure que la concentration  $\phi^{\text{wt}}$  augmente. La transition est observée à des valeurs  $\dot{\gamma}_c$  de plus en plus faibles lorsque la fraction massique  $\phi^{\text{wt}}$  est augmentée. Elle est également de plus en plus abrupte, passant d'un rhéoépaississement continu (CT) à discontinu (DST) à l'approche de  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ .

Dans la littérature, il est souvent rapporté que le rhéoépaississement se produit à une contrainte de cisaillement  $\sigma_c$  à peu près constante lors du changement de la fraction de particules [96, 91, 76, 89]. Cette affirmation est en accord avec les données obtenues pour notre système. Une ligne noire à contrainte de cisaillement constante  $\sigma = 4.5$  Pa est tracée sur la Figure (4.10) pour confirmer cette hypothèse.

### Variations de la contrainte de vibration

De façon similaire, lors d'un changement de la contrainte de vibration  $\sigma_v$ , le même comportement est observé pour toutes les fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$  que pour la suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  avec un taux de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$  augmentant avec  $\sigma_v$ . La Figure (4.11) affiche les courbes d'écoulement d'une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.28$  (gauche) et à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$  (droite) pour différentes valeurs de  $\sigma_v$  et également pour la suspension non vibrée. En revanche, la gamme de contrainte de vibration accessible est beaucoup plus restreinte lorsqu'on diminue la concentration. La raison principale est l'aspect de plus en plus "liquide" des suspensions. Des contraintes de vibration trop importantes entraînent des éclaboussures et rendent les mesures de rhéologie impossibles.

La suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.28$  présente le même comportement que celui observé pour la suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ . Un plateau visqueux suivi d'une transition de rhéoépaississement discontinu sont visibles. De même, la viscosité de plateau, indépendante des vibrations appliquées, est plus faible avec une valeur estimée à  $\eta = 3$  Pa.s. La transition est décalée vers un taux de cisaillement  $\dot{\gamma}_c$  supérieur lorsque l'on augmente  $\sigma_v$ , comme observé pour les autres fractions massiques de particules. Par ailleurs, pour la suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$ , un rhéoépaississement continu est observé. Au vu des limites du rhéomètre (0.1 Pa), il est difficile de distinguer un plateau visqueux, ce qui explique les oscillations obtenues à bas taux de cisaillement.

### 4.2.7 Viscosité relative de la suspension sans friction

Afin de justifier que les vibrations agissent comme une densité d'énergie injectée au système provoquant le renouvellement des contacts et l'obtention d'une suspension sans friction, la viscosité relative  $\eta_r^{\text{vib}} = \eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  dans le régime visqueux est tracée sur la Figure (4.12) en fonction de la fraction massique  $\phi^{\text{wt}}$ . A partir de la Figure (4.10), la valeur de viscosité de plateau  $\eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})$  est moyennée puis relevée à faible contrainte de cisaillement  $\sigma = 0.1$  Pa pour une même contrainte de vibration  $\sigma_v = 3$  Pa. La viscosité dépend de la contrainte de cisaillement,

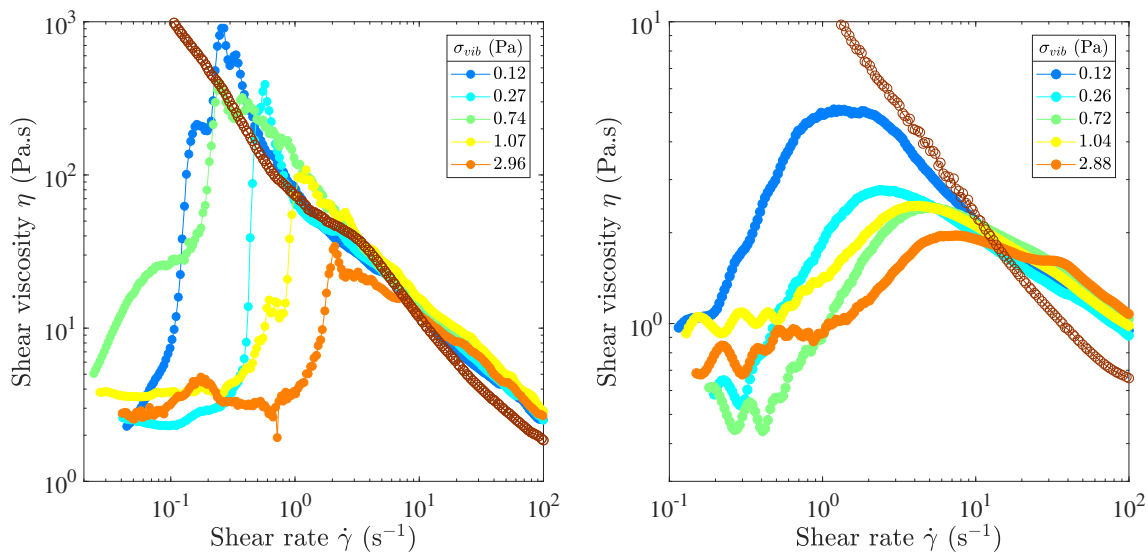


FIGURE 4.11 – Courbes d’écoulement d’une suspension de silice à  $\phi^{\text{wt}} = 0.28$  (gauche) et à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$  (droite) : viscosité de cisaillement  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour différentes valeurs de contrainte de vibration  $\sigma_v$ . Les symboles vides correspondent aux échantillons non vibrés.

il est donc important de choisir à une même valeur de  $\sigma$  pour pouvoir comparer. La viscosité relative  $\eta_r^{\text{vib}}$  diverge conformément à une loi de puissance de type Maron-Pierce telle que :

$$\eta_r^{\text{vib}} = C \left(1 - \frac{\phi^{\text{wt}}}{\phi_j^{\text{wt}}}\right)^{-2} \quad (4.2)$$

avec  $C = 18$  et une valeur de  $\phi_j^{\text{wt}}$  égale à 0.303.

La fraction massique de blocage obtenue  $\phi_j^{\text{wt}}$  par ajustement est très proche de la fraction massique maximale estimée plus tôt à  $\phi_j^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . Cette valeur est attendue dans le cas d’une suspension sans friction  $\phi_j^{\mu_p=0}$  définie précédemment comme  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . Ce résultat suggère fortement que le rôle des vibrations est bien d’ouvrir les contacts entre particules et qu’elles sont ici pleinement efficaces, créant une suspension sans frottement. Cette possibilité sera étudiée dans une prochaine section avec des expériences complémentaires de renversement de cisaillement.

### 4.3 Modélisation du blocage dans les suspensions vibrées

En combinant le modèle développé par Wyart et Cates [125] pour modéliser le comportement des suspensions rhéoépaississantes et la contrainte de vibration  $\sigma_v$  introduite par Hanotin et al. [62] pour rendre compte de l’impact des vibrations sur le comportement des suspensions frictionnelles, il est possible de modéliser le comportement de nos suspensions.

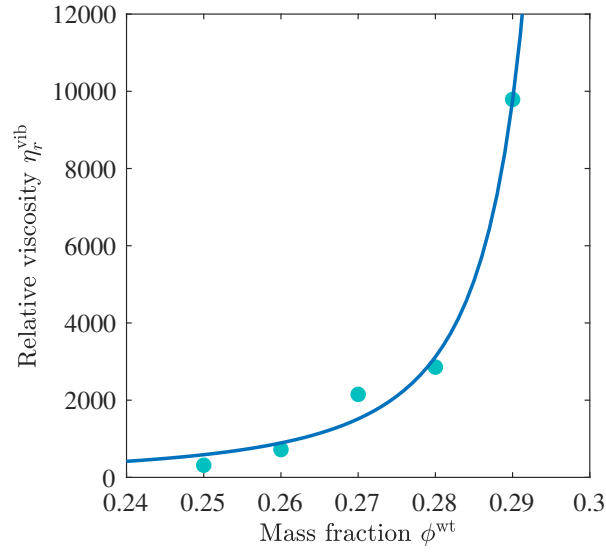


FIGURE 4.12 – Viscosité relative  $\eta_r^{\text{vib}} = \eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  dans le régime de type liquide des suspensions vibrées en fonction de la fraction massique de la suspension  $\phi^{\text{wt}}$ . La droite correspond à une loi de puissance de Maron-Pierce  $\eta_r^{\text{vib}} = C(1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_j^{\text{wt}})^{-2}$ , avec  $C = 18$  et  $\phi_j^{\text{wt}} = 0.303$ .

Selon Wyart et Cates [125], la variation de la fraction de contacts  $f_c$  avec la contrainte de cisaillement  $\sigma$  provient de l'existence d'une force répulsive à courte portée  $F_r$  entre les particules. Au repos et à faible contrainte de cisaillement appliquée, il n'y a pas de contact direct entre les particules. La force de répulsion  $F_r$  permet de maintenir les particules éloignées les unes des autres. En revanche, pour des contraintes de cisaillement plus élevées, les forces normales hydrodynamiques entre les particules peuvent surpasser cette force de répulsion pour créer des contacts frictionnels. Il existe une fonction décrivant cette fraction de contact  $f_c$  :

$$f_c = \exp(-(\sigma_r/\sigma)^\beta) \quad (4.3)$$

où  $\sigma_r$  est la contrainte répulsive typique à surmonter et  $\beta \simeq 1$  un paramètre constant.

Grâce à des simulations numériques, Singh et al. [118] ont montré que cette contrainte répulsive  $\sigma_r$  peut être reliée à une force répulsive  $F_r$  telle que :

$$\sigma_r = 2.9 F_r / (3\pi d^2) \quad (4.4)$$

avec  $d$  le diamètre des particules et  $F_r$  la force répulsive. De manière générale, cette contrainte est de l'ordre de la contrainte critique de rhéoépaississement  $\sigma_c$ .

Dans notre système, il n'y a pas de force de répulsion significative entre les particules. Cependant, Gaudel et al. [55] a démontré que les vibrations agissent comme une source d'énergie externe qui se dissipe par un mouvement de diffusion des particules. Le coefficient de diffusion

des particules est contrôlé par la densité d'énergie cinétique  $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$ . En revanche, Gaudel et al. [55] a étudié ce comportement diffusif uniquement dans le régime dominé par les vibrations où le plateau visqueux dépend de  $\sigma_v$  [63]. Néanmoins, on peut tout de même considérer que les vibrations introduisent une force répulsive efficace de type thermique entre les particules, leur permettant de se déplacer librement dans le liquide sans former des contacts.

De manière analogue, le comportement des suspensions browniennes présentant du rhéoépaississement est similaire à celui des suspensions de particules répulsives, le mouvement brownien jouant le rôle de force répulsive supplémentaire [93]. En l'absence de force répulsive, Mari et al. [93] a trouvé que la contrainte critique  $\sigma_c$  des suspensions browniennes lors de la transition de rhéoépaississement vaut :

$$\sigma_c \simeq \frac{5k_B T}{a^3} \quad (4.5)$$

avec  $T$  la température et  $a$  le rayon de la particule.

Dans une suspension brownienne, la densité d'énergie injectée par l'agitation thermique est de l'ordre de  $\sim k_B T/a^3$ , ce qui est proche de  $\sigma_c$  pour ces suspensions. En identifiant cette densité d'énergie et celle injectée par les vibrations, il semble naturel de supposer que la contrainte critique de rhéoépaississement  $\sigma_c$  est proportionnelle à  $\sigma_v$ . Cette hypothèse est précisément ce qui est observée expérimentalement ( $\sigma_c = 1.5\sigma_v$  dans la Figure (4.8)). En utilisant l'approche de Wyart et Cates [125] décrite ci-dessus pour modéliser le comportement rhéoépaississant de notre matériau, avec l'Equation (4.3) et une contrainte de répulsion  $\sigma_r$  de l'ordre de contrainte critique  $\sigma_c$ , on obtient :

$$\sigma_r = \alpha\sigma_v \quad (4.6)$$

où  $\alpha$  est une constante supposée être d'ordre 1.

## 4.4 Prédiction du modèle Wyart et Cates

Pour des particules non-brownienne sphériques, Wyart et Cates [125] considère que les contacts interparticulaires sont soit lubrifiés, soit frictionnels, et que la fraction volumique de blocage  $\phi_j$  est fonction de la fraction de contact  $f_c$ . En conséquence, en l'absence de contact ( $f_c = 0$ ), la fraction  $\phi_j(f_c)$  doit être égale à la fraction de compacité maximale  $\phi_{\text{rcp}}$  et réciproquement, lorsque tous les contacts sont frictionnels ( $f_c = 1$ ), la fraction  $\phi_j$  est égale à la fraction volumique où la viscosité diverge  $\phi_m$  et où  $\phi_m$  dépend de la valeur du coefficient de friction interparticulaire  $\mu_p$ . Une fonction d'interpolation simple a été proposée :

$$\phi_j(f_c) = f_c\phi_m + (1 - f_c)\phi_{\text{rcp}} \quad (4.7)$$

Pour des suspensions de fraction volumique inférieure à  $\phi_j(f_c)$ , l'Equation (4.7) est utilisée pour décrire macroscopiquement le comportement du matériau dans le régime visqueux tel que :

$$\sigma = \eta_f \eta_r(\phi/\phi_j(f_c)) \dot{\gamma} \quad (4.8)$$

avec  $\eta_f$  la viscosité du fluide interstitiel.

En reprenant la loi de Maron-Pierce, la viscosité relative  $\eta_r$  de la suspension est donnée par :

$$\eta_r(\phi/\phi_j(f_c)) = \frac{C}{(1 - \phi/\phi_j(f_c))^2} \quad (4.9)$$

où  $C$  est un paramètre libre.

Dans la littérature, la valeur de  $C$  est généralement rapportée à 1 pour des sphères [58, 118]. Dans l'Equation (4.3), l'exposant  $\beta$  est un paramètre constant. Par simulation numérique, Singh et al. [118] ont trouvé une valeur  $\beta = 1$  alors que dans les expériences de Guy et al. [60], la valeur  $\beta = 0.85$  est rapportée.

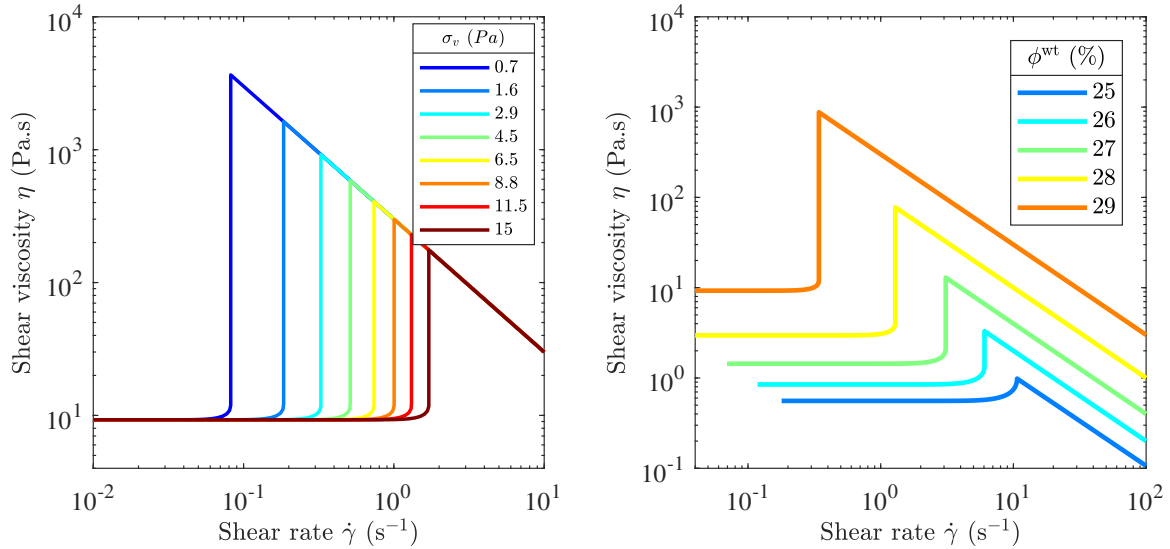


FIGURE 4.13 – Prédiction du modèle de Wyart et Cates [125] pour la viscosité en fonction du taux de cisaillement. A gauche : pour  $\phi^{wt} = 0.29$  pour les différentes contraintes de vibration  $\sigma_v$  étudiées expérimentalement ; à droite : pour  $\sigma_v = 3$  Pa pour les diverses fractions massiques  $\phi^{wt}$  explorées.

Pour illustrer ce modèle avec nos systèmes, on combine les Equations (4.7)–(4.3) avec  $\beta = 1$ . On transforme également le rapport des fractions volumiques  $\phi/\phi_j(f_c)$  en fractions massiques  $\phi^{wt}/\phi_j^{wt}(f_c)$ . Les valeurs caractéristiques utilisées sont choisies telles que :  $\phi_j^{wt}(f_c = 0) = \phi_{rcp}^{wt} = 0.303$  et  $\phi_j^{wt}(f_c = 1) = \phi_m^{wt} = 0.24$ . Pour terminer, la valeur  $C = 18$  est récupérée sur la Figure (4.12).

Les Equations (4.8) et (4.9) peuvent être utilisées tant que  $\phi < \phi_j(f_c)$ . En revanche, pour  $\phi \geq$

$\phi_j(f_c)$ , le modèle original ne peut pas décrire le comportement à l'état bloqué. Pour cela, il faut décrire le comportement sous la forme  $\sigma \simeq \sigma_y$  avec les valeurs  $\sigma_y$  trouvées expérimentalement. Cette description n'est valable que si la contrainte critique lors de la transition est inférieure à  $\sigma_y$ . Dans nos expériences, la plus grande valeur est de l'ordre de 20 Pa, ce qui est largement inférieur à la contrainte seuil  $\sigma_y$  de 1000 Pa.

Les prédictions du modèle de Wyart et Cates [125] sont présentées dans la Figure (4.13). La figure de gauche représente pour une fraction massique fixe  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$ , la viscosité  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  à différentes contraintes de vibration  $\sigma_v$  étudiées expérimentalement (comme dans la Figure (4.7)). De la même manière, la figure de droite illustre ainsi pour une contrainte de vibration fixe  $\sigma_v = 3$  Pa (correspondant à  $f = 20$  Hz et  $A = 500$   $\mu\text{m}$ ) pour les diverses fractions massiques  $\phi^{\text{wt}}$  étudiées (comme dans la Figure (4.10)). Pour une valeur  $\alpha = 6$  injectée dans l'Equation (4.6), les courbes obtenues pour prédire le comportement en fonction de la contrainte de vibration  $\sigma_v$  et de la fraction massique  $\phi^{\text{wt}}$  sont assez similaires à celles observées dans les Figures (4.7) et (4.10). Cela permet de confirmer la pertinence de la description proposée de l'impact des vibrations sur les particules.

#### 4.4.1 Diagramme de blocage

De manière analogue à Singh et al. [119], en fonction de divers paramètres ( $\sigma_v$ ,  $\sigma$ ,  $\phi$ ), il est possible de qualifier l'état d'une suspension pour différentes fractions volumiques. Toutes les observations faites précédemment sont résumées dans un diagramme schématique simplifié illustré sur la Figure (4.14). L'axe des ordonnées représente  $\sigma/\sigma_v$  et l'axe des abscisses la fraction volumique  $\phi$  en particules. Les lignes en pointillés représentent la fraction massique de blocage pour une suspension frictionnelle  $\phi_m^{\text{wt}} = \phi_j^{(\mu_p = \mu_0)}$  et la fraction massique de blocage d'une suspension sans friction  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} = \phi_j^{(\mu_p = 0)}$ . Pour des suspensions en dessous de  $\phi_m^{\text{wt}}$ , quelque soit le rapport  $\sigma/\sigma_v$ , la suspension s'écoule. On est dans le régime *unjammed*. Entre  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , lorsque les vibrations sont dominantes par rapport au cisaillement (donc  $\sigma/\sigma_v < 1$ ), la suspension se trouve dans le régime *unjammed* où la force répulsive est suffisamment grande pour maintenir les particules à distance. Par contre, pour un rapport  $\sigma/\sigma_v > 1$  où l'écoulement est prédominant, on est dans le régime *shear-jammed*. La force répulsive devient faible devant la contrainte de cisaillement entraînant le blocage du système. Enfin, au-delà de  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , le système se bloque, peu importe la force.

Comme les vibrations sont soupçonnées de jouer un rôle sur le réseau de contacts des particules, des expériences d'inversion de cisaillement ont été effectuées [83, 108] pour démêler les contributions des contacts interparticulaires et des interactions hydrodynamiques à la viscosité de cisaillement des suspensions non vibrées.

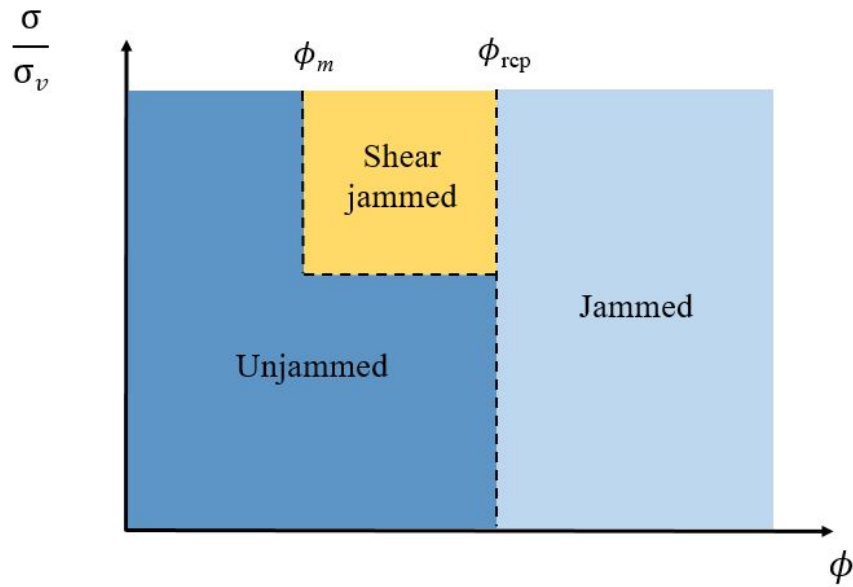


FIGURE 4.14 – Diagramme de la suspension dans l’espace des contraintes sans dimension  $\sigma/\sigma_v$  et de la fraction volumique  $\phi$ .

## 4.5 Inversion de cisaillement : une nouvelle preuve de contacts

### 4.5.1 Historique sur les inversions de cisaillement

Les premières expériences de renversement de cisaillement ont été rapportées par Gadala-Maria et Acrivos [52] sur des suspensions concentrées de sphères de polystyrène dans de l’huile silicone. Ils ont remarqué, lors d’un changement brusque du sens de l’écoulement, une chute de la viscosité jusqu’à un minimum qu’on note  $\eta_{\min}$  avant de croître à nouveau vers une valeur plateau. Ils observent, en traçant le couple en fonction du temps que cette réponse transitoire dépend du taux de cisaillement appliqué. Toutefois, ils s’aperçoivent, qu’en traçant le couple normalisé en fonction de la déformation  $\dot{\gamma}t$ , qu’une courbe maîtresse est obtenue dépendant seulement de la fraction volumique (Figure (4.15)). L’interprétation de cette observation serait un changement de micro-structure induit par l’écoulement.

La viscosité de la suspension peut être décomposée en deux contributions : une contribution hydrodynamique  $\eta_H$  venant du fluide et une contribution des contacts

$$\eta = \eta_H + \eta_C \quad (4.10)$$

Par simulation numérique, Peters et al. [108] ont étudié la contribution de l’hydrodynamique et des contacts sur la viscosité dans le régime transitoire pour des déformations  $\gamma$  de l’ordre de 10.

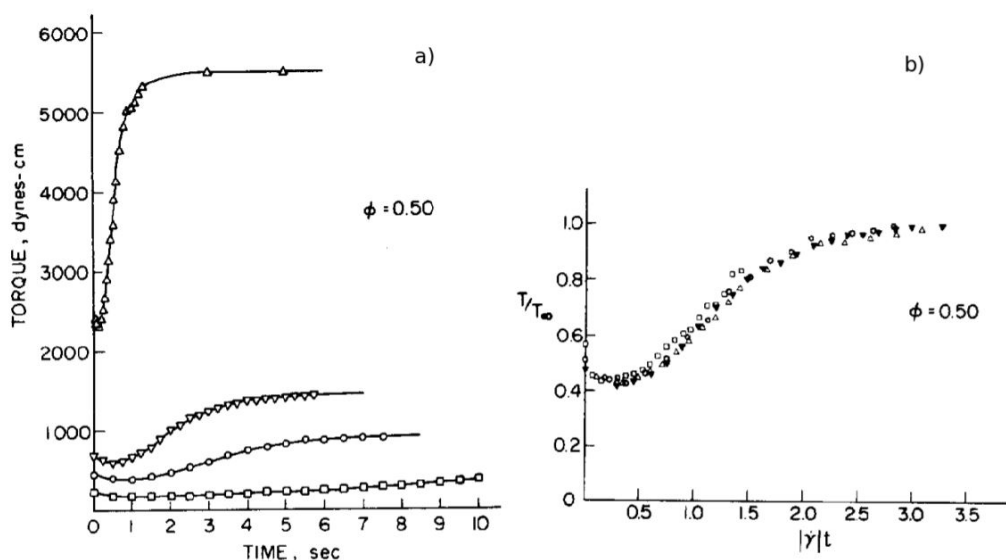


FIGURE 4.15 – Résultat d’une inversion de cisaillement. a) Couple en fonction du temps, b) Couple normalisé en fonction de la déformation pour différents  $\dot{\gamma}$  : ( $\square$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.15 \text{ s}^{-1}$ , ( $\circ$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.38 \text{ s}^{-1}$ , ( $\nabla$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.60 \text{ s}^{-1}$ , ( $\triangle$ )  $\dot{\gamma} = 2.4 \text{ s}^{-1}$ . D’après Gadala-Maria et Acrivos [52].

La Figure (4.16) représente l’évolution de chaque contribution ( $\eta_C$  et  $\eta_H$ ) au cours de l’expérience. Avant l’inversion, la majorité de la viscosité provient des contacts. A  $\dot{\gamma}t = 0$ , la viscosité de la suspension  $\eta_S$  chute tout comme celle des contacts associée  $\eta_C$ . A l’inverse, la viscosité hydrodynamique  $\eta_H$  est maximale, ce qui n’est pas surprenant au vu des forces de lubrification qui augmentent brutalement pour que les particules se séparent rapidement. L’amplitude du saut de viscosité qui conduit au minimum est caractéristique de la viscosité de contact. Par la suite, ces forces de lubrification diminuent au fur et à mesure que le cisaillement se poursuit. La viscosité de contact et donc la viscosité de la suspension augmentent de nouveau jusqu’à atteindre leur valeur à l’état stationnaire.

Pour aller plus loin, Peters et al. [108] évaluent la différence  $\eta_S - \eta_{\min}$  en fonction de la viscosité de contact. Il trouve un coefficient de 0.85, qui signifie que cette différence correspond à 85 % de la viscosité de contact pour des suspensions frictionnelles. Il reste alors 15 % de contribution des contacts dans  $\eta_{\min}$ . Au vu des observations faites ci-dessus, il est naturel de suggérer que le minimum de viscosité s’apparente essentiellement à la viscosité hydrodynamique (en prenant en compte les 15 % de contacts) et que la différence  $\eta_S - \eta_{\min}$  représente la viscosité de contact.



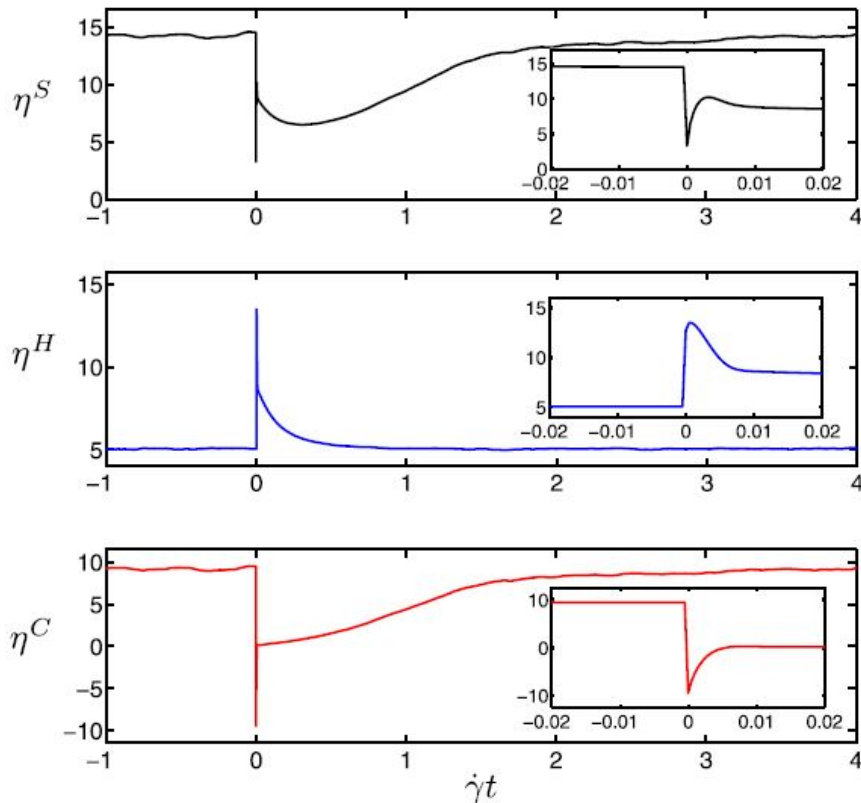


FIGURE 4.16 – Évolution de la viscosité relative  $\eta_S$  d'une suspension en fonction de la déformation  $\dot{\gamma}t$  (haut), avec contribution hydrodynamique  $\eta_H$  (milieu) et contribution des contacts  $\eta_C$  (bas). Les inserts représentent les temps courts avant et après l'inversion. D'après Peters et al. [108].

#### 4.5.2 Principe d'une inversion de cisaillement

Le principe d'une inversion de cisaillement est le suivant :

- la suspension est d'abord cisailée à une contrainte de cisaillement ou à un taux de cisaillement donnés jusqu'à ce que l'état d'équilibre soit atteint. Les particules s'alignent selon un axe de compression formant une microstructure particulière.
- la direction du cisaillement est ensuite inversée (en gardant la même valeur du taux de cisaillement ou de la contrainte appliquée), et l'évolution de la viscosité avec la déformation est enregistrée. L'idée sous-jacente est que les contacts interparticulaires passent de la compression à la traction et sont soudainement rompus lors de l'inversion du cisaillement. Cela se traduit généralement par une diminution brutale de la viscosité, dont le minimum peut être associé principalement à des interactions hydrodynamiques [108]. A cet instant, la microstructure est détruite.
- au fur et à mesure du temps, la viscosité remonte ensuite progressivement et la microstructure se reforme à une certaine déformation caractéristique qui dépend de la fraction

volumique en particules.

La Figure (4.17) représente schématiquement la viscosité avant (courbe bleue) et après (courbe rouge) une expérience d'inversion de cisaillement [58]. Les schémas représentent la microstructure à divers moments de l'inversion.

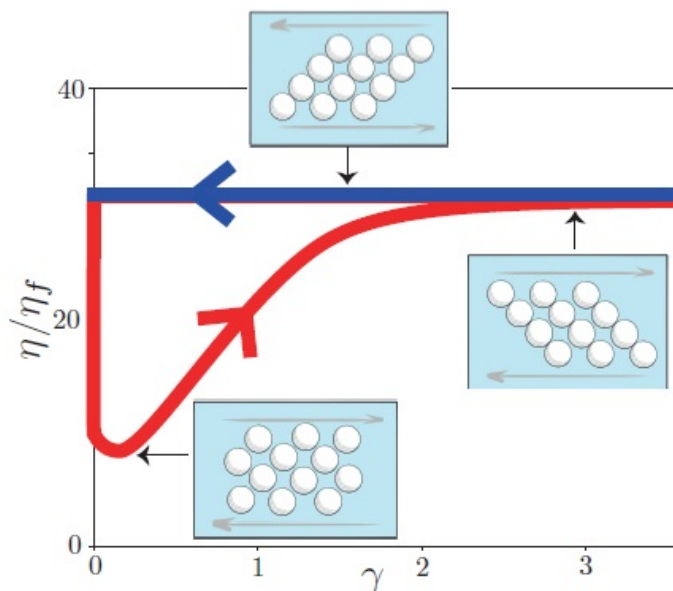


FIGURE 4.17 – Evolution de la viscosité relative et de la microstructure en fonction du temps écoulé depuis la déformation. D’après Guazzelli et Pouliquen [58].

### 4.5.3 Protocole expérimental

Afin d’avoir la meilleure résolution possible en temps, contrainte et déformation, comme requis pour de telles expériences, nous avons utilisé ici un rhéomètre Kinexus Ultra+ (Netzsch). Une géométrie similaire à celle du TA instrument (vane à six pales de 25 mm de diamètre et une cuve de 50 mm de diamètre) est utilisée comme dans les expériences de vibration pour assurer une comparaison quantitative précise des résultats obtenus dans les deux types d’expériences. Le rhéomètre étant à contrainte imposée, nous travaillons ici en mode contrainte contrôlée afin de suivre avec précision le régime transitoire de la viscosité avec la déformation.

Le protocole expérimental utilisé est issu des travaux réalisés par Saint-Michel et al. [112]. La suspension est cisailée dans un premier temps à un taux de cisaillement imposé constant  $\dot{\gamma}$  jusqu’à ce que la déformation  $\gamma$  dépasse 10 unités et qu’un état stationnaire de contrainte  $\sigma$  soit atteint. Cette étape est nécessaire pour capturer le comportement plastique initial. Le logiciel récupère la contrainte associée au taux de cisaillement appliqué. Ensuite, on passe en mode contrainte imposée pour appliquer la contrainte récupérée en régime permanent  $\sigma$  pendant 5 s. Une période de repos de 10 s à contrainte nulle est réalisée avant d’appliquer une contrainte  $-\sigma$

jusqu'à ce qu'un nouvel état stationnaire soit atteint. L'évolution de la viscosité de cisaillement avant et après l'inversion du cisaillement est suivie en fonction du temps  $t$  et/ou de la déformation  $\gamma$ . Les mesures sont répétées pour quatre valeurs de  $\dot{\gamma}$  différentes (et donc de  $\sigma$ ) :  $\dot{\gamma} = 0.1 \text{ s}^{-1}$ ,  $\dot{\gamma} = 0.3 \text{ s}^{-1}$ ,  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ ,  $\dot{\gamma} = 3 \text{ s}^{-1}$ .

La suspension employée est une suspension de silice à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$ . Le choix de cette concentration est dicté par l'impossibilité d'effectuer de telles expériences sur les suspensions à  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  car le matériau est fracturé lorsqu'il est cisailé.

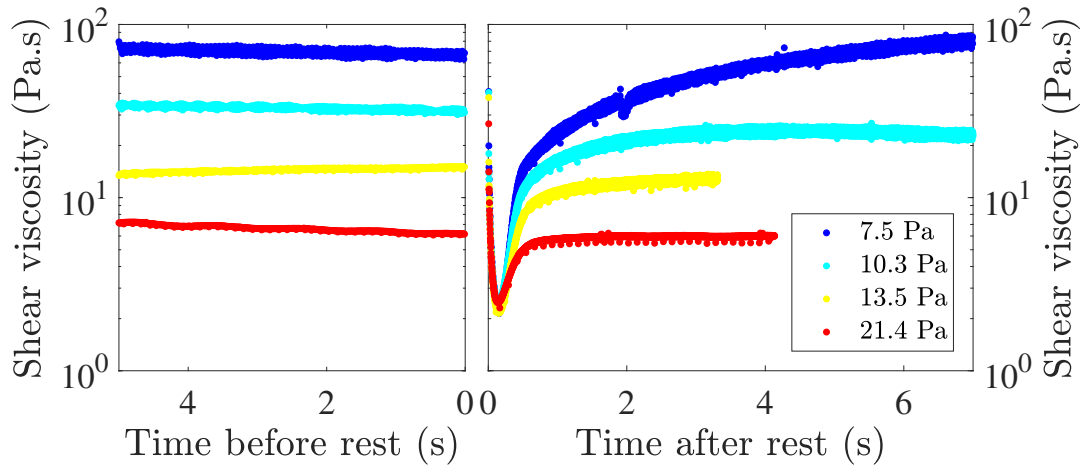


FIGURE 4.18 – Réponse aux expériences d'inversion de cisaillement d'une suspension à  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$ . Différentes contraintes sont appliquées (voir légende). À gauche : viscosité à l'état d'équilibre en fonction du temps avant repos et inversion. À droite : Évolution de la viscosité en fonction du temps écoulé depuis le début de l'inversion.

Dans la Figure (4.18), la viscosité en fonction du temps avant et après l'inversion du cisaillement est représentée pour une suspension  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$  à plusieurs contraintes. Comme observé classiquement dans les suspensions concentrées [83, 108, 98], il y a une chute de la viscosité de cisaillement lors de l'inversion du cisaillement pour chaque contrainte appliquée. Selon la contrainte étudiée, la viscosité chute d'un facteur 2 pour le plus grand  $\sigma$  à 50 pour la valeur la plus faible. La viscosité croît progressivement jusqu'à atteindre un état stationnaire pour une déformation de 400 % soit 4 unités (voir Figure (4.19)).

#### 4.5.4 Régime transitoire en fonction de la fraction massique $\phi^{\text{wt}}$

On s'intéresse maintenant au changement de fraction massique en appliquant le même protocole que précédemment. Pour simplifier, un seul taux de cisaillement sera présenté pour toutes les fractions massiques étudiées. La contrainte imposée est choisie pour que le taux de cisaillement du rotor soit toujours d'environ  $0.3 \text{ s}^{-1}$  au plateau quelle que soit la fraction volumique.

L'évolution de la viscosité  $\eta$  pendant l'inversion de cisaillement est tracée en fonction du temps pour plusieurs fractions massiques (voir légende) sur la Figure (4.21). L'évolution est

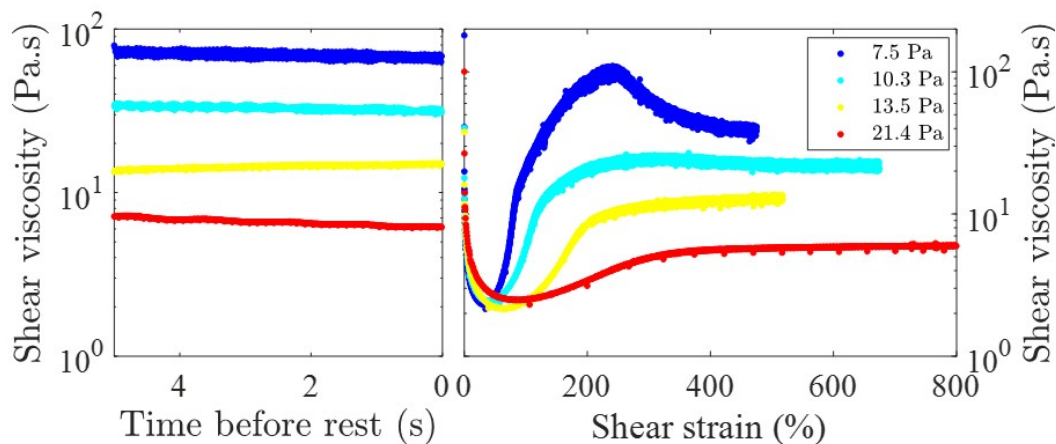


FIGURE 4.19 – Réponse aux expériences d’inversion de cisaillement d’une suspension à 26 wt%. Différentes contraintes sont appliquées (voir légende). A gauche : viscosité à l’état d’équilibre en fonction du temps avant repos et inversion. A droite : Évolution de la viscosité en fonction de la déformation.

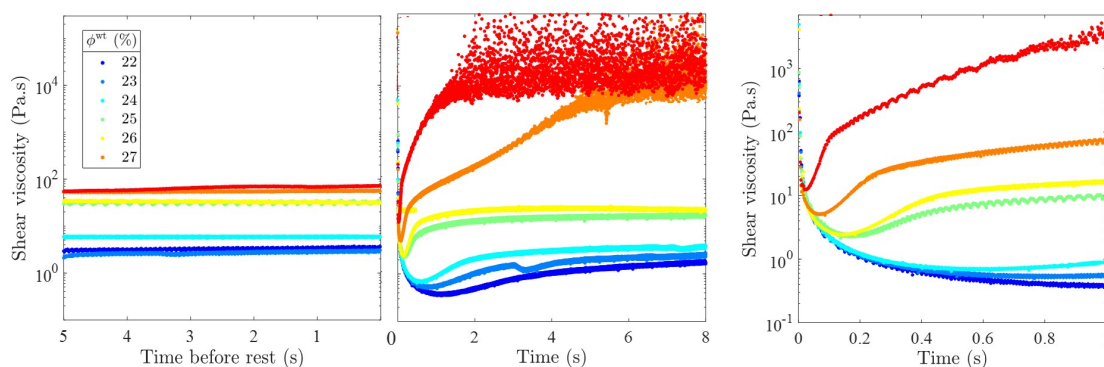


FIGURE 4.20 – Régime transitoire de la viscosité pour différents  $\phi^{\text{wt}}$  (voir légende) pour un taux de cisaillement fixe :  $\dot{\gamma} = 0.3 \text{ s}^{-1}$ . Gauche : pour une échelle de temps long. Droite : pour une échelle de temps court.

représentée sur une échelle de temps relativement courte (1 seconde) car des oscillations sont présentes pour les fractions massiques les plus grandes au-delà de deux secondes comme le montre la figure de gauche. Ces oscillations sont typiques pour des matériaux granulaires. Le même comportement est observé pour toutes les fractions massiques étudiées. Une diminution de la viscosité lors de l’inversion suivie d’une augmentation progressive avec le temps jusqu’à atteindre le même régime stationnaire qu’en sens inverse pour une déformation propre à chaque concentration. On remarque que la valeur du minimum est d’autant plus grande que la fraction

massique augmente alors que la déformation  $\dot{\gamma}t$  pour atteindre l'état stationnaire diminue. 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.

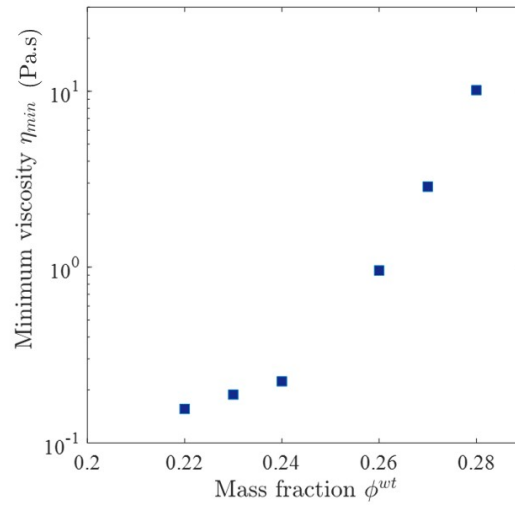


FIGURE 4.21 – Minimum de viscosité  $\eta_{min}$  pour différentes fractions massiques en particules.

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 contacts entre particules lors de l'inversion.

Étonnamment, la valeur de  $\eta_{min}$  est quasi indépendante de la contrainte de cisaillement appliquée pour chaque fraction de particule. Ceci est cohérent avec les résultats de Peters et al. [108] qui a montré que la valeur  $\eta_{min}$  est proche de la contribution hydrodynamique pure à la viscosité de la suspension. Bien que la microstructure des suspensions frictionnelles et sans friction soit supposée présenter quelques différences,  $\eta_{min}$  peut ainsi être considérée comme une bonne estimation de la viscosité de la suspension pour les particules sans friction, comme l'a montré Lin et al. [83].

En revanche, cette valeur  $\eta_{min}$  augmente avec  $\phi^{wt}$  comme attendu pour une suspension sans frottement, avec une loi de Maron-Pierce qui diverge à la fraction massique de blocage pour une suspension sans frottement, à savoir le *Random Close Packing*  $\phi^{wt} = 0.29$ .

#### 4.5.5 Comparaison des viscosités $\eta_{min}$ et $\eta_{vib}$

Il s'agit maintenant de comparer les valeurs de viscosité obtenues par inversion de cisaillement et celles du plateau visqueux des suspensions vibrées. Pour cela, la viscosité minimale  $\eta_{min}$  atteinte pendant l'inversion de cisaillement (étoiles violettes) ainsi que la viscosité stationnaire

(étoiles oranges) avant inversion sont tracées en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  sur la Figure (4.22). Sur chaque figure, les courbes d'écoulement obtenues à partir d'une rampe de taux de cisaillement du même matériau avec et sans vibrations sont représentées. Les trois figures correspondent à trois fractions massiques différentes dans l'ordre :  $\phi^{\text{wt}} = 0.27$ ,  $\phi^{\text{wt}} = 0.26$ ,  $\phi^{\text{wt}} = 0.24$ .

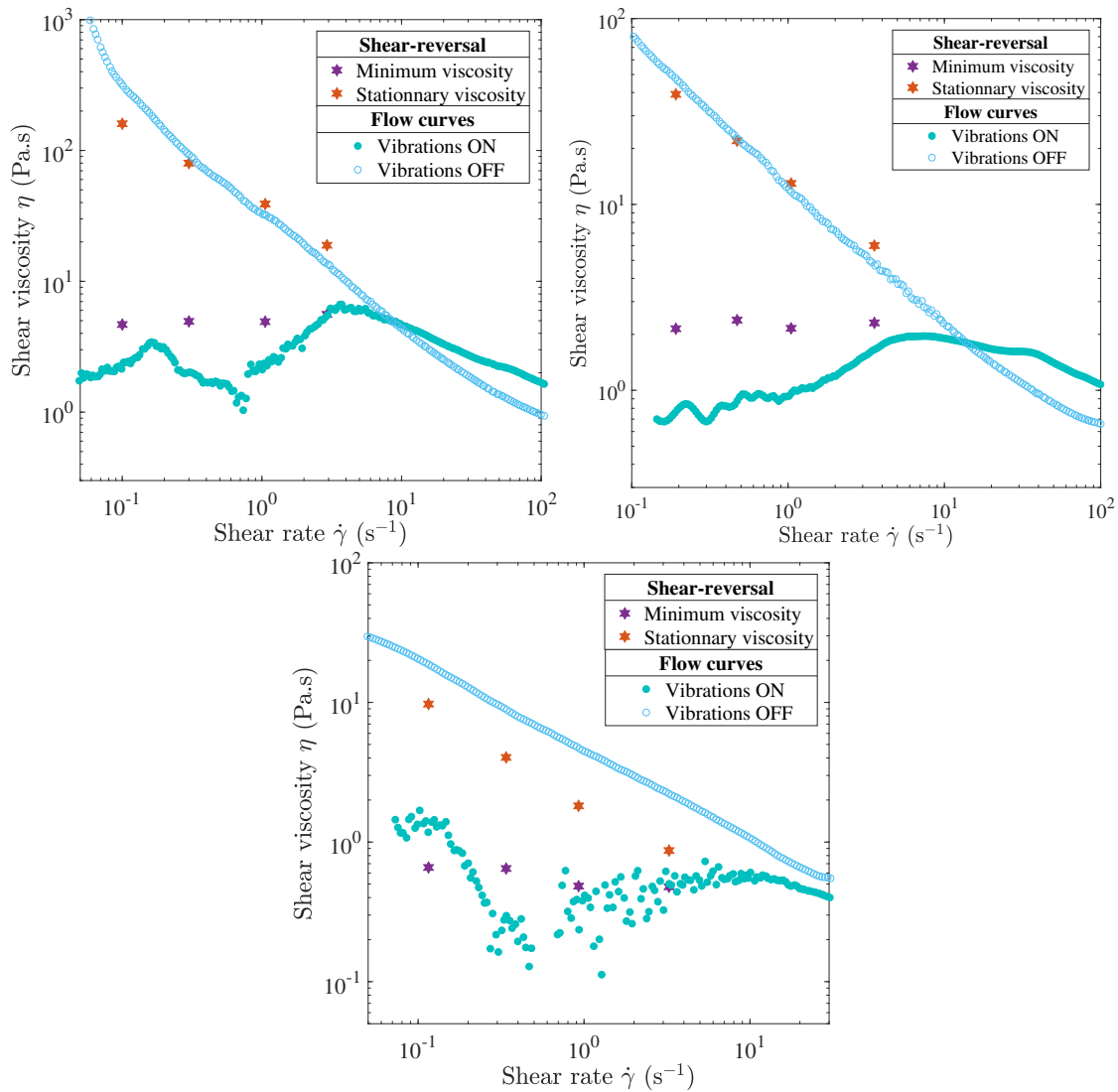


FIGURE 4.22 – Viscosité de cisaillement par rapport au taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  pour plusieurs suspensions. Étoiles : viscosité à l'état stationnaire et minimale obtenue à partir d'expériences d'inversion de cisaillement. Cercles : courbes d'écoulement obtenues à partir d'une rampe de taux de cisaillement avec (cercles pleins) ou sans (cercles vides) vibrations ; ici  $\sigma_v = 3$  Pa.

Ainsi, on peut remarquer la proximité entre les valeurs de  $\eta_{\min}$  et celles de la viscosité de l'échantillon vibré pour toutes les fractions de particules étudiées. Les valeurs présentent

le même ordre de grandeur et sont relativement proches. La faible différence entre les deux valeurs peut s'expliquer par l'observation faite par Peters et al. [108]. En effet, il prédit que la viscosité de contact  $\eta_C$  représente seulement 85 % des contacts. Il reste donc un certain pourcentage de contacts dans la viscosité minimale  $\eta_{\min}$  pouvant alors expliquer une valeur légèrement supérieure.

Dans tous les cas, ce résultat est crucial et permet de confirmer l'hypothèse faite précédemment sur le rôle des vibrations. L'application de vibrations sur une suspension initialement frictionnelle, permet de séparer les particules et donc de rompre les contacts générant ainsi une suspension de particules sans friction.

Pour résumer cette partie, lorsque des vibrations sont appliquées sur des matériaux au-delà de  $\phi_m^{\text{wt}}$ , la contrainte seuil disparaît pour donner lieu à un comportement pseudo-newtonien de type liquide à faible taux de cisaillement. Au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente, une transition de *shear jamming* survient. Le comportement à seuil du matériau est alors récupéré. Cette transition observée peut être ajustée en modifiant l'énergie des vibrations  $\sigma_v$  injectées dans le système. Dans le cadre du modèle Wyart et Cates [125], les vibrations peuvent enfin être vues comme une densité d'énergie introduisant une force répulsive de type thermique produisant une contrainte critique  $\sigma_c$  proportionnelle à la contrainte vibratoire  $\sigma_v$  précédemment introduite par Hanotin et al. [64]. Les suspensions vibrées se comportent alors comme une suspension sans frottement à faible taux de cisaillement. Cette hypothèse est confirmée par des expériences d'inversion de cisaillement où la viscosité minimale  $\eta_{\min}$  représentant une suspension sans friction est proche de la valeur de la suspension vibrée à faible taux de cisaillement.

# Conclusion et perspectives

Au cours de cette thèse, une étude sur les suspensions granulaires denses en particules de silice, de leur formulation jusqu'à leur caractérisation rhéologique, a été menée. La prédiction des comportements des suspensions concentrées constitue un défi majeur pour de nombreux industriels. En effet, ces suspensions présentent des comportements bien différents selon la nature et les propriétés du fluide et celles des particules. Les propriétés intrinsèques des particules (taille, distribution de taille, forme, masse volumique et propriétés de surface, concentration) et les propriétés du liquide (viscosité et masse volumique) régissent le comportement de ces suspensions. La plupart du temps, la viscosité de la suspension n'est pas proportionnelle à la contrainte appliquée. Cela donne place à de nombreux comportements non-newtoniens : rhéofluidifiant, rhéoépaississant, thixotropie, fluide à seuil... Lorsque la concentration est suffisamment grande, la viscosité finit par diverger à une fraction volumique de blocage notée  $\phi_j$ .

Dans notre cas, la seule façon de formuler des suspensions de silice homogènes au-delà de  $\phi_j$  est d'utiliser un vortex générant des fortes vibrations (dans plusieurs directions de l'espace). Initialement sous forme d'un mélange de poudre et de granules, la suspension devient après quelques minutes, lisse et homogène. Ce phénomène connu sous le nom de granulation est grandement utilisé dans de nombreux procédés industriels. Cette étape nous a permis d'identifier grossièrement la fraction volumique de blocage  $\phi_j$ . Des mesures expérimentales complémentaires ont permis de définir cette fraction volumique comme étant la fraction volumique de blocage de la suspension frictionnelle  $\phi_j^{\mu_p} = 0.24$  également notée  $\phi_m$  (ou  $\phi_m^{\text{wt}}$ ). De la même manière, la valeur de la fraction volumique de blocage de la suspension sans friction  $\phi_j^{\mu_p=0}$  ou  $\phi_{\text{rcp}}$  est estimée à 0.3.

Concernant le comportement rhéologique de ces suspensions, deux études différentes ont été menées : en dessous et au-dessus de  $\phi_m$ . Pour des faibles concentrations en silice, le comportement des suspensions est semblable à un comportement pseudo-newtonien où la viscosité est peu dépendante du taux de cisaillement appliqué. Les valeurs de viscosité sont proches de celles du fluide suspendant. Autour de  $\phi^{\text{wt}} = 0.20$ , on note une forte augmentation de la viscosité qui s'accompagne d'une transition vers un comportement rhéofluidifiant. Ce comportement est couramment observé pour des fractions volumiques élevées dans les suspensions concentrées et peut être lié aux variations du coefficient de frottement  $\mu_p$ .



A des fractions volumiques supérieures à  $\phi_m$ , les suspensions sont dans un régime frictionnel où le matériau est dans un état bloqué dans l'incapacité de s'écouler avec une contrainte seuil  $\sigma_y$ . La dépendance linéaire du couple  $T$  avec la hauteur immergée de la géométrie a permis de confirmer l'origine frictionnelle de cette contrainte seuil où les particules sont confinées par la tension de surface. Une valeur qualitative du coefficient de friction de l'ordre de  $\mu_p = 0.12$  a pu être extraite. Cette valeur estimée est cohérente avec les valeurs retrouvées dans la littérature sur les granulaires secs.

Pour des fractions volumiques supérieures à  $\phi_j$ , nous avons étudié le comportement des suspensions avec et sans vibrations. Tout d'abord, en l'absence de vibrations, les suspensions ont un comportement de type solide avec une contrainte seuil  $\sigma_y$  qui augmente avec la fraction volumique. Ce comportement est bien visible lorsque les courbes d'écoulement sont réalisées. On observe un plateau plastique avec une contrainte constante et une viscosité apparente qui décroît à la puissance -1 avec le taux de cisaillement. Ce comportement est typique dans le domaine des granulaires.

Un dispositif vibrant a permis de générer des vibrations verticales au niveau de la cuve contenant l'échantillon. Lorsque des vibrations sont appliquées, la contrainte seuil  $\sigma_y$  disparaît pour donner lieu à un comportement pseudo-newtonien de type liquide à faible taux de cisaillement. Au fur et à mesure que le taux de cisaillement augmente, on observe un *shear-jamming* : le comportement solide plastique est alors retrouvé. Cette transition peut être ajustée en modifiant la contrainte de vibration  $\sigma_v$  injectée dans le système. Plus la contrainte de vibration injectée est grande, plus la transition sera tardive. Dans le cadre du modèle de Wyart et Cates [125], les vibrations peuvent être vues comme introduisant une force répulsive de type thermique, produisant une contrainte critique  $\sigma_c$  proportionnelle à la contrainte répulsive de vibration  $\sigma_v$  précédemment introduite par Hanotin et al. [64]. L'échantillon soumis aux vibrations semble se comporter comme une suspension sans friction à faible taux de cisaillement.

Pour aller plus loin, des expériences d'inversion de cisaillement ont permis de confirmer cette hypothèse. En effet, les valeurs de viscosité  $\eta_{min}$  obtenues juste après l'inversion sont très proches des valeurs de viscosité observées sur le plateau visqueux à faible taux de cisaillement dans les suspensions vibrées. La transition de *shear-jamming* observée peut être interprétée comme une transition d'un régime sans friction à un régime frictionnel.

Les vibrations semblent être une voie prometteuse pour débloquer de nombreuses suspensions denses qui sont manipulées dans l'industrie. Cette option est une alternative à la superposition d'écoulements macroscopiques [84, 97]. En mettant en évidence l'impact quantitatif de la contrainte de vibration  $\sigma_v$  sur la transition de blocage, les résultats présentés sont des éléments clés pour aider à optimiser le procédé et à maximiser la gamme de fraction volumique étudiée. Sur le plan fondamental, les vibrations semblent offrir une voie prometteuse pour étudier expérimentalement les suspensions sans frottement. Une analogie intéressante entre la contrainte

---

de vibration dans les suspensions non browniennes vibrées et la contrainte brownienne dans les suspensions browniennes mériterait une investigation approfondie, notamment au niveau microscopique.

Par la suite, il serait intéressant de travailler sur des systèmes modèles avec des particules sphériques et monodisperses pour mieux se confronter à la littérature, notamment en ce qui concerne les valeurs de  $\phi_m$  et  $\phi_{rcp}$  et confirmer la similitude entre une suspension sans friction et une suspension vibrée. De nombreux autres paramètres peuvent également être modifiés, tels que le choix des particules, leur taille, la nature du solvant et sa viscosité et la température. Dans ce manuscrit, nous étions relativement limités sur tous ces paramètres.

Au cours de cette thèse, différentes collaborations ont débuté mais n'ont pas pu aboutir pour diverses raisons.

- Une première collaboration avec l'équipe de Sébastien Manneville à l'ENS de Lyon sur l'application d'ultrasons sur les suspensions de silice au cours d'une mesure rhéologique, les résultats obtenus étant présentés dans la thèse de Noémie Dagès [31].
- Une deuxième collaboration avec la plateforme PLACAMAT à Talence a été menée. Le dispositif expérimental est un rhéomètre introduit dans un tomographe à rayons X. L'intérêt est de suivre l'évolution du profil de concentration dans l'entrefer pendant une mesure rhéologique [111]. L'introduction du dispositif vibrant à l'intérieur même du tomographe serait également un bon moyen de vérifier l'homogénéité de la fraction volumique lorsque les vibrations sont appliquées.
- La dernière collaboration a été conduite avec un doctorant du LOF, Nicolas Bélicard sur le couplage des ultrasons avec le montage expérimental du Chapitre 4. Le but était d'étudier la propagation d'ondes ultrasonores dans une suspension concentrée vibrée et non vibrée. En se propageant à travers le réseau de chaîne de forces, les ondes constituent un bon moyen d'explorer les contacts entre grains.



## Annexe A

### Article Journal of Rheology

*Une partie des travaux présentés au cours de ce manuscrit ont fait l'objet d'une publication sur le journal "Journal of Rheology" en Janvier 2022. Cet article est inséré en tant qu'annexe dans le manuscrit.*



# Using good vibrations: Melting and controlled shear jamming of dense granular suspensions

C. Garat,<sup>1,a)</sup> S. Kiesgen de Richter,<sup>2,3</sup> P. Lidon,<sup>1</sup> A. Colin,<sup>4</sup> and G. Ovarlez<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Univ. Bordeaux, CNRS, Solvay, LOF, UMR 5258, F-33608 Pessac, France

<sup>2</sup>Université de Lorraine, CNRS, LEMTA, F-54000 Nancy, France

<sup>3</sup>Institut Universitaire de France (IUF), Paris, France

<sup>4</sup>ESPCI Paris, PSL Research University, MIE-CBI, CNRS UMR 8231, 10, Rue Vauquelin, F-75231 Paris Cedex 05, France

(Received 27 September 2021; final revision received 6 December 2021; published 11 January 2022)

## Abstract

Flows of suspensions can be blocked when the suspended particles are densely packed. This makes their formulation and their transport challenging in the industry. In this paper, we study the impact of vibrations on the behavior of dense granular suspensions prepared at a volume fraction above their jamming volume fraction but below the particle assembly random close packing. Vibrations are shown to have a strong effect on their rheological properties and to tune their transition from solidlike to liquidlike behavior. We study suspensions of rough silica particles in a Newtonian fluid. In the absence of vibrations, they have a solidlike behavior: they flow only above a yield stress. Particles are confined by the liquid interface, and the yield stress is of the frictional origin. When vibrations are applied, the yield stress vanishes to give rise to a liquidlike pseudo-Newtonian behavior at a low shear rate. Using shear-reversal experiments, we show that these liquidlike vibrated suspensions of frictional particles behave like nonvibrated suspensions of frictionless particles. As the shear rate is increased, we observe a shear thickening of the vibrated suspensions, eventually leading to shear-jamming. The yield stress behavior is recovered, and vibrations have no more impact. We show that this shear thickening can be tuned by changing the vibration energy injected into the system. We, finally, propose a physical picture based on the competition between contact opening by vibration and contact formation by shear to account for these behaviors. In the framework of the Wyart and Cates [Phys. Rev. Lett. **112**, 098302 (2014)] model, vibrations can be seen as introducing a thermal-like repulsive force, yielding a critical stress proportional to the vibration stress introduced by Hanotin *et al.* [J. Rheol. **59**, 253–273 (2015)]. © 2022 The Society of Rheology. <https://doi.org/10.1122/8.0000376>

## I. INTRODUCTION

### A. Dense suspensions and jamming

Granular suspensions are suspensions of non-Brownian particles immersed in a Newtonian fluid at a high volume fraction, close to their jamming transition. The main challenge with these suspensions in the industry, e.g., when dealing with civil engineering materials such as cement pastes [1] or foodstuff such as chocolate pastes [2], is to be able to handle suspensions that are as concentrated as possible.

In these materials, the particle size is large enough ( $>10\mu\text{m}$ ) for thermal fluctuations to be neglected, and hydrodynamic interactions are in competition with contact forces. Despite their apparent simplicity, they exhibit diverse non-Newtonian behaviors, including yielding, shear thickening, normal stress differences, and shear jamming [3,4]. Mainly volume-imposed rheology is used to characterize their behavior, in which case the control parameter is the particle volume fraction  $\phi$ . In this framework, rheology is described by the shear stress  $\sigma$  and the normal stress differences, which both depend on  $\phi$  and on the shear rate  $\dot{\gamma}$ . The

basic manifestation of jamming in these systems is that their apparent viscosity  $\eta(\dot{\gamma}, \phi) = \sigma/\dot{\gamma}$  increases strongly with  $\phi$  and diverges close to the jamming point  $J$ , characterized by a volume fraction  $\phi_j$ . Attempts to formulate materials beyond  $\phi_j$  then leads to the formation of solid like granules, a process known as wet granulation in the industry [5].

An alternative view on  $\phi_j$  comes from pressure-imposed rheology [6,7], for which the control parameter is the particle normal stress  $p$  (often gravity-induced). In such a case, the material volume fraction  $\phi$  is free to adjust to the flow conditions and its flow resistance is characterized by its friction coefficient  $\mu = \sigma/p$ . For a given applied  $p$ ,  $\mu$  increases with the applied shear rate  $\dot{\gamma}$ , whereas  $\phi$  decreases with  $\dot{\gamma}$ . The densest possible flowing state, characterized by  $\phi_j$ , is thus reached here in the limit of quasistatic flows. This is reminiscent of the *critical state* of dry granular materials [8], characterized by a volume fraction  $\phi_c$  and an internal friction coefficient  $\mu_c$  in the quasistatic limit. For dry granular media and granular suspensions made of the same particles, the critical/jamming volume fractions  $\phi_c$  and  $\phi_j$  are equal [7]; they also have the same quasistatic friction coefficient. This suggests that interparticle friction plays the main role in both materials.

A dense granular material ( $\phi > \phi_c$ ), once sheared under a constant normal stress, is known dilate to reach the critical value  $\phi_c$  at a steady state [9]. By contrast, a loose system

<sup>a)</sup>Author to whom correspondence should be addressed; electronic mail: [chloe.garat-ext@solvay.com](mailto:chloe.garat-ext@solvay.com)

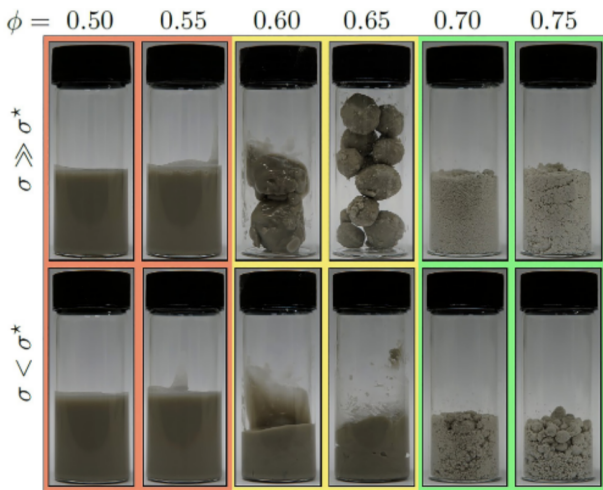
( $\phi < \phi_c$ ) contracts to reach  $\phi_c$  under shear. Coming back to the volume-imposed rheology of dense suspensions, for  $\phi > \phi_j$ , the only way for a suspension to flow would then be to dilate; however, as the volume is imposed, the system is confined and jamming occurs. In practice, this confinement can be due to the liquid interface surface tension, as shown for granulation [5].

For industrial applications, the value of  $\phi_j$  should finally be as high as possible: its possible control through changes in the mix design or in the process requires an in-depth understanding of the physics involved. As reviewed below, interparticle contacts play the major role in the suspension macroscopic properties close to  $J$ .

## B. Jamming and interparticle friction

The hydrodynamic and contact contributions to the rheology of suspensions have been studied by Gallier *et al.* [10] and Chèremont *et al.* [11]. At low concentration, hydrodynamic interactions are dominant. As the concentration increases, the contribution of contact forces is observed to increase and to overcome that of hydrodynamic forces. Close to the jamming transition, contact interactions provide the dominant contribution to the suspension stresses and govern their behavior [3], in particular, the value of  $\phi_j$ .

In general, for monodisperse spheres, the jamming fraction  $\phi_j$  is strongly dependent on the shape, polydispersity, and sliding friction coefficient  $\mu_p$  of particles [4]. For monodisperse spheres,  $\phi_j(\mu_p)$  is a monotonic decreasing function of  $\mu_p$  [12]. The value of  $\phi_j$  can then range from the random close packing (RCP)  $\phi_j^{\mu_p=0} = \phi_{\text{rcp}} = 0.64$  for frictionless spheres to the random loose packing (RLP)  $\phi_j^{\mu_p \rightarrow \infty} = \phi_{\text{rlp}} = 0.55$  for highly frictional spheres. It is consistent with simulations of dry frictionless spheres flows showing that the



**FIG. 1.** Figure 1 from Hodgson *et al.* [5] showing the result of (upper line) strongly mixing suspensions of repulsive glass spheres in a mixture of glycerol and water at different volume fractions  $\phi$  and (bottom line) subsequently vibrating the suspensions with a low stress vortex mixer. The first two columns correspond to  $\phi < \phi_m$ . The next two columns correspond to  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ . The last two columns correspond to  $\phi > \phi_{\text{rcp}}$ . The studied suspension is characterized by  $\phi_m = 0.57$  and  $\phi_{\text{rcp}} = 0.66$ . Figure reproduced with permission from the authors.

value of the critical volume fraction  $\phi_c$  is equal to  $\phi_{\text{rcp}}$  [13] and with experiments using bubbles as an analog of a suspension of frictionless particles, which found a value of  $\phi_j$  close to  $\phi_{\text{rcp}}$  [14].

The dependence of  $\phi_j$  with interparticle friction coefficient plays a major role in the shear thickening—that is, an increase of  $\eta$  with  $\dot{\gamma}$ —often reported close to  $J$  in these systems [15–19]. It has been proposed to relate this viscosity increase to an increase of the number of interparticle contacts upon shear in the suspension. Such behavior can be attributed, e.g., to the existence of a repulsive force between the particles [17,19]. In that case, there are no direct contacts at low shear stress, as the particles cannot approach each others, whereas the hydrodynamic normal forces become sufficiently important at high load to bring particles into frictional contact. In the framework discussed above, an increase of the fraction of frictional contacts with the applied stress  $\sigma$  implies a decrease of  $\phi_j$  with  $\sigma$ . For a suspension of fixed volume fraction  $\phi$  smaller than  $\phi_j$  at rest,  $\phi$  then gets closer to the stress-dependent jamming point  $\phi_j(\sigma)$  as  $\sigma$  is increased, and the material viscosity increases, i.e., the suspension shear thickens. In some cases, above a critical stress  $\sigma_c$ ,  $\phi_j(\sigma)$  can even be lower than  $\phi$ , meaning that the material cannot flow anymore; a jamming transition, called shear jamming, is then observed. We will come back in more detail to this point in Sec. IV.

## C. Tuning interparticle contacts

In industrial applications, for given particle shape and polydispersity, increasing  $\phi_j$  requires the ability to lower the value of the interparticle friction coefficient. This is usually done by using polymer additives in the suspension [1,20]. Once adsorbed on the particle surface, the polymer layer creates a repulsive barrier of low friction coefficient, ensuring a high value of  $\phi_j$  for the suspension at low stress. Shear thickening is then observed at a critical stress dependent on the magnitude of the created repulsive force barrier [19]. It is worth noting that for adhesive particles, the same polymer layer prevents the particles from agglomerating at rest [1].

For a given suspension mix design, another way to unjam the material consists in playing with the flow configuration. Indeed, as contacts exist only in compression, these contacts can be easily open by small perturbations [21]. A way to impose such perturbations consists in superimposing a small shear oscillation orthogonal to the primary shear flow, which has been shown to be able to shift the shear-thickening transition of a suspension to higher stresses [22–24]. In these last cases, macroscopic flow perturbations are considered.

Another possibility, for nonbuoyant suspensions, consists in vibrating the suspension. Vibrations can indeed fluidize a jammed suspension, turning a yield stress suspension into a viscous suspension [25,26]. This has been shown by applying well-controlled mechanical vibrations to fluid-saturated granular suspensions made of settled glass beads [25]. At rest, the particle pressure is set by gravity and these materials have a frictional yield stress. When vibrations are applied, their yield stress is suppressed and vibrations control their viscosity. They then have a shear-thinning behavior with a Newtonian plateau



at low shear stress, the viscosity of which decreases with the vibration intensity [25,27]. This phenomenon finds its origin in the differential acceleration between the particles and the fluid, implying that contacts are constantly renewed by vibrations. Gaudel *et al.* [28] have shown that the vibrations lead to a diffusive motion of the particles, which explains the observation of a Newtonian behavior. The average number of contacts, and thus the viscosity of the sheared suspension, is then assumed to result from a subtle interplay between contact formation by shear and contact breaking by vibration [26].

This impact of vibrations also appears when preparing suspensions and studying granulation. For example, Hodgson *et al.* [5] report the result of mixing a suspension of particles at different volume fractions with a high-shear mixer and of subsequently vibrating the suspension with a low stress vortex mixer (see Fig. 1). Defining  $\phi_m$  as the jamming volume fraction of the frictional suspension, that is, the volume fraction at which the viscosity diverges at high stress, they observed liquidlike suspensions in both cases when preparing the suspension for  $\phi < \phi_m$ . For  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ , the high-shear mixing produced solidlike granules, which melted to a liquidlike suspension upon vortex mixing, this is reminiscent of the vibration-induced fluidization observed by Hanotin *et al.* [25]. Finally, for  $\phi > \phi_{\text{rcp}}$ , solidlike granules from the high-shear mixing remained solid upon vortex mixing.

The suspension studied by Hodgson *et al.* [5] is made of repulsive particles. Once particles are pulled apart with the help of vibrations, they remain separated and the system remains frictionless and liquidlike as long as shear is kept low; its low shear viscosity then diverges at  $\phi_{\text{rcp}}$ . This is not the case when repulsive forces are negligible, as in the work of Hanotin *et al.* [25]. The initially jammed suspension remains fluid only as long as vibrations are kept on; turning vibrations off causes the suspension to return to a solidlike jammed state.

In the framework discussed in the present introduction, vibrations finally seem to introduce an effective thermal-like repulsive force between the particles [25,28], which would prevent the persistence of solid contacts as long as vibrations are efficient and would make the particles frictionlesslike. This picture has to be examined closely.

#### D. Outline

In this paper, we investigate the behavior of concentrated suspensions of nonrepulsive frictional particles prepared in their jammed state, i.e., at  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ , where  $\phi_m$  is the jamming volume fraction for the frictional particles in the absence of vibrations, with the aim of understanding how vibrations affect their behavior under flow. Our purpose is to see to what extent the material can be unjammed and to observe in which conditions a re-entrant (shear-)jamming transition can be observed. We also want to explore carefully the analogy between vibrated and frictionless particles. By tuning the amplitude and frequency of the vibrations, i.e., the effective repulsive force between the particles, we finally aim at providing data for testing models of nonlinear rheology of suspensions.

We use a nonbuoyant jammed suspension, where the material is simply confined by the liquid interface surface tension

at rest and keeps a constant volume fraction throughout the experiments under vibration. This is to be contrasted with the study of Hanotin *et al.* [25], who worked with a settled suspension, free to dilate. The volume fraction then resulted from a complex interplay between gravity, vibrations, and shear but was free to vary, likely preventing shear jamming to occur. Here, we aim at working in the framework of volume-fraction-imposed rheology. Moreover, we use rough irregular-shaped particles, which makes it possible to access a wide range of volume fractions in the jammed state [29].

In Sec. II, we present the suspension and setup used in this paper; we characterize the particle assembly random close packing and the jamming volume fraction of the frictional particles. In Sec. III, we show the differences between vibrated and nonvibrated suspensions and study the impact of a change of the vibration characteristics and of the particle fraction on the behavior; we also compare the viscosity of vibrated suspensions to that of frictionless suspensions. In Sec. IV, we finally discuss the origin of the observed behavior and propose a physical picture based on those of Hanotin *et al.* [26] for the impact of vibrations and of Wyart and Cates [16] for the transition from frictionless to frictional particles.

We show that, in the absence of vibrations, the prepared suspensions flow only above a yield stress, which is of the frictional origin. By contrast, when vibrations are applied, the yield stress vanishes to give rise to a liquidlike pseudo-Newtonian behavior at low shear rate. Using shear-reversal experiments, we show that these liquidlike vibrated suspensions of frictional particles behave like nonvibrated suspensions of frictionless particles. As the shear rate is increased, we observe a shear thickening of the vibrated suspensions, eventually leading to shear-jamming; this transition is tuned by the vibration energy injected into the system, suggesting that vibrations introduce a thermal-like repulsive force.

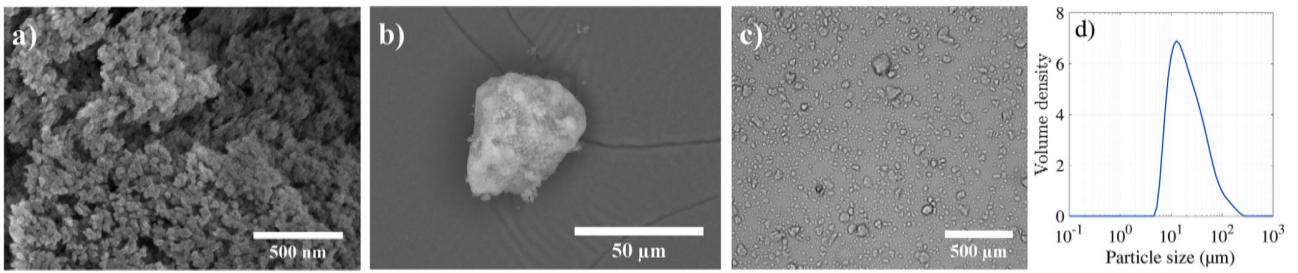
## II. MATERIALS AND METHODS

### A. Suspensions

We study the rheological behavior of a dense granular suspension composed of polydisperse irregular-shaped silica particles (Fig. 2) immersed in a lighter Newtonian fluid. The particles (from Solvay) are made of agglomerated elementary amorphous silica particles of 18 nm diameter. These particles are first organized into a dense fractal network of fractal dimension  $D_f = 2.6$  at a size of 50 nm; these primary aggregates are then agglomerated at a larger scale to form the particles [30]. Cryo-SEM images of the surface of single particles (Fig. 2) suggest that the particle roughness is tuned by the size of the primary aggregates. The particle volume-weighted mean diameter, measured by laser granulometry is 30  $\mu\text{m}$  [Fig. 2(d)]; the width of the volume distribution can be estimated as  $(d_{90} - d_{10})/d_{50} = 2.7$ , where  $d_x$  denotes the particle size below which  $x\%$  of the sample is contained.

The density of the elementary silica particles is 2.1. The effective density of the agglomerated particles is much lower. When immersed, they trap some fluid and their density is of order 1.3, as estimated below.

The fluid is a aqueous solution of  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  at a 0.5 wt. % concentration. This salt comes from the dissolution of



**FIG. 2.** (a) Cryo-SEM image of the surface of a suspended silica particle. (b) SEM image of a dry silica particle. (c) Optical microscopy of a dilute silica suspension. The scale bars are on the pictures. The elementary particles and the primary aggregates are observable in Fig. 2(a). (d) Volume-weighted size distribution of the silica particles measured by laser granulometry; in addition, 6% of the particles in the suspension, not seen here, are primary aggregates of 90 nm mean diameter (see main text).

$\text{Na}_2\text{SO}_4$  that was precipitated on the particles during the industrial fabrication process. The fluid viscosity is  $9.5 \times 10^{-4}$  Pa s, the fluid density is 1, and the surface tension is  $\Gamma_t = 0.07 \text{ N m}^{-1}$ , at a temperature of  $25^\circ\text{C}$  at which the experiments are performed.

Dense suspensions are prepared by mixing silica with demineralized water at various initial mass fractions  $\phi^{\text{wt}} \geq 24 \text{ wt. \%}$ , for which the material has a yield stress at rest (i.e., it is jammed). Preparing homogeneous materials of concentration above 24 wt. % is impossible by mechanical mixing as air is trapped into the jammed material through dilation and fractures, leading to the formation of granules (see Fig. 3). As discussed in Sec. I C, this 24 wt. % fraction is thus close to the limit of granulation, which is also the jamming fraction of frictional suspensions  $\phi_m^{\text{wt}}$  as shown by Hodgson *et al.* [5].

Concentrations above 24 wt. % are achieved by mixing with a vortex applying vibrations (Fig. 3). This is a first indication that the material, initially jammed, can be unjammed by vibrations. Note that the particles are slightly eroded by the vortex mixing, leading to the presence of primary aggregates in the suspension. To ensure that the same particle assembly is characterized in all cases, we limit our study to suspensions that were all vortex-mixed for the same duration



**FIG. 3.** Result of mixing suspensions of silica particles at different mass fractions  $\phi^{\text{wt}}$ . From left to right, the first vial corresponds to  $\phi^{\text{wt}} < \phi_m^{\text{wt}}$  with and without vibrations (here,  $\phi^{\text{wt}} = 23 \text{ wt. \%}$  and vibrations are not applied). The second and third vials correspond to  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$  (here,  $\phi^{\text{wt}} = 29 \text{ wt. \%}$ ), without vibrations (second vial) or when vibrations are continuously applied during mixing (third vial). The last vial corresponds to  $\phi^{\text{wt}} > \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$  with and without vibrations (here,  $\phi^{\text{wt}} = 30 \text{ wt. \%}$  and vibrations are applied). The studied suspension is characterized by  $\phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24$  and  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ .

—150 s— at the same (maximum) rate, which corresponds to a vibration frequency of 45 Hz with an amplitude of order 5 mm. This corresponds to a vibration energy (see below) 100 times higher than that injected in the suspension in the rheological experiments. In these conditions, the primary aggregates fraction was estimated to be 6% of the total particle volume by dry mass measurement of the supernatant formed after centrifugation of the suspension; their mean diameter is 90 nm as measured by laser granulometry on the supernatant. In these experimental conditions, it was not possible to prepare liquidlike materials at fractions beyond 29 wt. % (Fig. 3), which is thus likely close to RCP for our suspensions, by analogy with the observations of Hodgson *et al.* [5].

In order to account for the particle wear by vortex mixing and to study the rheology of suspensions of particle all made of the same particles, all suspension samples were first prepared at the maximum possible mass fraction by dispersing 29 wt. % of particles in water and by vibrating the suspension during 150 s with the vortex mixer. The sample was then diluted to achieve the mass fraction  $\phi^{\text{wt}}$  for which the rheology is studied. We checked that subsequent low energy vibration and flow with the rheometer coupled to the vibration exciter (see below) did not cause any additional particle wear and did not affect further the particle size distribution. This was checked by comparing the particle distribution in three 29 wt. % samples: one was sheared at  $10 \text{ s}^{-1}$  for 10 min, one was vibrated for 10 min at the highest vibration energy achievable with the vibration exciter, while the last sample was kept at rest. The same amount of primary aggregates was found in all samples, confirming that vibrations and flow did not affect the particles size distribution. Consistently, we have observed that the impact of vibrations on the behavior is reversible.

We have characterized the behavior of the liquidlike suspensions for various  $\phi^{\text{wt}} \leq 24 \text{ wt. \%}$  (see Appendix A, Figs. 14 and 15): their viscosity measured at a given shear stress (0.01 Pa) tends to diverge at  $\phi^{\text{wt}} \simeq 0.25$ . This value is consistent with the limit of granulation discussed above. In addition, the flow curves of Fig. 14 suggest that, by contrast with the suspension of Hodgson *et al.* [5], repulsion between the particles is negligible (otherwise, shear thickening would have been observed in the densest suspensions, with a low-viscosity plateau diverging at  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ ), we deal here with a frictional suspension at any observable shear stress.



Finally, from all the above observations, we estimate the values of the jamming fraction of the frictional and frictionless suspensions to be, respectively,  $\phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24$  and  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . All of our experiments were performed for  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , that is, in the range of mass fraction where the frictional suspension is *a priori* jammed.

Note that there is a wide range of accessible mass fractions for the frictional jammed states, from 24 to 30 wt. %. This is a key point for investigating the transition from frictionless to frictional states leading to shear-jamming, as preparing a jammed state is easier and less sensitive to slight changes in the composition. Computing the ratio  $\phi_j(\mu_p)/\phi_j(\mu_p = 0) = \phi_m/\phi_{\text{rcp}} = \phi_m^{\text{wt}}/\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ , we get here  $\phi_m/\phi_{\text{rcp}} \simeq 0.8$ , whereas  $\phi_m/\phi_{\text{rcp}} \gtrsim 0.9$  for frictional spheres. This likely comes from the irregular shape and the large effective roughness of the studied particles. Indeed,  $\phi_m/\phi_{\text{rcp}} \simeq 0.8$  is also found for cornstarch particles [31]. This is consistent with numerical simulations of dry granular materials and suspensions which show that (i) frictional polygons with a small number of edges behave like frictional disks of high rolling resistance [32] and that (ii) the critical state volume fraction of frictional disks and the jamming volume fraction of frictional spheres are decreased when adding rolling resistance [29,33].

Assuming that the RCP mass fraction  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$  corresponds to a volume fraction of order 70% for the studied polydisperse particles, we finally estimate that, when suspended in water, they are composed of 25% of agglomerated silica particles and of 75% of entrapped fluid. This leads to an effective density of the particles of order 1.3.

## B. Rheometry

### 1. Rheometry under vibrations

Rheological measurements have been obtained using the same original setup (Fig. 4) as Gaudel *et al.* [28], which couples a stress-imposed rheometer (AR 1500ex, TA Instruments) with a vibration exciter (Brüel & Kjær); additional experiments on nonvibrated suspensions have been performed with a Kinexus Ultra+ rheometer (Netzsch). The suspension is first poured in a cup of 50 mm diameter equipped with 4 mm baffles to avoid wall slip. A six blade vane (22 mm diameter, 50 mm length) is then inserted into the material and rotated to characterize its behavior. The use of a vane tool instead of a Couette bob allows the tool insertion in the jammed material and prevents from wall slip. The cup is connected to a vibration shaker controlled by a power amplifier, an accelerometer, and a generator. The amplitude  $A$  and frequency  $f$  of the applied vertical vibrations vary from 100 to 500  $\mu\text{m}$  and 10 to 50 Hz, respectively. The relevant control parameter in vibrated granular materials and granular suspensions has been shown to be the mechanical vibration stress

$$\sigma_v = \frac{1}{2} \rho_s A^2 (2\pi f)^2, \quad (1)$$

with  $\rho_s$  being the suspension density.  $\sigma_v$  is the density of kinetic energy injected into the system [25,26,34].

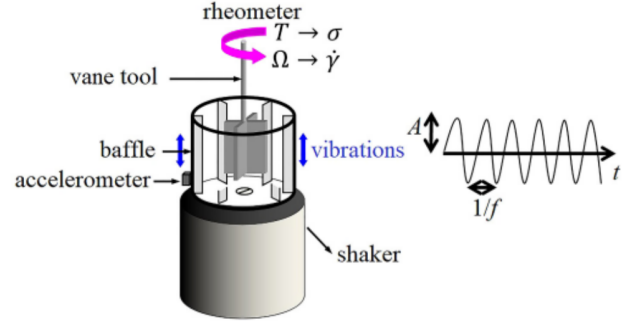


FIG. 4. Sketch of the setup.

In the experiments, the vane is not fully immersed in the suspension to avoid possible Janssen effects, which would affect the particle pressure variation with height for frictional flows [35]; such effects are typically observed for depths larger than 1.5 times the gap size [35] when the particle pressure is set by gravity. Here, the immersed length  $h_v$  of the vane is 21 mm (it is shown in Appendix B that there is no observable Janssen effect at this depth). A procedure based on a Couette analogy [36] is used to extract the shear stress and shear rate from the torque and angular velocity, respectively. Accordingly, the shear stress  $\sigma$  is estimated by using

$$\sigma = \frac{T}{2\pi R^2 h_v}, \quad (2)$$

where  $T$  is the torque and  $R$  is the radius of the vane, and the shear rate is estimated as

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega R}{e}, \quad (3)$$

where  $\Omega$  is the vane tool rotation velocity and  $e = 4.63$  mm is the effective sheared gap allowing for quantitative measurements in this geometry with the Couette analogy. As discussed in Appendix B, Eq. (2) is relevant here even for frictional flows as the particle stress does not depend on depth in our system.

For the densest suspensions (28 and 29 wt. %), the suspension is previbrated at  $f = 50$  Hz and  $A = 500$   $\mu\text{m}$  for 10 min before each measurement to ensure an initial reproducible homogeneous state, which is crucial when the material in its jammed state has been fractured by shear. The fractures are observed to disappear under vibrations, and the material surface looks homogeneous, suggesting homogeneity of the material; this is confirmed by the good reproducibility of the experiments. At lower mass fraction, to prevent from possible sedimentation, suspensions are stirred manually before each measurement.

Tests were carried out at room temperature  $T \simeq 25$   $^\circ\text{C}$ . The response of the material subjected to a logarithmic shear-rate ramp from  $\dot{\gamma} = 0.01$  to  $100$   $\text{s}^{-1}$  was studied, with a ramp speed of 1 decade/min, for various amplitudes and frequency of vibrations. As shown below, the material behavior in its jammed state is characterized by a plastic plateau, typical of granular frictional flows, which cannot be captured accurately under controlled stress [37], we thus chose to control the shear rate.

In the experiments performed with the AR 1500ex rheometer (rheometry coupled to vibrations), only data for shear stresses higher than 0.1 Pa (limit of accuracy) are reported; in the experiments performed with the Kinexus rheometer (shear-reversal experiments and viscosity measurements at low volume fraction), the limit of accuracy was 0.01 Pa. Furthermore, when the suspensions are in a solidlike state (unvibrated suspensions), the material first shows a transient response to shear due to its elastoplastic behavior and to its initial dilation (see [Appendix B](#), [Fig. 19](#)); in such cases, we only report data for accumulated strains higher than 2, when the shear-rate ramps are applied on the material initially at rest, this leads us report only data at shear rates higher than  $0.1 \text{ s}^{-1}$ .

## 2. Shear-reversal experiments

We have performed shear-reversal experiments [21,38] on the nonvibrated suspensions to evaluate the respective contributions of interparticle contacts and of hydrodynamic interactions to their shear viscosity. The principle of these experiments is the following: (i) the suspension is first sheared at a given shear stress or shear rate in a simple shear flow until a steady state is reached; (ii) the direction of shear is subsequently reversed (keeping the same value of the applied shear rate or stress), and the viscosity evolution with strain is recorded. The underlying idea is that interparticle contacts switch from compression to traction and are suddenly broken upon shear reversal. This usually results in an abrupt decrease of the viscosity, the minimum of which can be associated mostly with hydrodynamic interactions [38].

In order to have the best possible time, stress, and strain resolution, as required by such experiments, we have used here a Kinexus Ultra+ rheometer (Netzsch). A similar geometry (25 mm diameter six blades vane in a 50 mm diameter cup) is used as in the vibration experiments to ensure accurate quantitative comparison of the results obtained in both kind of experiments. Since we use a stress-controlled rheometer, we work here in the controlled-stress mode in order to monitor accurately the transient evolution of the viscosity with strain. As in [39], we first shear the suspension at a constant imposed shear rate  $\dot{\gamma}$  until the shear strain  $\gamma$  exceeds 10 and a steady state of stress  $\sigma$  is reached; this step is necessary to capture the initial plastic behavior. We then switch to stress-controlled mode and apply the measured steady-state stress  $\sigma$  during 5 s. We then apply a resting period of 10 s at zero stress before applying a stress  $-\sigma$  until a new steady state is reached. We monitor the evolution of the shear viscosity both before and after shear reversal. These measurements are repeated for several values of  $\dot{\gamma}$  (and thus of  $\sigma$ ).

## III. EXPERIMENTAL RESULTS

In this section, we first discuss in detail the behavior of a 29 wt. % suspension and its origin. 29 wt. % is the maximum particle fraction that we have investigated, close to the random close packing value  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . As such, it allows us to highlight the impact of vibrations on jamming. After presenting the rheological behavior of the 29 wt. % suspension in the absence of vibrations, we show the influence of vibrations on its apparent viscosity and the impact of a change in

the injected energy. We subsequently study the impact of a change of the particle fraction  $\phi^{\text{wt}}$  in the range  $\phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24 < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ . We, finally, compare the short time response to shear-reversal and the steady-state response to vibrations.

## A. Nonvibrated suspensions: Plastic jammed materials

Figure 5 displays the flow curve of the nonvibrated 29 wt. % suspension measured with a shear-rate ramp.

In the absence of vibrations, the suspension behaves as a yield stress fluid; no steady flow is observed below a yield stress  $\sigma_y \simeq 300 \text{ Pa}$ . The behavior is mostly plastic, with negligible viscous effects in the range of shear rates  $\dot{\gamma}$  investigated. This leads to an apparent viscosity  $\eta(\dot{\gamma}) \simeq \sigma_y/\dot{\gamma}$ , thus decreasing with the shear rate with a power law close to  $-1$  [this is evidenced in [Fig. 5\(a\)](#)]. Note that fracture and progressive digging of the free surface are observed, which is classical with plastic materials; the observed  $\sigma_y$  is thus only an apparent value. The progressive digging results in the initial decrease of the shear stress when increasing the shear rate in [Fig. 5\(b\)](#). A more accurate characterization of the plastic behavior is presented in [Appendix B](#).

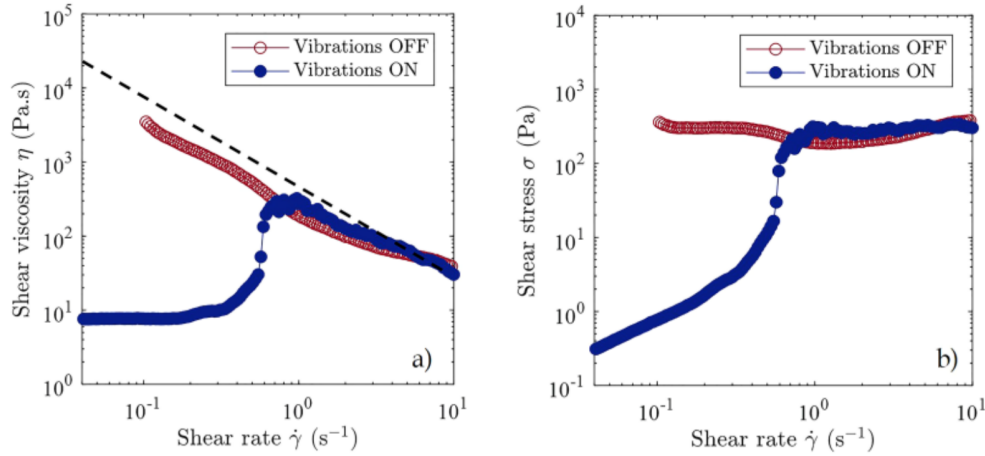
The observation of such a plastic plateau is reminiscent of that found in unvibrated dry [34,40] and wet [25,41] granular materials in Couette geometries. This suggests a purely frictional origin of the observed behavior.

The main difference between our observations and those mentioned above is that dilation was free to occur in the vertical (vorticity) direction in the previous works, whereas the particle assembly is confined by the liquid interface surface tension in our case. When sheared, as  $\phi > \phi_m = \phi_c$ , the steady flow of the material implies dilation. This leads the particles to protrude from the liquid-air interface [5,42] in our material, as we observe experimentally: the free surface, smooth and shiny at rest, becomes rough and scatters light upon shear. It can thus be assumed that a pressure is applied by capillarity on the particles at the free surface, which reaches at steady-state its maximum possible value  $p_{\text{cap}} \propto \Gamma_l/r_p$ , where  $\Gamma_l$  is the liquid/air surface tension and  $r_p$  is the mean particle radius. This order of magnitude for  $p_{\text{cap}}$  is justified by the upper limit for the particle stress evidenced experimentally by Garland *et al.* [43] (see [Sec. III](#) in [43]; see also [44] for an attempt to model  $p_{\text{cap}}$ ). In our case  $p_{\text{cap}} \simeq 5000 \text{ Pa}$ , whereas  $p_{\text{cap}} = 0$  in [25,41] due to the presence of supernatant.

We note that dilation at the free surface is limited, and also necessarily occurs in the radial direction. The flow imposed by the rotation of the vane tool implies that volume fraction decreases down to a local value  $\leq \phi_m$  close to the tool in a thin flowing shear band, the rest of the material being jammed [45] and seeing its volume fraction increase to ensure that the average volume fraction remains unchanged. The values of shear rate provided in this frictional state are thus only apparent values.

The total particle pressure applied on the granular assembly can be decomposed as  $p = p_{\text{cap}} + p_{\text{grav}}$  where the pressure due to gravity depends on the depth  $z$  (whereas  $p_{\text{cap}}$





**FIG. 5.** Flow curve of a 29 wt. % silica suspension with (filled circles, blue) and without (empty circles, red) vibrations: (a) shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$ , (b) shear stress  $\sigma$  versus  $\dot{\gamma}$ . The amplitude and frequency of vibrations are 500  $\mu\text{m}$  and 20 Hz, respectively. A dashed line  $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$  is shown in Fig. 5(a) to better evidence the plastic behavior of the nonvibrated suspension.

does not) and is  $p_{\text{grav}} = \phi \Delta \rho g z$ .  $p_{\text{grav}}$  reaches a maximum value  $\simeq 50$  Pa at the bottom of the vane tool in our material, which is much less than  $p_{\text{cap}}$ . Then, as discussed in the introduction, the particle pressure being fixed by its bound  $p_{\text{cap}}$ , the shear stress is  $\sigma = \mu(I_v)p$ . The friction coefficient  $\mu(I_v)$  *a priori* depends on the viscous number  $I_v = \eta_f \dot{\gamma} / p$  [7]. Here,  $I_v$  ranges between  $10^{-8}$  and  $10^{-5}$ , which is in the range where  $\mu(I_v)$  is observed to stay constant in the literature [3,7]. This explains the observation of a plastic plateau  $\sigma_y = \mu(I_v = 0)p$  in Fig. 5(b). The major role of  $p_{\text{cap}}$  in our experiments can be shown by studying the value of the torque plateau as a function of the immersed height  $H$  of the vane: as the gravity stress varies with depth, the resulting shear stress  $\mu p_{\text{grav}}$  leads to a  $\propto H^2$  contribution to the torque, whereas the shear stress  $\mu p_{\text{cap}}$  resulting from the capillary pressure is constant and leads to a  $\propto H$  contribution to the torque. This is studied and discussed in detail in Appendix B: here we find  $T \propto H$ , which confirms that the particle pressure is dominated by capillarity, as expected from the relative estimated values of  $p_{\text{cap}}$  and  $p_{\text{grav}}$ . Finally, as discussed in detail in Appendix B, the material friction coefficient can be roughly estimated as  $\mu(I_v = 0) \simeq 0.12$ , which is close to values found in the quasistatic regime of dry granular materials [9].

## B. Vibrated suspensions: shear-thickening viscous materials

We now discuss the differences between a vibrated suspension and a nonvibrated one. Figure 5 displays the flow curve of a vibrated 29 wt. % suspension, for an amplitude of 500  $\mu\text{m}$  and frequency of 20 Hz, on the same graphs as those for the nonvibrated one.

When vibrations are applied, as Hanotin *et al.* [25], we observe that the material has no more yield stress. Instead, a liquidlike behavior is observed with a pseudo-Newtonian plateau at low shear rate, of viscosity around  $\eta = 10$  Pa.s. As the shear rate increases, shear-thickening is observed: the viscosity abruptly jumps by an order of magnitude at a critical shear rate of order  $0.5 \text{ s}^{-1}$  (critical shear stress of order 5 Pa).

At larger rates, the plastic behavior of the nonvibrated suspension is recovered with an apparent viscosity  $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$ .

We checked that the impact of vibrations on a given sample is reversible: when turning alternatively vibrations on and off at a given low  $\dot{\gamma}$ , the material behavior switches reversibly from the low-viscosity plateau (blue curve in Fig. 5) to the high stress plateau (red curve in Fig. 5). We also recall (Sec. II A) that we checked that the particles are not broken during the experiments: their size is neither affected by flow nor by vibrations.

The two regimes might be understood as follows:

**low  $\dot{\gamma}$ :** at low shear rate  $\dot{\gamma}$ , the vanishing yield stress and the observation of a viscous regime means that the jamming volume fraction  $\phi_j$  of the suspension, initially equal to  $\phi_m$  and smaller than the material volume fraction  $\phi$ , has been increased above  $\phi$  under the action of vibrations. This implies that contacts between particles are, at least partially, constantly broken by the vibrations during the flows, as proposed by Hanotin *et al.* [25].  $\phi_j$  can *a priori* tend towards  $\phi_{\text{rcp}}$  if no contact is able to persist under the action of vibrations: the suspension would then behave as a suspension of frictionless particles. This possibility is discussed in Secs. III E and IV.

**high  $\dot{\gamma}$ :** when increasing  $\dot{\gamma}$ , at a critical shear rate  $\dot{\gamma}_c \simeq 0.5 \text{ s}^{-1}$  (critical shear stress  $\sigma_c \simeq 5$  Pa), the material suddenly behaves as a yield stress fluid again, i.e., shear jamming occurs. This means that the jamming volume fraction  $\phi_j$  is decreased below  $\phi$ , likely back to its initial value  $\phi_m$  for the frictional suspension. This transition between two regimes points to a competition between contact disruption by vibrations and contact formation by shear: there is a critical value of stress or shear rate for which shear-induced contact formation starts to be more efficient. The appropriate criterion is discussed in Secs. III C and IV. Note that in the shear-jammed

regime, as for the nonvibrated suspension, flow must result in the separation of the system into a low-density-flowing band (of local volume fraction  $\leq \phi_m$ ) close to the vane tool and a high-density-jammed region; the reported shear rate value is thus an apparent value.

It is worth noting that thanks to the use of a vane tool, the whole material bulk is vibrated. If a bob had been used instead, a secondary orthogonal shear flow would have been generated [46]; such 3D flow would have led to an apparent fluidization for dominant orthogonal shear flows, as observed for superimposed flows of yield stress fluids [47,48]. Here, as in Hanotin *et al.* [25], the impact of vibration can be fully attributed to vibration-induced microstructural changes, as shown by Gaudel *et al.* [28].

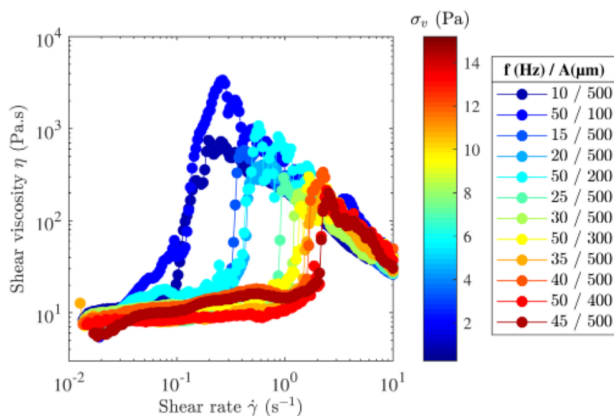
### C. Effect of the vibration stress $\sigma_v$

To further understand the role of vibrations, we now study the impact of a change of the amplitude  $A$  and frequency  $f$  of vibration on the observed behavior. Figure 6 displays the flow curve of a vibrated 29 wt. % suspension, for various values of  $A$  and  $f$ .

The same behavior is observed as in Sec. III B in all the studied cases, that is, a fluidization at low shear rate and a shear-jamming transition at a critical shear rate  $\dot{\gamma}_c$ . The main feature observed here is a significant increase of  $\dot{\gamma}_c$  with both  $A$  and  $f$ ; by contrast, a change of  $A$  and  $f$  does not seem to have a significant impact on the viscosity of the viscous and shear-jammed states (such possible impact is discussed below).

According to Marchal *et al.* [34] and Hanotin *et al.* [25], the relevant parameter tuning the material behavior is the density of vibration energy [Eq. (1)], recalled here:  $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$ . Dimensionally,  $\sigma_v$  is also a stress characteristic of the vibrations. In Fig. 6, it is observed that, indeed,  $\sigma_v$  allows to rationalize the data: when varying independently or simultaneously  $A$  and  $f$ , shear jamming is observed at higher  $\dot{\gamma}_c$  when  $\sigma_v$  is increased.

To further test this idea, we plot the critical shear rate  $\dot{\gamma}_c$  and the critical shear stress  $\sigma_c$  as a function of  $\sigma_v$  in Fig. 7.



**FIG. 6.** Flow curves of a vibrated 29 wt. % silica suspension: shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for different values of the amplitude  $A = [100 - 500]\mu\text{m}$  and frequency  $f = [10 - 50]\text{Hz}$  of vibration. The legend also shows the values of the corresponding vibration stress  $\sigma_v$ .

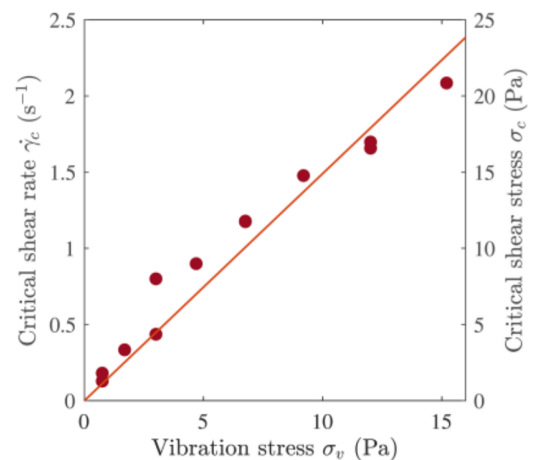
The  $\dot{\gamma}_c$  values were obtained by choosing the last data point before the viscosity jump on the flow curves of Fig. 6. For  $\sigma_c$ , since we work at controlled shear rate, there is a huge stress variation at the shear-jamming transition and the exact onset stress is hard to determine directly; we thus chose to estimate the value of  $\sigma_c$  by multiplying the value of the average over all experiments of the viscosity plateau observed the low shear rate regime (here, 10 Pa s) with the critical shear rate  $\dot{\gamma}_c$ .

We observe in Fig. 7 that  $\dot{\gamma}_c$  and  $\sigma_c$  seem to be linearly proportional to  $\sigma_v$ . This proportionality with both  $A^2$  and  $f^2$  is also clear when they are plotted versus  $A$  for a given value of  $f$ , and versus  $f$  for a given value of  $A$ ; these plots are shown in Appendix C.

We also note that the viscosity plateau in the fluidized suspension does not vary much in the range of investigated  $\sigma_v$ . This feature differs from the observations of Hanotin *et al.* [25] who found this viscosity to be clearly  $\propto 1/\sqrt{\sigma_v}$ . This dependence was attributed to the increased fraction of open contacts with  $\sigma_v$  [26]. Our observations might thus imply that the vibrations are fully efficient to open all contacts at low shear rate in our case. This would need to be investigated in more detail. In particular, does critical values of  $\sigma_v$  exist for initiating fluidization and for reaching full fluidization? This cannot be investigated with our setup due to the technical limits of the vibrating device ( $0.7\text{Pa} \leq \sigma_v \leq 15\text{Pa}$ ). Moreover, for a given value of  $\sigma_v$ , can the minimum time scale of shear  $1/\dot{\gamma}_c$  in the fluidlike regime be lower than the time scale  $1/f$  of vibrations? Answering this question would require studying suspensions with higher  $\dot{\gamma}_c$  values.

### D. Effect of the particle fraction

We now study the impact of a change of the particle fraction on the flow curves. Data have been collected for different mass fractions  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}} < \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$  for various amplitudes and frequencies of vibrations. The flow curves obtained in the absence of vibration and at a given amplitude



**FIG. 7.** Critical shear rate  $\dot{\gamma}_c$  and critical shear stress  $\sigma_c$  for shear jamming in the 29 wt. % suspension as a function of  $\sigma_v$ . The line is a linear fit to the data. We find  $\sigma_c \simeq 1.5\sigma_v$ .

$A = 500 \mu\text{m}$  and frequency  $f = 20 \text{ Hz}$  of vibration (corresponding to a vibration stress  $\sigma_v = 3 \text{ Pa}$ ) for the different studied mass fractions are displayed in Fig. 8. The results obtained for a 28 wt. % and a 26 wt. % suspension with different vibration stresses are also shown in Appendix D.

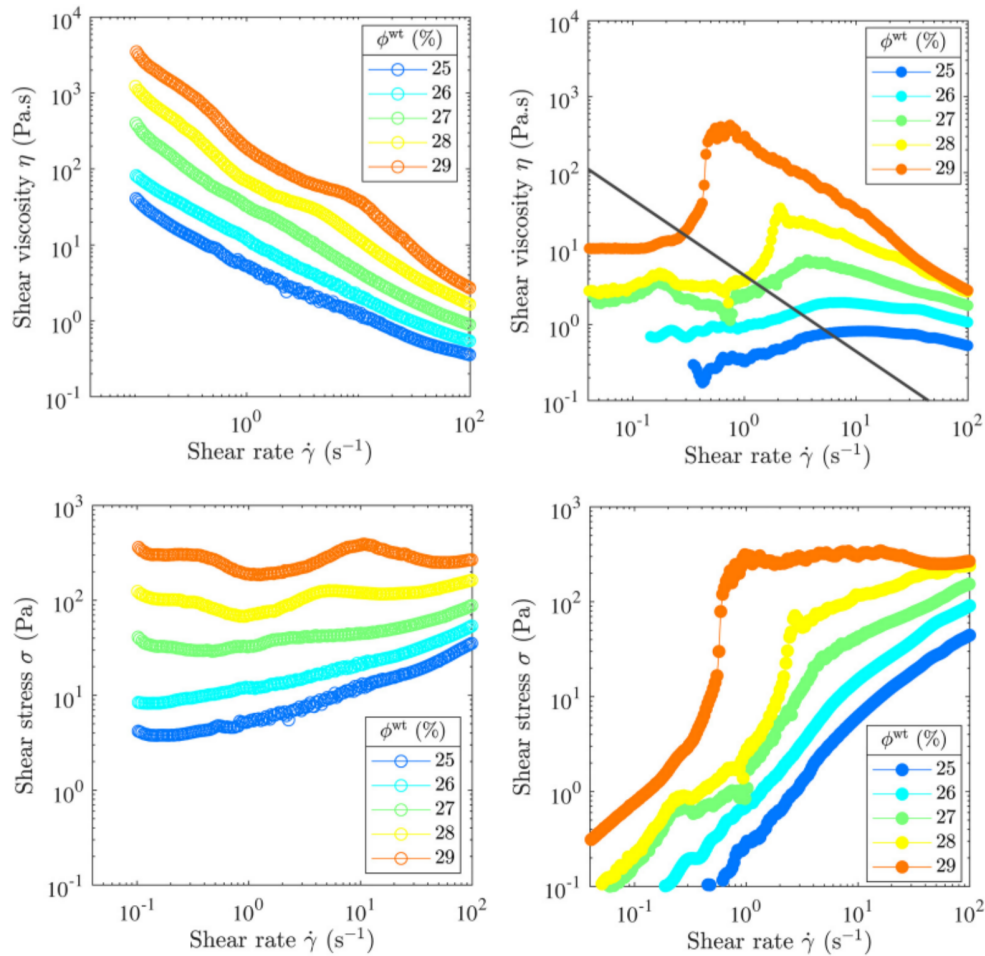
In the absence of vibrations, all materials display a yield stress fluid behavior, as expected since  $\phi_m^{\text{wt}} < \phi^{\text{wt}}$ . This leads to an apparent shear-thinning behavior with  $\eta \propto 1/\dot{\gamma}$  at low  $\dot{\gamma}$ . The observed yield stress decreases as  $\phi^{\text{wt}}$  is decreased. Given the origin of the yield stress discussed in Sec. III A, this is likely due to the fact that the local suspension dilation required by flow decreases as  $\phi^{\text{wt}}$  gets closer to the critical state fraction  $\phi_c^{\text{wt}} = \phi_m^{\text{wt}} \simeq 0.24$ . This leads to a decreased particle protrusion at the particle interface and to a decrease of  $p_{\text{cap}}$ , and finally to a decrease of  $\sigma_y = \mu(I_v = 0)p_{\text{cap}}$ . Predicting the  $\phi^{\text{wt}}$  dependence of  $\sigma_y$  is beyond the scope of our study.

In the presence of vibrations, for all investigated  $\phi^{\text{wt}}$ , the yield stress vanishes to give rise to a liquidlike pseudo-Newtonian behavior at low shear rate. The flow curves then present a shear-thickening transition at high shear rate, where the behavior in the absence of vibrations is

recovered. As classically observed for shear-thickening suspensions [4], the overall viscosity increases as the concentration  $\phi^{\text{wt}}$  is increased, and shear thickening is observed at lower and lower  $\dot{\gamma}$  values as  $\phi^{\text{wt}}$  is increased. Moreover, the thickening transition is more and more abrupt as  $\phi^{\text{wt}}$  is increased, it seems to switch from continuous to discontinuous at the approach of  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}}$ .

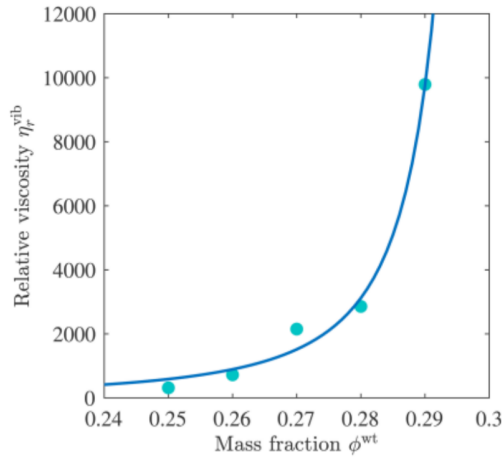
It is often reported that shear-thickening occurs at a roughly constant shear stress when changing the particle fraction [4]; this is in reasonable agreement with our data, as highlighted by the constant shear stress line in Fig. 8. Consistently, when changing the vibration stress  $\sigma_v$ , the same behavior is observed for all  $\phi^{\text{wt}}$  as for the 29 wt. % suspension, with a critical shear rate  $\dot{\gamma}_c$  and a critical shear stress  $\sigma_c$  increasing with  $\sigma_v$  (see Appendix D).  $\sigma_c$  can finally be estimated as  $\sigma_c \simeq 1.5\sigma_v$  for all mass fractions, as was found for the 29 wt. % suspension.

We now plot the relative viscosity  $\eta_r^{\text{vib}} = \eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  in the liquidlike regime of vibrated suspensions as a function of the suspension mass fraction  $\phi^{\text{wt}}$  in Fig. 9. At a given  $\phi^{\text{wt}}$ , we evaluate the viscosity value  $\eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})$  at low shear stress  $\sigma = 0.1 \text{ Pa}$  for a vibration stress  $\sigma_v \simeq 3 \text{ Pa}$ . The viscosity



**FIG. 8.** Flow curves of the silica suspensions at different mass fractions. Top : viscosity versus shear rate. Bottom: shear stress versus shear rate. Left: without vibration. Right: for a given amplitude  $A = 500 \mu\text{m}$  and frequency  $f = 20 \text{ Hz}$  of vibration, which corresponds to  $\sigma_v = 3 \text{ Pa}$ . The solid line on the second figure is a constant stress  $\sigma_c = 4.5 \text{ Pa}$  line.





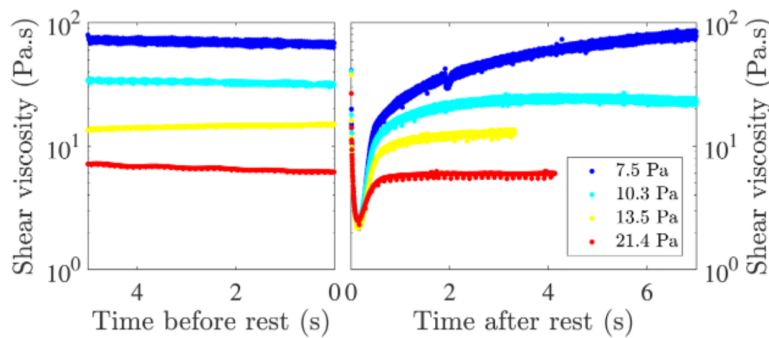
**FIG. 9.** Relative viscosity  $\eta_r^{\text{vib}} = \eta^{\text{vib}}(\phi^{\text{wt}})/\eta_f$  in the liquidlike regime of vibrated suspensions as a function of the suspension mass fraction  $\phi^{\text{wt}}$ . The line is a fit to a Maron–Pierce power law  $\eta_r^{\text{vib}} = C(1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_j^{\text{wt}})^{-2}$ , with  $C = 18$  and  $\phi_j^{\text{wt}} = 0.303$ .

diverges with an asymptotic behavior consistent with a Maron–Pierce power law  $\eta_r^{\text{vib}} = C(1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_j^{\text{wt}})^{-2}$ , as classically observed in viscous suspensions [3], with  $C = 18$  and  $\phi_j^{\text{wt}} = 0.303$ . This jamming volume fraction  $\phi_j^{\text{wt}}$  is close to the estimated random close packing  $\phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} \simeq 0.3$ , which is the value expected for a frictionless suspension. This strongly suggests that the impact of vibrations is to open the particle contacts and that they are here fully efficient to open all contacts, creating a frictionless suspension. This possibility is investigated in the next section.

### E. Shear-reversal experiments: Viscosity of frictionless suspensions

As vibrations are suspected to play a role on the particle contact network, we have performed shear-reversal experiments [21,38] to disentangle the contributions of interparticle contacts and of hydrodynamic interactions to the shear viscosity of non-vibrated suspensions, as detailed in Sec. II B 2. Note that it is not possible to analyze such experiments for the 29 wt. % suspensions as the material is fractured when sheared.

In Fig. 10, we plot the shear viscosity as a function of time before and after shear reversal for a 26 wt. %



**FIG. 10.** Response to shear-reversal experiments of a 26 wt. % suspension. Different stresses are applied (see legend). Left: Steady-state viscosity as a function of the time before rest and reversal. Right: Evolution of the viscosity as a function of the time elapsed since the beginning of reversal.

suspension. As classically observed in concentrated suspensions [21,38], there is an abrupt drop of the shear viscosity upon shear reversal for each applied stress (the same is observed for all studied mass fractions); it subsequently increases until it reaches the same steady state as in the reverse direction, which occurs for a similar strain scale of order 4 for all applied stresses (consistently with [38]). In the range of stresses investigated, the viscosity drops by a factor 2–50.

The minimum viscosity  $\eta_{\text{min}}$  achieved during the reversal is plotted versus the applied shear stress in Fig. 11 for the 26 wt. % suspension, together with the steady state viscosity; the flow curves obtained from a shear rate ramp with or without vibrations are also displayed. Similar curves are shown for the other investigated mass fractions in Appendix E.

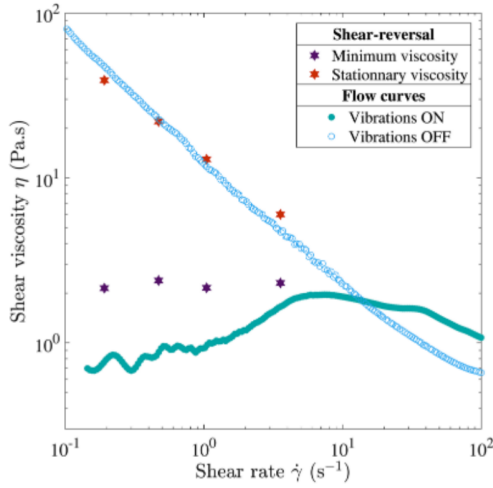
Strikingly,  $\eta_{\text{min}}$  is quasi-independent of the applied shear stress for each particle fraction. This is consistent with the results of Peters *et al.* [38] who showed that the  $\eta_{\text{min}}$  value is close to the pure hydrodynamic contribution to the suspension viscosity. Although the microstructure of frictional and frictionless suspensions are expected to present some differences,  $\eta_{\text{min}}$  can thus be seen as a good estimate of the viscosity of the suspension for frictionless particles, as was shown by Lin *et al.* [21].

When compared with the steady-state viscous behavior achieved under vibration at low stresses, it is observed that the  $\eta_{\text{min}}$  values are close to the viscosity of the vibrated sample for all investigated particle fractions. This supports the interpretation that vibrations tend to pull particles apart and to generate a suspension of frictionless particles. The results shown in Appendix E for other particle fractions lead to the same conclusion.

## IV. DISCUSSION

### A. Summary and scenario

In this work, we have studied a suspension of volume fraction  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ . We recall that  $\phi_m$  is the jamming volume fraction  $\phi_j(\mu_p = \mu_0)$  for the suspension of particles of interparticle friction coefficient  $\mu_0 \neq 0$ , which is also the volume fraction  $\phi_c$  of the critical state of granular materials. In practice, it is the volume fraction at which the viscosity of the suspension diverges and at which granulation starts.



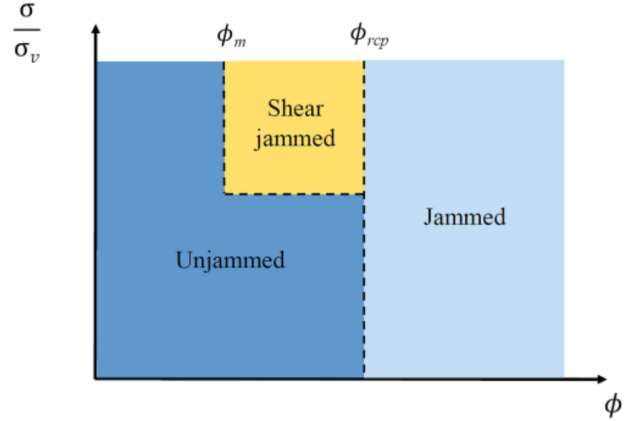
**FIG. 11.** Shear viscosity versus shear rate for a 26 wt. % suspension. Stars: steady-state and minimum viscosity obtained from shear-reversal experiments. Circles: flow curves obtained from a shear rate ramp with (filled circles) or without (empty circles) vibrations; here  $\sigma_v = 3$  Pa.

$\phi_j(\mu_p = 0)$  is the jamming volume fraction of the same particles in the absence of frictional forces as if the particles were frictionless;  $\phi_j(\mu_p = 0)$  is equal to the random close packing  $\phi_{rcp}$  of the particle assembly.

In the absence of vibrations, consistent with  $\phi_m < \phi$ , we have observed that the suspension is jammed. Thus, it behaves as a dilatant granular material, and flows only above a yield stress  $\sigma_y$ . Here, the suspension is confined by the liquid interface surface tension, with a confinement pressure  $p$ , and  $\sigma = \sigma_y \simeq \mu(0)p$  for any imposed shear rate, where  $\mu(0)$  is the friction coefficient of the granular assembly in the limit of vanishing viscous number  $I_v$ , as all of our data are obtained for  $I_v \leq 10^{-5}$ . The confinement pressure  $p$  depends on  $\phi$ . It is bounded by a maximum value  $p_{cap} \sim \Gamma_t/r_p$ , which seems to be achieved only at the highest investigated particle fraction.

Under vibrations, we have observed fluidization of the suspension at low shear rate/shear stress in the whole range of amplitude and frequency of vibration investigated. This implies that the suspension jamming fraction  $\phi_j$  is affected by the vibrations and increases above  $\phi$ . As in [26], this is attributed to vibration-induced contact disruption. We note however that the viscosity in this regime seems to be independent of  $\sigma_v$  by contrast with [25], which would imply that the efficiency of contact disruption by vibrations is here maximal. Consistently, this low shear rate viscosity is similar to the minimum viscosity observed in shear-reversal experiments, and it increases with  $\phi$  as expected for a frictionless suspension, with a Maron–Pierce law diverging at RCP.

A transition to shear jamming has then been observed at a critical shear rate/shear stress. In the shear-jammed regime, the material seems to recover the behavior observed in the absence of vibrations. This points to a transition between a frictional and a frictionless suspension when turning vibrations on and between a frictionless and a frictional suspension when increasing the shear rate/shear stress on the vibrated suspension. In other words, the jamming volume fraction would change



**FIG. 12.** Jamming diagram of the suspension in the space of dimensionless stress  $\sigma/\sigma_v$  and volume fraction  $\phi$ .

from  $\phi_j(\mu_p = \mu_0) = \phi_m < \phi$  to  $\phi < \phi_j(\mu_p = 0) = \phi_{rcp}$  when turning vibrations on at low shear rate and then from  $\phi < \phi_j(\mu_p = 0) = \phi_{rcp}$  to  $\phi_j(\mu_p = \mu_0) = \phi_m < \phi$  when increasing the shear rate under vibrations.

The scenario of a competition between contact disruption by vibrations and contact formation by shear is similar to the mechanism proposed by Hanotin *et al.* [25]; however, they did not observe shear jamming. This striking difference is likely due to the fact that they worked with a settled suspension, free to dilate in the vorticity direction, whereas we work with a confined suspension at constant volume fraction  $\phi$ . Indeed, in Hanotin *et al.* [25], a constant confining stress (gravity) was applied on a settled suspension; the volume fraction then resulted from a complex interplay between gravity, vibrations, and shear but was free to vary, likely preventing shear jamming to occur. When increasing  $\dot{\gamma}$ , it is likely that  $\phi$  decreases simultaneously to  $\phi_j$  in the work of Hanotin *et al.* [25], i.e.,  $\phi$  may remain below  $\phi_j$  even when vibrations are no more efficient to break contacts.

Our observations can be summarized in the schematic jamming diagram shown in Fig. 12. They might be understood in the framework of the model developed by Wyart and Cates [16] to model the behavior of shear-thickening suspensions and by using the vibration stress  $\sigma_v$  introduced by Hanotin *et al.* [25] to account for the impact of vibrations on the behavior of frictional suspensions, as discussed below.

## B. Shear thickening and the Wyart and Cates model

In order to better understand our observations, it is necessary to come back to the recent developments in the literature of shear thickening.

Shear thickening, i.e., the increase of the apparent viscosity with the load, is observed in the absence of vibrations in most concentrated non-Brownian suspensions with particle size in the range 1–100  $\mu\text{m}$ . It is more and more abrupt as the volume fraction is increased and may become discontinuous, meaning that there is a jump in the viscosity under controlled shear rate at some critical value [3,4]. Strictly speaking, discontinuous shear thickening (DST) is the transition from a viscous state to a more viscous state with a finite value of

viscosity and homogeneous flow. At the vicinity of the jamming transition, shear jamming is then observed: under controlled stress, the flow abruptly stops at some critical value, meaning that the apparent viscosity becomes infinite. In the case of shear jamming, no flow is possible above a critical shear rate. Experimentally, some confusion between DST and shear jamming can then be due to the fact that macroscopic flows can be observed at any controlled macroscopic shear rate, even if the material shear jams. In this latter case, the material becomes inhomogeneous and shear banding occurs as zones of lower density form to accommodate the boundary conditions [31]. As discussed previously, the thickening we observe under controlled shear-rate in our vibrated suspensions is shear jamming.

Recent theoretical and numerical studies of Wyart and Cates [16] and Mari *et al.* [17] have related shear thickening to a transition from lubricated (frictionless) to frictional contacts with the increase in stress. This has been linked to the existence of a short-range repulsive force between the particles and to the competition between this force and hydrodynamic forces. If such repulsive force exists, the contacts are lubricated (frictionless) at low shear rate, as the particles cannot approach each others. At high load, the hydrodynamic normal forces become sufficiently important to bring particles into contact as the repulsive forces are overcome. Interparticle friction then occurs, leading to an increase of the viscosity or to shear jamming; shear jamming is then the creation of a macroscopic jammed contact network induced by shear. Experimental evidence for this microscopic description of the shear-thickening transition has been recently presented by Comtet *et al.* [19], thanks to direct interparticle force measurements.

As shown by Wyart and Cates [16], the whole shear thickening behavior of model suspensions such as suspensions of non-Brownian spheres of volume fraction  $\phi$  can be explicitly modeled with the help of three ingredients: (i) a stress-dependent fraction of interparticle frictional contacts in the suspension  $f_c(\sigma)$ , the other contacts being lubricated; (ii) a  $f_c$ -dependent jamming volume fraction  $\phi_j(f_c)$ ; and (iii) a  $\phi_j$ -dependent viscosity function  $\eta_r(\phi/\phi_j)$ .  $f_c(\sigma)$  is a monotonically increasing function of  $\sigma$  such that  $f_c(0) = 0$  and  $f_c(\sigma \rightarrow \infty) = 1$ . In the absence of contacts ( $f_c = 0$ ),  $\phi_j(0) = \phi_{\text{rcp}}$ , whereas when all contacts are frictional ( $f_c = 1$ ),  $\phi_j(1) = \phi_j(\mu_p = \mu_0) = \phi_m$ :  $\phi_j(f_c)$  is then a monotonically decreasing function of  $f_c$  interpolating between these two values. Finally,  $\eta_r(\phi/\phi_j)$  is a monotonically increasing function of  $\phi/\phi_j$  diverging at  $\phi/\phi_j = 1$ . With these ingredients, if the suspension volume fraction  $\phi$  is lower than  $\phi_j(f_c = 1) = \phi_m$ , then DST can be observed in some conditions as a transition from a low-viscosity state (of viscosity diverging at  $\phi_j(f_c = 0) = \phi_{\text{rcp}}$ ) to a high-viscosity state (of viscosity diverging at  $\phi_m$ ). If  $\phi_m < \phi < \phi_{\text{rcp}}$ , shear jamming is observed as no flow is possible without dilatancy for the frictional material at such value of  $\phi$ , whereas the frictionless material can flow. Explicit equations and a test of the model in its simplest form for our suspensions are given below and in Appendix F.

Experimental evidence for this macroscopic description of the shear-thickening transition has been provided by Guy

*et al.* [18]. They plotted the low-viscosity plateau (before shear thickening) and the high-viscosity plateau (after shear thickening) of a thickening granular suspension for different volume fractions. They showed that the lower plateau tends to diverge at  $\phi \simeq 0.64 = \phi_{\text{rcp}}$  corresponding to frictionless spheres, and that the higher plateau tends to diverge at the random loose packing  $\phi \simeq 0.55 = \phi_{\text{rlp}}$ , as expected for highly frictional spheres.

### C. Modelling of shear jamming in vibrated suspensions

In the Wyart and Cates [16] work, the variation of  $f_c$  with the shear stress  $\sigma$  comes from the existence of a short-range repulsive force  $F_r$  between the particles. At rest and at low applied shear stress, there is then no direct contact between the particles; at high shear stress, the hydrodynamic normal forces between the particles can overcome the repulsive force to create frictional contacts. An empirical function describing the fraction of contacts, consistent with the above description, is then

$$f_c = \exp(-(\sigma_r/\sigma)^\beta), \quad (4)$$

where  $\sigma_r$  is the typical repulsive stress to overcome and  $\beta \simeq 1$  is a constant parameter.  $\sigma_r$  was shown to be linked to the repulsive force  $F_r$  in numerical simulations [12] as

$$\sigma_r = 2.9 F_r / (3\pi d^2) \quad (5)$$

for suspensions of particles of diameter  $d$ . Obviously, it is of the order of the critical stress  $\sigma_c$  for shear thickening.

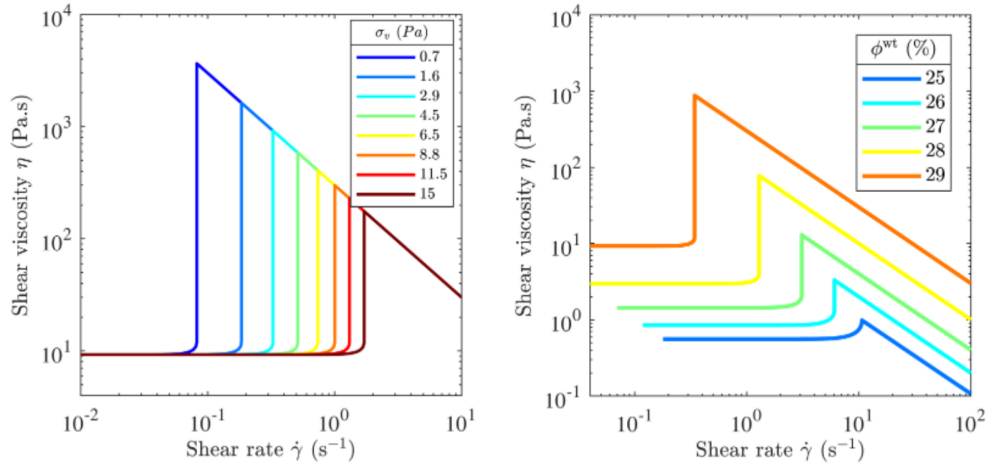
In our system, we have shown that there is no significant repulsion force. Vibrations have been shown, however, to act as an external source of energy that is dissipated through a constant diffusive motion of the particles [28]. The particle diffusion coefficient [28] has then been shown to be controlled by the kinetic energy density of vibrations  $\sigma_v = 1/2\rho_s A^2 (2\pi f)^2$ . Note, however, that Gaudel *et al.* [28] have studied this diffusive behavior only in the regime where the fluidized suspension viscosity also depends on  $\sigma_v$  as in [27], which is not the case in our experiments; we cannot rely here on the diffusion coefficient scaling with  $\sigma_v$  found by Gaudel *et al.* [28]. We can, nevertheless, consider that vibrations introduce an effective thermal-like repulsive force between the particles, which makes the particles frictionless as long as vibrations are efficient, as shown in Sec. III E.

This is reminiscent of the behavior of Brownian suspensions, which have been shown to display similar shear-thickening behavior as suspensions of repulsive particles, the Brownian force playing the role of an additional repulsive force [49]. In the absence of a repulsive force, Mari *et al.* [49] found that the critical stress  $\sigma_c$  of Brownian suspensions at shear thickening is

$$\sigma_c \simeq \frac{5k_B T}{a^3}, \quad (6)$$

with  $T$  being the temperature and  $a$  the particle radius. In a





**FIG. 13.** Prediction of the [16] model for the viscosity versus shear rate (see main text for the model parameters). Top: for  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  for the various  $\sigma_v$  investigated experimentally; bottom: for  $\sigma_v = 3$  Pa for the various  $\phi^{\text{wt}}$  investigated.

Brownian suspension, the density of energy injected by the thermal bath is  $\sim k_B T/a^3$ , which is close to  $\sigma_c$  for these suspensions. Identifying this density of energy and that injected by the vibrations, it thus seems natural to assume that the critical stress for shear thickening associated to vibrations is proportional to  $\sigma_v$ . This is precisely what we have observed experimentally ( $\sigma_c = 1.5\sigma_v$  in Fig. 7). Finally, it seems natural to use the approach of [16] described above to model our material shear-thickening, with Eq. (4) and a typical repulsive stress  $\sigma_r$  of the order of the critical stress  $\sigma_c$ , i.e.,

$$\sigma_r = \alpha\sigma_v, \quad (7)$$

where  $\alpha$  is a constant expected to be of order 1.

The model is detailed in Appendix F. We emphasize that the original model has to be adapted to describe the behavior in the jammed state, i.e., when the modelled jamming fraction  $\phi_j(f_c)$  is lower than the material volume fraction  $\phi$ . Here, since we work at imposed macroscopic shear rate, we have chosen to write the apparent behavior as  $\sigma \simeq \sigma_y$  in such cases, with the  $\sigma_y$  values found experimentally.

The model predictions are shown in Fig. 13 for  $\phi^{\text{wt}} = 0.29$  for the various  $\sigma_v$  investigated experimentally (as in Fig. 6), as well as for  $\sigma_v = 3$  Pa (corresponding to  $f = 20$  Hz and  $A = 500 \mu\text{m}$  for the 29 wt. % suspension) for the various  $\phi^{\text{wt}}$  investigated (as in Fig. 8). For  $\alpha = 6$  in Eq. (7), the predicted variations of the behavior with both  $\sigma_v$  and  $\phi^{\text{wt}}$  are fairly similar to those observed in Figs. 6 and 8. This shows the relevance of the proposed description of the impact of vibrations on the particles.

## V. CONCLUSIONS

We have studied dense granular suspensions at a high volume fraction, above the jamming volume fraction, but below the particle assembly random close packing. In the absence of vibrations, the suspensions have a solidlike behavior with a yield stress. Particles are here confined by the liquid interface and the yield stress is of the frictional origin. When vibrations are applied, the yield stress disappears to give rise

to a liquidlike pseudo-Newtonian behavior at low shear rate. As the shear rate is increased, we observe a shear-jamming transition, the apparent yield stress behavior is then recovered. We have shown that the observed shear-jamming transition can be tuned by changing the energy of vibrations injected into the system. In the framework of the Wyart and Cates [16] model, vibrations can, finally, be seen as introducing a thermal-like repulsive force, which yields a critical stress proportional to the vibration repulsive stress previously introduced by Hanotin *et al.* [26]. The vibrated suspensions then behave as frictionless suspensions at low shear rate, as shown with shear-reversal experiments, and the observed shear jamming can be interpreted as frictionless to frictional transition.

On the application side, vibrations are a promising route to unjam dense suspensions that are handled in the industry. This route is an alternative to macroscopic flow superposition [22,23]. By evidencing the quantitative impact of the vibration stress  $\sigma_v$  on the shear jamming transition, we provide the key elements to optimize the process and maximize the range of flowability.

On the fundamental side, vibrations seem to offer a promising way to investigate experimentally frictionless suspensions. There is, finally, an interesting analogy between the vibration stress in vibrated non-Brownian suspension and the Brownian stress in nonvibrated Brownian suspensions, which would deserve an in-depth investigation, in particular, at the microscopic level.

## ACKNOWLEDGMENTS

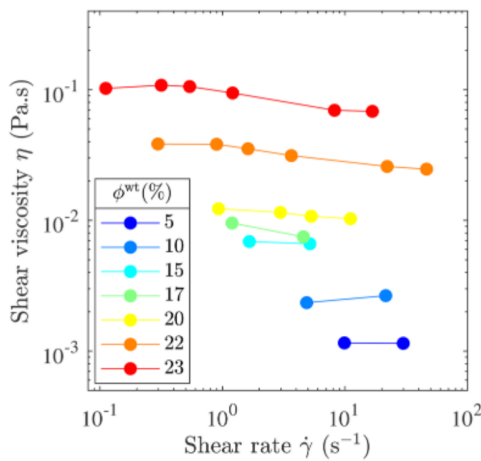
We acknowledge support from the Agence Nationale de la Recherche (project Fluididense No. ANR-17-CE07-0040); from Institut Pierre-Gilles de Gennes (laboratoire d'excellence, "Investissements d'avenir" program Nos. ANR-10-IDEX-0001-02 PSL, ANR-10-LABX-31, and ANR-10-EQPX-34); and from the European Funds Interreg VA GR (PowderReg project).

## APPENDIX A: VISCOSITY AT LOW MASS FRACTION

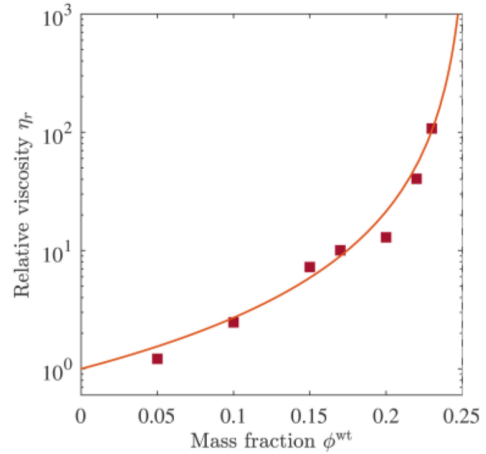
In order to estimate the jamming fraction  $\phi_m^{\text{wt}}$  of the—frictional—suspensions, we have studied their flow behavior in their liquidlike regime ( $0 < \phi^{\text{wt}} < 0.24$ ) with a Kinexus Ultra+ rheometer (Netzsch). Given the low-viscosity of the suspending fluid ( $\eta_0 = 9.5 \times 10^{-4}$  Pa s at 25 °C), and thus of the suspension at low volume fraction, we have used a thin-gap bob-in-cup geometry (of inner radius 12.5 mm, outer radius 13.75 mm, and height 37.5 mm) in these experiments, with serrated walls to avoid wall slip. Indeed, with the wide-gap vane-in-cup geometry used in the vibration experiments, momentum diffusion is long (of order 100 s) at such viscosities and sedimentation might occur during the experiment. Constant stresses were applied until a steady state was reached; the time of the experiments was chosen as short as possible to avoid possible sedimentation. Data were collected only at low shear stress  $\lesssim 0.1$  Pa at the lowest studied particle fractions; indeed, inertial effects occurred at higher stresses at such low viscosities, leading to an apparent increase of the shear stress with the shear rate. Due to the limit of the rheometer, only data points for  $\sigma \geq 0.01$  Pa were recorded. The range in which the suspensions can be characterized at low volume fraction is thus very limited. The steady-state flow curves obtained within these conditions are shown in Fig. 14.

As expected, the overall viscosity increases with the mass fraction  $\phi^{\text{wt}}$ . At low  $\phi^{\text{wt}}$ , the behavior is consistent with a pseudo-Newtonian behavior. The sharp increase of the viscosity around 20 wt. % is accompanied with a transition to a shear-thinning behavior. Shear thinning is commonly observed at high volume fraction in concentrated suspensions and is likely linked to non-Coulomb or velocity-weakening friction coefficient between the particles [39,50,51]. The suspension relative viscosity  $\eta_r(\phi^{\text{wt}}) = \eta(\phi^{\text{wt}})/\eta_0$  is finally extracted from the data measured at a constant stress  $\sigma = 0.01$  Pa. The results are shown in Fig. 15.

In order to estimate the jamming fraction of the suspension, we then fit the relative viscosity to a Maron–Pierce law  $\eta_r = (1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_m^{\text{wt}})^{-2}$ . Best fit is obtained for  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.255$ ; since, the 24 wt. % suspension has a yield stress, this is of



**FIG. 14.** Flow curves of the silica suspensions for mass fractions  $0 < \phi^{\text{wt}} < 0.24$  (see legend).



**FIG. 15.** Relative viscosity  $\eta_r$  estimated at  $\sigma = 0.01$  Pa as a function of the silica particle mass fraction  $\phi^{\text{wt}}$  (empty squares). The solid line is a fit of the data to the Maron–Pierce law  $\eta_r = (1 - \phi^{\text{wt}}/\phi_m^{\text{wt}})^{-2}$  with  $\phi_m^{\text{wt}} = 0.255$ .

course only a rough estimate of the true jamming mass fraction of the frictional suspension. This estimate is consistent with the onset of granulation observed for nonvibrated suspensions in Sec. II A.

## APPENDIX B: TORQUE VERSUS HEIGHT AND YIELD STRESS ORIGIN

As shown by Ancy and Coussot [41], for fluid-saturated nonbuoyant frictional suspensions, the torque resisting slow flows in a Couette geometry is a quadratic function of the immersed height  $H$  of the rotating tool. This contrasts with the linear function of  $H$  found in the viscous regime of suspensions.

This is easily explained by recalling that the torque  $T$  along the inner cylinder or the vane tool of radius  $R$  and immersed height  $H$  can be computed as

$$T = 2\pi R^2 \int_{z=0}^{z=H} \sigma(z) dz \quad (\text{B1})$$

and by considering the dependence with depth  $z$  of the shear stress  $\sigma(z)$ .

For most materials,  $\sigma(z) = \sigma_0$  does not depend on  $z$  due to translational invariance and to independence of  $\sigma$  with the ( $z$ -dependent) pressure. This then leads to  $T = 2\pi R^2 H \sigma_0$ , i.e.,  $T \propto H$ . For frictional materials (dry granular materials and granular suspensions), however, since  $\sigma(z) = \mu p(z)$ , where  $\mu$  is the material friction coefficient and  $p(z)$  is the particle pressure,  $\sigma(z)$  might depend on  $z$ . This is the case for dry granular materials with a free top surface and for fluid-saturated nonbuoyant granular suspensions. In this latter case, in the absence of a Janssen effect [35], the particle pressure is  $p(z) = \phi \Delta \rho g z$ , which leads to a torque  $T = \pi R^2 \mu \phi \Delta \rho g H^2$ , i.e.,  $T \propto H^2$ .

Nevertheless, even for a frictional material, one can find that  $T \propto H$ ; this is found when a confining pressure larger than the gravity stress is directly applied on the grains, e.g., by a grid as in [7] or by the fluid interface surface tension

when the particles protrude from the liquid/air interface due to dilation [5,42]. In that case, the total particle pressure applied on the granular assembly can be decomposed as  $p(z) = p_{\text{cap}} + p_{\text{grav}}(z)$  where the  $z$ -independent pressure due to capillarity at the top interface is  $p_{\text{cap}}$  and the  $z$ -dependent pressure due to gravity is  $p_{\text{grav}}$ . If  $p_{\text{cap}} \gg p_{\text{grav}}$ , the material is characterized by a  $z$ -independent shear stress  $\sigma_0 = \mu p_{\text{cap}}$  and a torque  $T \propto H$  is recovered.

For plastic flows with a vane tool, where flows are localized close to the tool, the bottom effects can easily be taken into account as

$$T = 2\pi \int_{r=0}^{r=R} \sigma'(z=H)r^2 dr = \frac{2\pi R^3}{3} \sigma'(z=H). \quad (\text{B2})$$

In this equation,  $\sigma'(z=H)$  is the shear stress exerted at the bottom, that is, the  $\sigma_{\theta z}$  component of the shear stress tensor, whereas the shear stress  $\sigma$  exerted on the side of the vane tool is the component  $\sigma_{r\theta}$ . It results in an additional constant contribution to the torque  $T$  in the case of  $z$ -independent stresses and in a  $T \propto H$  contribution in the case of gravity-induced  $z$ -dependent stresses.

In order to be more quantitative, the anisotropy of particle normal stresses can be considered. Denoting 1 the flow direction, 2 the gradient direction, and 3 the vorticity direction in a simple shear flow, it is known in dense suspensions [3] that the particle normal stresses are  $\sigma_{11}^p \simeq \sigma_{22}^p$  and  $\sigma_{33}^p \simeq 0.5\sigma_{22}^p$ ; similar features are expected for granular materials. In the vane-in-cup geometry, the vorticity direction is that of gravity, i.e.,  $\sigma_{33}^p = \phi \Delta \rho g z$ , and we measure the lateral shear stress  $\sigma = \mu \sigma_{22}^p \simeq 2\mu \sigma_{33}^p$ . At the bottom, the shear stress is  $\sigma' = \mu \sigma_{33}^p$ , that is,  $\sigma' \simeq \sigma/2$ . In the following, we will finally compare quasistatic measurements of the torque  $T$  performed on granular suspensions to the two following expressions:

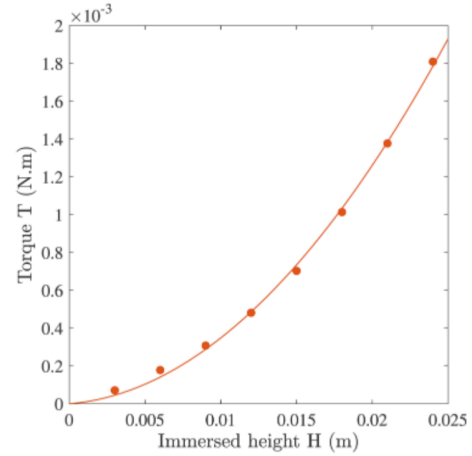
$$T = \pi R^2 \phi K \mu \Delta \rho g \left( H^2 + \frac{2RH}{3K} \right), \quad (\text{B3})$$

when the particle pressure is set by gravity, with  $K = \sigma_{22}^p / \sigma_{33}^p \simeq 2$ , and

$$T = 2\pi R^2 \mu p_{\text{cap}} \left( H + \frac{R}{6} \right), \quad (\text{B4})$$

when the capillary pressure  $p_{\text{cap}}$  is dominant (since  $p_{\text{cap}}$  is only an estimate of the particle normal stresses, it is not relevant to include  $K$  in this last expression).

In order to show the relevance of this method to characterize the  $z$ -dependence of stresses and determine the value of  $\mu$ , we first show steady-state measurements performed on a dry granular material for various immersed heights  $H$ . The material is composed of monodisperse glass beads of diameter  $125 < d < 150 \mu\text{m}$ . The granular material is poured in the cup (preparation does not impact steady-state flow), and the vane tool is immersed into the material at various heights  $H$ . The flow resistance is measured at steady-state in the quasistatic regime, for a macroscopic shear rate of  $0.1 \text{ s}^{-1}$ . The results are shown in Fig. 16. As expected, the data follow a

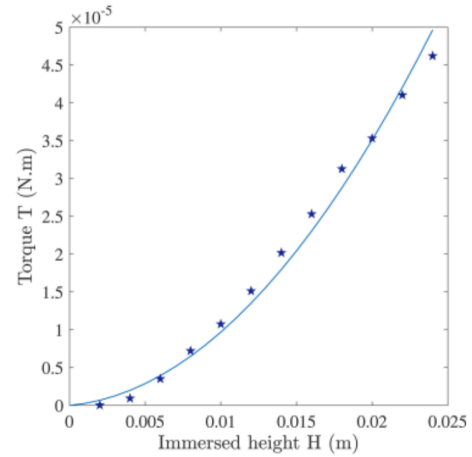


**FIG. 16.** Torque versus immersed height for a dry granular material made up of monodisperse glass beads. The line is a fit of the data to Eq. (B3), with  $\mu = 0.62$ .

quadratic increase with  $H$ , and are well fitted to Eq. (B3). With  $\Delta \rho \simeq 2500 \text{ kg.m}^{-3}$  and an expected  $\phi \simeq 0.6$  at the critical state [9], this yields  $\mu \simeq 0.6$ , which is in reasonable agreement with values reported at low inertial number for glass beads [9].

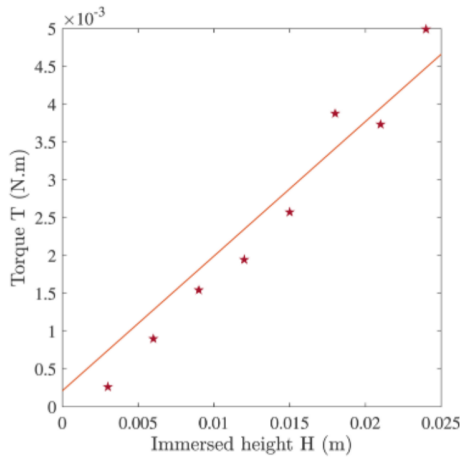
In the following, we show steady-state measurements performed on settled silica suspensions, for various immersed heights  $H$ . A 22 wt. % suspension is prepared in the cup and left at rest during 1 day to let full sedimentation occur. The vane tool is then immersed at various heights  $H$  into the sediment, on top of which the supernatant is kept, and the flow resistance is measured at a steady state in the quasistatic regime, for a macroscopic shear rate of  $0.1 \text{ s}^{-1}$ . The results are shown in Fig. 17.

As for the dry granular material, the torque data follow a quadratic increase with  $H$ ; much lower values of  $T$  are found, however, due to the presence of water and of buoyancy. This shows that there is no significant attraction between the silica particles and that the particles mainly interact through frictional forces. In the absence of another confining pressure



**FIG. 17.** Torque versus immersed height for a settled suspension of silica particles. The line is a fit of the data to Eq. (B3), with  $\mu = 0.15$ .





**FIG. 18.** Torque versus immersed height for a 29 wt. % suspension of silica particles. The line is a fit of the data to Eq. (B4), with  $\mu = 0.12$ .

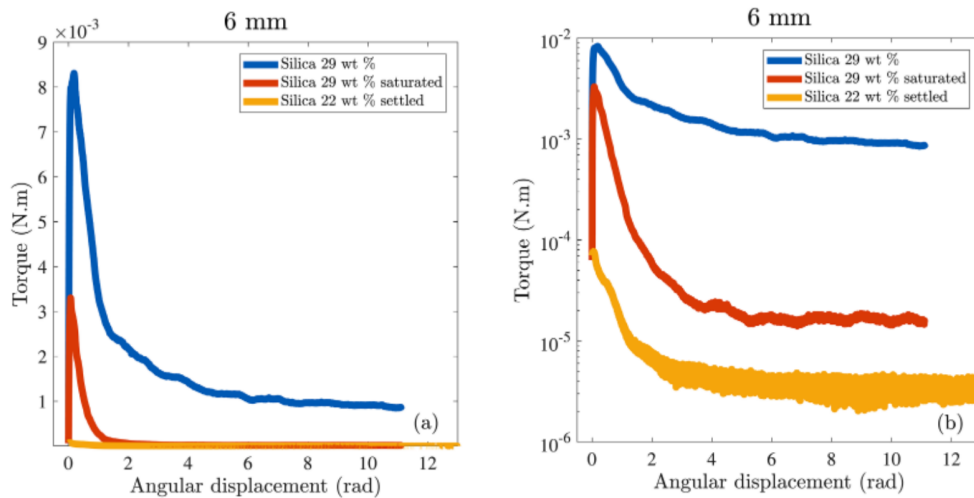
than gravity, the resulting resistance to flow is small, yielding an average shear stress of order 10 Pa for  $H = 21$  mm. The data are well fitted to Eq. (B3). With  $\Delta\rho \simeq 300 \text{ kg.m}^{-3}$  and  $\phi \simeq 0.56$ , as estimated in Sec. II A, this yields  $\mu = 0.15$ , which seems to be a reasonable value and is consistent with the order of magnitude found below for the case of dominant capillary pressure.

We now show in Fig. 18 the results obtained when studying a 29 wt. % suspension prepared as explained in Sec. II A. We first note that the torque mostly evolves within a few units of strain when the material is sheared, as expected for a dilatant material (an example is shown in Fig. 19). However, in addition, an apparent long term decrease of the stress in time was observed and attributed to the progressive digging of the free surface due to the plastic behavior of this material. We thus chose to report the torque values reached for a constant shear strain  $\gamma = 10$ , which should provide a good estimate of the steady-state behavior. The values reported here are thus higher than those found with the shear rate ramp in Sec. III A.

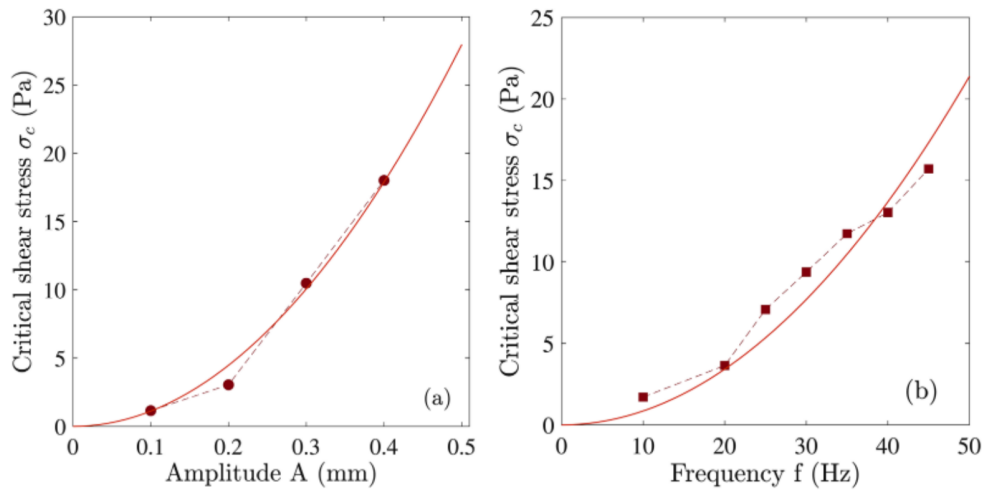
Initially, the suspension is homogeneous. Upon shear, shear banding is expected and clearly observed. The critical volume fraction of the granular material has been estimated as 24 wt. %; so dilation is expected both in the radial and vertical directions. This is obvious from the aspect of the free surface, from which particles are observed to protrude. This protrusion is expected to provide a maximum confining capillary pressure  $p_{\text{cap}} \simeq \Gamma_t/r_p \simeq 5000$  Pa, which is much higher than the gravity stress for the  $H$  investigated. Consistently, the resulting shear stresses are  $\sim 100$  times higher than when gravity is dominant, and we observe in Fig. 18 an affine increase of the torque  $T$  with  $H$ , which is well fitted to Eq. (B4) with a friction coefficient  $\mu = 0.12$ . This is consistent with the value of  $\mu$  found above for dominant gravity. Note however that a truly quantitative determinations of  $\mu$  cannot be expected here given the gross approximation on  $p_{\text{cap}}$  and on the effective density of our particles.

To further evidence the role of the capillary forces at the free surface, we have performed additional experiments in which we have prepared a 29 wt. % suspension as above, immersed the vane tool at various heights  $H$ , and added water on top of the material to suppress capillary forces before rotating the vane tool. In Fig. 19, we plot the torque versus angular displacement measured in these conditions for a small height  $H = 6$  mm and compare the results to those observed for the sediment and for the 29 wt. % suspension with no added water.

We observe a long transient, with two main features: (i) the torque tends to a steady-state value, which is much lower than for the suspension with no added water, and which is close to that observed for the sediment and (ii) there is an initial peak of same order of magnitude as for the suspension with no added water. The peak is characteristic of the initial dilation and is hard to interpret quantitatively; its large value is probably due to the large initial internal stresses due to the loading of the suspension. The long term decrease to a very low value confirms the absence of significant cohesive forces in the prepared 29 wt. % suspension and is due to the dilation



**FIG. 19.** Torque versus angular displacement of the vane tool measured at a macroscopic shear rate of  $0.1 \text{ s}^{-1}$  for an immersed height  $H = 6$  mm in three different materials (see legend): a settled 22 wt. % suspension, a 29 wt. % suspension, and a 29 wt. % suspension on top of which water is added (left: linear scale, right: semilogarithmic scale).



**FIG. 20.** Critical shear stress  $\sigma_c$  of a 29 wt. % silica suspension: (a) as a function of the vibration amplitude  $A$  for a given value of the frequency  $f = 50$  Hz and (b) as a function of the vibration frequency  $f$  for a given value of the amplitude  $A = 500 \mu\text{m}$ . The solid lines are fits of the data to quadratic forms.

that is now allowed in the vertical direction with a vertical stress scale set by gravity instead of capillarity.

Data are shown here at low  $H$  only. At larger values, there are very long transients, which point to the persistence of internal stresses and to the difficulty to dilate in the vertical direction once these very dense suspensions have been prepared. We did not study this point in more detail.

Let us finally note that, within our experimental conditions, in the frictional regime, the bottom contribution is of order 5%. For viscous flows, this bottom contribution is smaller. For the sake of simplicity, we did not take this contribution into account when computing stresses in Sec. III, as it would require a regime-dependent correction.

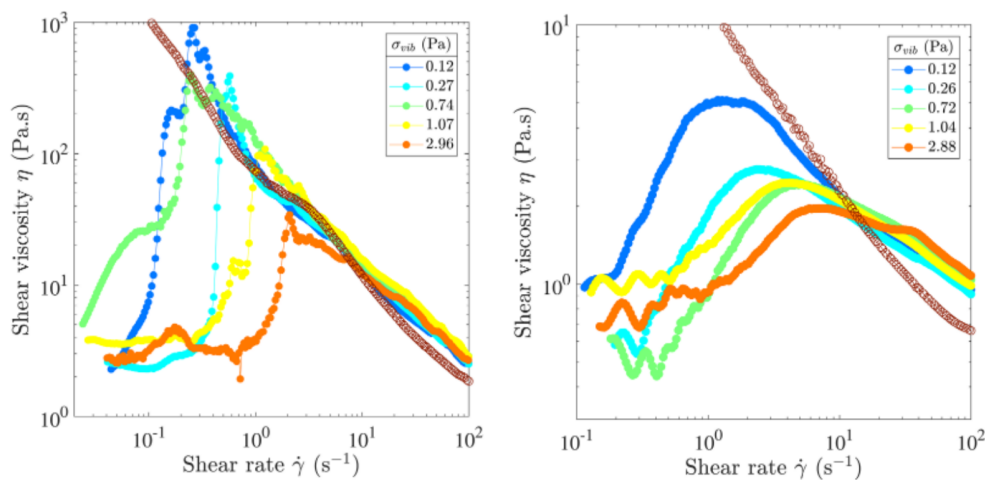
#### APPENDIX C: SCALING OF $\dot{\gamma}_c$ AND $\sigma_c$ WITH $A$ AND $f$

In Sec. III C, we have shown that there is a fairly linear correlation between  $\dot{\gamma}_c$ ,  $\sigma_c$ , and the vibration stress

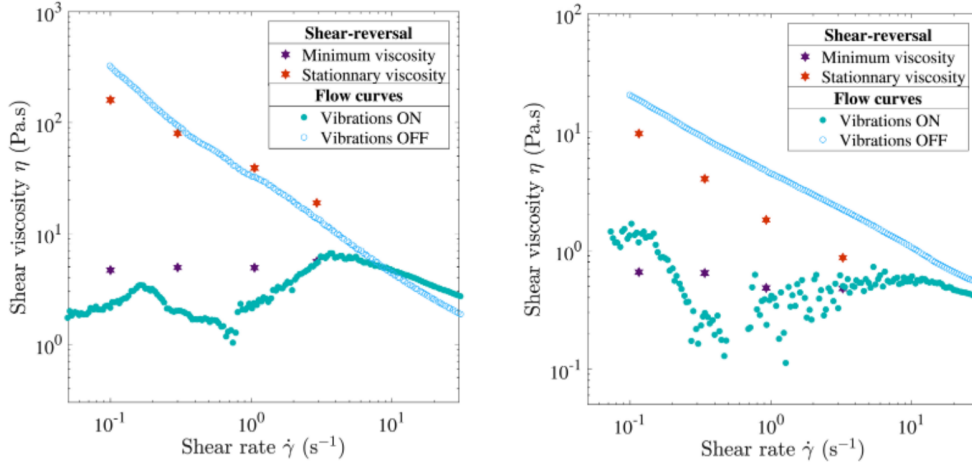
$\sigma_v = 1/2\rho_s A^2(2\pi f)^2$ . In order to better show their independent scaling with  $A$  and  $f$ , in Figs. 20(a) and 20(b), we plot  $\sigma_c$  versus  $A$  for a given value of  $f$ , and versus  $f$  for a given value of  $A$  ( $\dot{\gamma}_c$  values follow by dividing  $\sigma_c$  by the average viscosity plateau value 10 Pa s). All data are consistent with a  $A^2$  and a  $f^2$  dependence.

#### APPENDIX D: FLOW CURVES OF A 28 AND A 26 WT. % SUSPENSION WITH AND WITHOUT VIBRATIONS

Figure 21 displays the flow curves of a 28 and a 26 wt. % suspension for various values of the amplitude  $A$  and frequency  $f$  of vibrations. The 28 wt. % suspension shows the same behavior as that observed for the 29 wt. % suspension and discussed in detail in Sec. III C. For the 26 wt. % suspension, sharp but continuous shear thickening is observed; the transition is shifted to higher  $\dot{\gamma}_c$  when increasing  $\sigma_v$ , as observed for the other particle fractions.



**FIG. 21.** Flow curves of a 28 wt. % (top) and a 26 wt. % (bottom) silica suspension: shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for different values of vibration stress  $\sigma_v$ . Empty symbols correspond to the nonvibrated samples.



**FIG. 22.** Shear viscosity versus shear rate for a 27 wt. % (top) and a 24 wt. % (bottom) suspension. Stars: steady-state and minimum viscosity obtained from shear-reversal experiments. Circles: flow curves obtained from a shear rate ramp with or without vibrations (here,  $\sigma_v = 3$  Pa).

### APPENDIX E: SHEAR REVERSAL VERSUS VIBRATIONS FOR A 27 AND A 24 WT. % SUSPENSION

The minimum viscosity  $\eta_{\min}$  achieved during the shear-reversal experiments is plotted versus the applied shear stress in Fig. 22 for the 27 wt. % and the 24 wt. % suspensions, together with the steady state viscosity; the flow curves obtained from a shear rate ramp with or without vibrations are also displayed. The same behavior is observed as for the 26 wt. % suspension (Fig. 11), which is discussed in detail in Sec. III E. The main result is that the viscosity of the vibrated suspension at low shear rate is similar to the minimum viscosity in the shear-reversal experiments. This strongly suggests that vibrated suspensions are equivalent to suspensions of frictionless particles.

### APPENDIX F: PREDICTION OF THE WYART AND CATES [16] MODEL

The Wyart and Cates [16] model for non-Brownian frictional spheres considers that interparticle contacts are either lubricated or frictional, and that the jamming volume fraction  $\phi_j(f_c)$  of a suspension is a function of the fraction  $f_c$  of frictional contacts. Noting that in the absence of contacts ( $f_c = 0$ ),  $\phi_j$  should be equal to the random close packing  $\phi_{\text{rcp}}$  and that when all contacts are frictional ( $f_c = 1$ ),  $\phi_j = \phi_m$  (where  $\phi_m$  depends on the value of the interparticle friction coefficient  $\mu_p$ ), a simple interpolation function was proposed,

$$\phi_j(f_c) = f_c \phi_m + (1 - f_c) \phi_{\text{rcp}}. \quad (\text{F1})$$

For suspensions of volume fraction  $\phi < \phi_j(f_c)$ , Eq. (F1) is used in the macroscopic description of the viscous behavior of the material

$$\sigma = \eta_f \eta_r(\phi / \phi_j(f_c)) \dot{\gamma}, \quad (\text{F2})$$

with  $\eta_f$  the interstitial fluid viscosity. The relative viscosity

$\eta_r$  of the suspension is given by

$$\eta_r(\phi / \phi_j(f_c)) = \frac{C}{(1 - \phi / \phi_j(f_c))^2}, \quad (\text{F3})$$

where  $C$  is a free parameter;  $C \sim 1$  is usually reported for spheres [3,12].

The fraction of frictional contacts is expressed as

$$f_c = \exp(-(\sigma_r / \sigma)^\beta), \quad (\text{F4})$$

where  $\sigma_r$  is the typical repulsive stress to overcome to form contacts and is of the order of the critical stress  $\sigma_c$  for shear-thickening. In Eq. (F4),  $\beta$  is a constant parameter;  $\beta = 1$  was found in simulations by Singh *et al.* [12] whereas  $\beta = 0.85$  is reported in experiments by Guy *et al.* [18]. Altogether, these equations are used to model the steady-state shear-thickening behavior.

To illustrate this model on our systems, as discussed in Sec. IV C, we use

$$\sigma_r = \alpha \sigma_v. \quad (\text{F5})$$

We use Eqs. (F1)–(F4) with  $\beta = 1$ , while noting that  $\phi / \phi_j(f_c) = \phi^{\text{wt}} / \phi_j^{\text{wt}}(f_c)$ ,  $\phi_j^{\text{wt}}(0) = \phi_{\text{rcp}}^{\text{wt}} = 0.303$  and  $\phi_j^{\text{wt}}(1) = \phi_m^{\text{wt}} = 0.24$ . We use  $C = 18$  as found in Fig. 9.

Since we have studied a suspension of volume fraction  $\phi_j(1) < \phi < \phi_j(0)$ , Eq. (F2) and (F3) can be used only as long as  $\phi < \phi_j(f_c)$ . For  $\phi_j(f_c) \leq \phi$ , we can either consider the material as jammed or write the apparent behavior as  $\sigma \simeq \sigma_y$  as explained and observed for the shear-jammed material. Since we work at imposed macroscopic shear rate, we have chosen this last option with the  $\sigma_y$  values found experimentally. Of course, this works only if the critical stress for shear jamming is lower than  $\sigma_y$ , which is the case in all of our experiments.



The model predictions are plotted and discussed in Sec. IV C. Fair agreement with the experimental data is found when  $\alpha = 6$  is used in Eq. (F5).

## REFERENCES

- [1] Toussaint, F., C. Roy, and P.-H. Jézéquel, “Reducing shear thickening of cement-based suspensions,” *Rheol. Acta* **48**, 883–895 (2009).
- [2] Blanco, E., D. J. Hodgson, M. Hermes, R. Besseling, G. L. Hunter, P. M. Chaikin, M. E. Cates, I. Van Damme, and W. C. Poon, “Conching chocolate is a prototypical transition from frictionally jammed solid to flowable suspension with maximal solid content,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **116**, 10303–10308 (2019).
- [3] Guazzelli, E., and O. Pouliquen, “Rheology of dense granular suspensions,” *J. Fluid Mech.* **852**, P1 (2018).
- [4] Morris, J. F., “Shear thickening of concentrated suspensions: Recent developments and relation to other phenomena,” *Annu. Rev. Fluid Mech.* **52**, 121–144 (2020).
- [5] Hodgson, D. J. M., M. Hermes, E. Blanco, and W. C. K. Poon, “Granulation and suspension rheology: A unified treatment,” [arXiv:1907.10980](https://arxiv.org/abs/1907.10980) [cond-mat] (2019).
- [6] Forterre, Y., and O. Pouliquen, “Flows of dense granular media,” *Annu. Rev. Fluid Mech.* **40**, 1–24 (2008).
- [7] Boyer, F., E. Guazzelli, and O. Pouliquen, “Unifying suspension and granular rheology,” *Phys. Rev. Lett.* **107**, 188301 (2011).
- [8] Schofield, A., and P. Wroth, *Critical State Soil Mechanics* (McGraw-Hill, London, 1968).
- [9] Andreotti, B., Y. Forterre, and O. Pouliquen, *Granular Media: Between Fluid and Solid* (Cambridge University, Cambridge, 2013).
- [10] Gallier, S., E. Lemaire, F. Peters, and L. Lobry, “Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles,” *J. Fluid Mech.* **757**, 514–549 (2014).
- [11] Chèvremont, W., B. Chareyre, and H. Bodiguel, “Quantitative study of the rheology of frictional suspensions: Influence of friction coefficient in a large range of viscous numbers,” *Phys. Rev. Fluids* **4**, 064302 (2019).
- [12] Singh, A., R. Mari, M. M. Denn, and J. F. Morris, “A constitutive model for simple shear of dense frictional suspensions,” *J. Rheol.* **62**, 457–468 (2018).
- [13] Peyneau, P.-E., and J.-N. Roux, “Frictionless bead packs have macroscopic friction, but no dilatancy,” *Phys. Rev. E* **78**, 011307 (2008).
- [14] Lespiat, R., S. Cohen-Addad, and R. Höhler, “Jamming and flow of random-close-packed spherical bubbles: An analogy with granular materials,” *Phys. Rev. Lett.* **106**, 148302 (2011).
- [15] Fernandez, N., R. Mani, D. Rinaldi, D. Kadau, M. Mosquet, H. Lombois-Burger, J. Cayer-Barrioz, H. J. Herrmann, N. D. Spencer, and L. Isa, “Microscopic mechanism for shear thickening of non-Brownian suspensions,” *Phys. Rev. Lett.* **111**, 108301 (2013).
- [16] Wyart, M., and M. Cates, “Discontinuous shear thickening without inertia in dense non-Brownian suspensions,” *Phys. Rev. Lett.* **112**, 098302 (2014).
- [17] Mari, R., R. Seto, J. F. Morris, and M. M. Denn, “Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-Brownian suspensions,” *J. Rheol.* **58**, 1693–1724 (2014).
- [18] Guy, B. M., M. Hermes, and W. C. K. Poon, “A unified description of the rheology of hard-particle suspensions,” *Phys. Rev. Lett.* **115**, 088304 (2015).
- [19] Comtet, J., G. Chatté, A. Niguès, L. Bocquet, A. Siria, and A. Colin, “Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous shear thickening transition in non-colloidal suspensions,” *Nat. Commun.* **8**, 15633 (2017).
- [20] Bossis, G., P. Boustingorry, Y. Grasselli, A. Meunier, R. Morini, A. Zubarev, and O. Volkova, “Discontinuous shear thickening in the presence of polymers adsorbed on the surface of calcium carbonate particles,” *Rheol. Acta* **56**, 415–430 (2017).
- [21] Lin, N. Y., B. M. Guy, M. Hermes, C. Ness, J. Sun, W. C. Poon, and I. Cohen, “Hydrodynamic and contact contributions to continuous shear thickening in colloidal suspensions,” *Phys. Rev. Lett.* **115**, 228304 (2015).
- [22] Lin, N. Y., C. Ness, M. E. Cates, J. Sun, and I. Cohen, “Tunable shear thickening in suspensions,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113**, 10774–10778 (2016).
- [23] Ness, C., R. Mari, and M. E. Cates, “Shaken and stirred: Random organization reduces viscosity and dissipation in granular suspensions,” *Sci. Adv.* **4**, eaar3296 (2018).
- [24] Niu, R., M. Ramaswamy, C. Ness, A. Shetty, and I. Cohen, “Tunable solidification of cornstarch under impact: How to make someone walking on cornstarch sink,” *Sci. Adv.* **6**, eaay6661 (2020).
- [25] Hanotin, C., S. Kiesgen de Richter, P. Marchal, L. J. Michot, and C. Baravian, “Vibration-induced liquefaction of granular suspensions,” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 198301 (2012).
- [26] Hanotin, C., S. Kiesgen de Richter, L. J. Michot, and P. Marchal, “Viscoelasticity of vibrated granular suspensions,” *J. Rheol.* **59**, 253–273 (2015).
- [27] Hanotin, C., P. Marchal, L. J. Michot, C. Baravian, and S. Kiesgen de Richter, “Dynamics of vibrated granular suspensions probed by mechanical spectroscopy and diffusing wave spectroscopy measurements,” *Soft Matter* **9**, 9352–9360 (2013).
- [28] Gaudel, N., S. Kiesgen de Richter, N. Louvet, M. Jenny, and S. Skali-Lami, “Bulk and local rheology in a dense and vibrated granular suspension,” *Phys. Rev. E* **96**, 062905 (2017).
- [29] Singh, A., C. Ness, R. Seto, J. J. de Pablo, and H. M. Jaeger, “Shear thickening and jamming of dense suspensions: The ‘roll’ of friction,” *Phys. Rev. Lett.* **124**, 248005 (2020).
- [30] Laurens, J., J. Jolly, G. Ovarlez, H. Fay, T. Chaussée, and P. Sotta, “Competitive adsorption between a polymer and solvents onto silica,” *Langmuir* **36**, 7669–7680 (2020).
- [31] Fall, A., F. Bertrand, D. Hautemayou, C. Mezière, P. Moucheron, A. Lemaître, and G. Ovarlez, “Macroscopic discontinuous shear thickening versus local shear jamming in cornstarch,” *Phys. Rev. Lett.* **114**, 098301 (2015).
- [32] Estrada, N., E. Azéma, F. Radjai, and A. Taboada, “Identification of rolling resistance as a shape parameter in sheared granular media,” *Phys. Rev. E* **84**, 011306 (2011).
- [33] Estrada, N., A. Taboada, and F. Radjai, “Shear strength and force transmission in granular media with rolling resistance,” *Phys. Rev. E* **78**, 021301 (2008).
- [34] Marchal, P., N. Smirani, and L. Choplin, “Rheology of dense-phase vibrated powders and molecular analogies,” *J. Rheol.* **53**, 1–29 (2009).
- [35] Gutam, K. J., V. Mehandia, and P. R. Nott, “Rheometry of granular materials in cylindrical Couette cells: Anomalous stress caused by gravity and shear,” *Phys. Fluids* **25**, 070602 (2013).
- [36] Aït-Kadi, A., P. Marchal, L. Choplin, A.-S. Chrissemant, and M. Bousmina, “Quantitative analysis of mixer-type rheometers using the Couette analogy,” *Can. J. Chem. Eng.* **80**, 1166–1174 (2002).
- [37] Da Cruz, F., F. Chevoir, D. Bonn, and P. Coussot, “Viscosity bifurcation in granular materials, foams, and emulsions,” *Phys. Rev. E* **66**, 051305 (2002).
- [38] Peters, F., G. Ghigliotti, S. Gallier, F. Blanc, E. Lemaire, and L. Lobry, “Rheology of non-Brownian suspensions of rough frictional particles under shear reversal: A numerical study,” *J. Rheol.* **60**, 715–732 (2016).



# Bibliographie

- [1] Le pneu cet inconnu - Les matériaux | Michelin Tout sur le pneu, . URL <https://toutsurlepneu.michelin.com/le-pneu-cet-inconnu-les-materiaux>.
- [2] Blair lab website, . URL <https://blairlab.georgetown.edu/shearthickening.html>.
- [3] Silica, . URL <https://www.solvay.fr/silica>.
- [4] C. Ancey and P. Coussot. Transition from frictional to viscous regime for granular suspensions. *Comptes Rendus de l'Academie des Sciences Series IIB Mechanics Physics Astronomy*, 5(327) :515–522, 1999.
- [5] B. Andreotti, Y. Forterre, and O. Pouliquen. *Granular media : between fluid and solid*. Cambridge University Press, 2013.
- [6] J. Archard. Elastic deformation and the laws of friction. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 243(1233) :190–205, 1957.
- [7] R. A. Bagnold. Experiments on a gravity-free dispersion of large solid spheres in a newtonian fluid under shear. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 225(1160) :49–63, 1954.
- [8] H. A. Barnes, J. F. Hutton, and K. Walters. *An introduction to rheology*, volume 3. Elsevier, 1989.
- [9] G. Batchelor and J.-T. Green. The hydrodynamic interaction of two small freely-moving spheres in a linear flow field. *Journal of Fluid Mechanics*, 56(2) :375–400, 1972.
- [10] S. T. Beckett. *Industrial chocolate manufacture and use*. John Wiley & Sons, 2011.
- [11] E. Blanco, D. J. Hodgson, M. Hermes, R. Besseling, G. L. Hunter, P. M. Chaikin, M. E. Cates, I. Van Damme, and W. C. Poon. Conching chocolate is a prototypical transition from frictionally jammed solid to flowable suspension with maximal solid content. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 116(21) :10303–10308, 2019.
- [12] G. Bossis, P. Boustingorry, Y. Grasselli, A. Meunier, R. Morini, A. Zubarev, and O. Volkova. Discontinuous shear thickening in the presence of polymers adsorbed on the surface of calcium carbonate particles. *Rheologica Acta*, 56(5) :415–430, 2017.

- [13] F. Boyer, E. Guazzelli, and O. Pouliquen. Unifying Suspension and Granular Rheology. *Physical Review Letters*, 107(18) :188301, 2011.
- [14] J. F. Brady and G. Bossis. Stokesian dynamics. *Annual review of fluid mechanics*, 20(1) : 111–157, 1988.
- [15] E. Brown and H. M. Jaeger. Dynamic Jamming Point for Shear Thickening Suspensions. *Physical Review Letters*, 103(8) :086001, 2009.
- [16] E. Brown and H. M. Jaeger. The role of dilation and confining stresses in shear thickening of dense suspensions. *Journal of Rheology*, 56(4) :875–923, July 2012. ISSN 0148-6055, 1520-8516. doi : 10.1122/1.4709423. URL <http://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.4709423>.
- [17] E. Brown and H. M. Jaeger. Shear thickening in concentrated suspensions : phenomenology, mechanisms, and relations to jamming. *Reports on Progress in Physics*, 77(4) : 046602, 2014.
- [18] E. Brown, N. A. Forman, C. S. Orellana, H. Zhang, B. W. Maynor, D. E. Betts, J. M. DeSimone, and H. M. Jaeger. Generality of shear thickening in suspensions. *Nature Materials*, 9(3) :220–224, 2010.
- [19] E. Brown, H. Zhang, N. A. Forman, B. W. Maynor, D. E. Betts, J. M. DeSimone, and H. M. Jaeger. Shear thickening and jamming in densely packed suspensions of different particle shapes. *Phys. Rev. E*, 84 :031408, Sep 2011. doi : 10.1103/PhysRevE.84.031408. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.84.031408>.
- [20] M. Cates, M. Haw, and C. Holmes. Dilatancy, jamming, and the physics of granulation. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17(24) :S2517, 2005.
- [21] M. E. Cates and M. Wyart. Granulation and bistability in non-Brownian suspensions. *Rheologica Acta*, 53(10-11) :755–764, Nov. 2014. ISSN 0035-4511, 1435-1528. doi : 10.1007/s00397-014-0795-x. URL <http://link.springer.com/10.1007/s00397-014-0795-x>.
- [22] M. E. Cates, J. P. Wittmer, J.-P. Bouchaud, and P. Claudin. Jamming, Force Chains, and Fragile Matter. *Physical Review Letters*, 81(9) :1841–1844, Aug. 1998. ISSN 0031-9007, 1079-7114. doi : 10.1103/PhysRevLett.81.1841. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.81.1841>.
- [23] B. Cazacliu and N. Roquet. Concrete mixing kinetics by means of power measurement. *Cement and Concrete Research*, 39(3) :182–194, 2009.
- [24] G. Chatté, J. Comtet, A. Niguès, L. Bocquet, A. Siria, G. Ducouret, F. Lequeux, N. Lenoir, G. Ovarlez, and A. Colin. Shear thinning in non-brownian suspensions. *Soft matter*, 14 (6) :879–893, 2018.

- 
- [25] C. Clavaud, A. Bérut, B. Metzger, and Y. Forterre. Revealing the frictional transition in shear-thickening suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(20) : 5147–5152, 2017.
- [26] J. Comtet, G. Chatté, A. Niguès, L. Bocquet, A. Siria, and A. Colin. Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous shear thickening transition in non-colloidal suspensions. *Nature Communications*, 8(1) :15633, 2017.
- [27] J. Comtet, G. Chatté, A. Niguès, L. Bocquet, A. Siria, and A. Colin. Pairwise frictional profile between particles determines discontinuous shear thickening transition in non-colloidal suspensions. *Nature Communications*, 8(1) :15633, Aug. 2017. ISSN 2041-1723. doi : 10.1038/ncomms15633. URL <http://www.nature.com/articles/ncomms15633>.
- [28] P. Coussot. *Rheometry of pastes, suspensions, and granular materials : applications in industry and environment*. John Wiley & Sons, 2005.
- [29] P. Coussot, Q. D. Nguyen, H. T. Huynh, and D. Bonn. Viscosity bifurcation in thixotropic, yielding fluids. *Journal of Rheology*, 46(3) :573–589, May 2002. ISSN 0148-6055, 1520-8516. doi : 10.1122/1.1459447. URL <http://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.1459447>.
- [30] F. Da Cruz, S. Emam, M. Prochnow, J.-N. Roux, and F. Chevoir. Rheophysics of dense granular materials : Discrete simulation of plane shear flows. *Physical Review E*, 72(2) : 021309, 2005.
- [31] N. Dagès. *Matériaux rhéo-acoustiques*. PhD thesis, Université de Lyon, 2021.
- [32] T. Dbouk, L. Lobry, and E. Lemaire. Normal stresses in concentrated non-Brownian suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 715 :239–272, Jan. 2013. ISSN 0022-1120, 1469-7645. doi : 10.1017/jfm.2012.516. URL [https://www.cambridge.org/core/product/identifier/S0022112012005162/type/journal\\_article](https://www.cambridge.org/core/product/identifier/S0022112012005162/type/journal_article).
- [33] P. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quere. *Capillarity and Wetting Phenomena : Drops, Bubbles, Pearls, Waves*. Springer New York, 2003. ISBN 978-0-387-00592-8. URL <https://books.google.fr/books?id=MxLQk8vms-kC>.
- [34] F. De Larrard. *Concrete mixture proportioning : a scientific approach*. CRC Press, 1999.
- [35] S. K. De Richter, C. Hanotin, P. Marchal, S. Leclerc, F. Demeurie, and N. Louvet. Vibration-induced compaction of granular suspensions. *The European Physical Journal E*, 38(7) :1–9, 2015.
- [36] J. A. Dijksman, G. H. Wortel, L. T. van Dellen, O. Dauchot, and M. van Hecke. Jamming, yielding, and rheology of weakly vibrated granular media. *Physical review letters*, 107(10) : 108303, 2011.

- [37] T. Divoux and J.-C. Géminard. Friction and Dilatancy in Immersed Granular Matter. *Physical Review Letters*, 99(25) :258301, Dec. 2007. ISSN 0031-9007, 1079-7114. doi : 10.1103/PhysRevLett.99.258301. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.99.258301>.
- [38] N. Q. Dzyu and D. V. Boger. Yield stress measurement for concentrated suspensions. *Journal of Rheology*, 27(4) :321–349, 1983.
- [39] G. D’Anna and G. Gremaud. Vibration-induced jamming transition in granular media. *Physical Review E*, 64(1) :011306, 2001.
- [40] A. Einstein. Eine neue bestimmung der moleküldimensionen. *Annalen der Physik*, 324 (2) :289–306, Jan. 1906. ISSN 0003-3804. doi : 10.1002/andp.19063240204. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/andp.19063240204>. Publisher : John Wiley & Sons, Ltd.
- [41] A. Einstein. Berichtigung zu meiner arbeit : Eine neue bestimmung der moleküldimensionen. *Annalen der Physik*, 339(3) :591–592, 1911.
- [42] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn. Yield stress and shear banding in granular suspensions. *Physical review letters*, 103(17) :178301, 2009.
- [43] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn. Yield Stress and Shear Banding in Granular Suspensions. *Physical Review Letters*, 103(17) :178301, 2009.
- [44] A. Fall, A. Lemaitre, F. Bertrand, D. Bonn, and G. Ovarlez. Shear thickening and migration in granular suspensions. *Physical review letters*, 105(26) :268303, 2010.
- [45] A. Fall, F. Bertrand, G. Ovarlez, and D. Bonn. Shear thickening of cornstarch suspensions. *Journal of Rheology*, 56(3) :575–591, 2012.
- [46] A. Fall, F. Bertrand, D. Hautemayou, C. Mézière, P. Moucheront, A. Lemaître, and G. Ovarlez. Macroscopic Discontinuous Shear Thickening versus Local Shear Jamming in Cornstarch. *Physical Review Letters*, 114(9) :098301, 2015.
- [47] A. Fall, G. Ovarlez, D. Hautemayou, C. Mézière, J.-N. Roux, and F. Chevoir. Dry granular flows : Rheological measurements of the  $\mu$  (i)-rheology. *Journal of rheology*, 59(4) :1065–1080, 2015.
- [48] A. Fall, G. Ovarlez, D. Hautemayou, C. Mézière, J.-N. Roux, and F. Chevoir. Dry granular flows : Rheological measurements of the  $\mu$  (i)-rheology. *Journal of Rheology*, 59(4) :1065–1080, June 2015. ISSN 0148-6055. doi : 10.1122/1.4922653. URL <https://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.4922653>. Publisher : The Society of Rheology.

- 
- [49] N. Fernandez, R. Mani, D. Rinaldi, D. Kadau, M. Mosquet, H. Lombois-Burger, J. Cayer-Barrioz, H. J. Herrmann, N. D. Spencer, and L. Isa. Microscopic mechanism for shear thickening of non-brownian suspensions. *Physical review letters*, 111(10) :108301, 2013.
- [50] J. Fiscina, G. Lumay, F. Ludewig, and N. Vandewalle. Compaction Dynamics of Wet Granular Assemblies. *Physical review letters*, 105 :048001, July 2010. doi : 10.1103/PhysRevLett.105.048001.
- [51] Y. Forterre and O. Pouliquen. Flows of dense granular media. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 40 :1–24, 2008.
- [52] F. Gadala-Maria and A. Acrivos. Shear-induced structure in a concentrated suspension of solid spheres. *Journal of Rheology*, 24(6) :799–814, 1980.
- [53] S. Gallier, E. Lemaire, F. Peters, and L. Lobry. Rheology of sheared suspensions of rough frictional particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 757 :514–549, 2014.
- [54] S. Garland, G. Gauthier, J. Martin, and J. Morris. Normal stress measurements in sheared non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 57(1) :71–88, 2013.
- [55] N. Gaudel, S. Kiesgen de Richter, N. Louvet, M. Jenny, and S. Skali-Lami. Bulk and local rheology in a dense and vibrated granular suspension. *Physical Review E*, 96(6) :062905, 2017.
- [56] N. Gaudel, S. Kiesgen de Richter, N. Louvet, M. Jenny, and S. Skali-Lami. Bulk and local rheology in a dense and vibrated granular suspension. *Physical Review E*, 96(6) : 062905, Dec. 2017. ISSN 2470-0045, 2470-0053. doi : 10.1103/PhysRevE.96.062905. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.96.062905>.
- [57] V. Gopalakrishnan and C. Zukoski. Effect of attractions on shear thickening in dense suspensions. *Journal of Rheology*, 48(6) :1321–1344, 2004.
- [58] E. Guazzelli and O. Pouliquen. Rheology of dense granular suspensions. *Journal of Fluid Mechanics*, 852 :P1, 2018.
- [59] K. J. Gutam, V. Mehandia, and P. R. Nott. Rheometry of granular materials in cylindrical couette cells : Anomalous stress caused by gravity and shear. *Physics of Fluids*, 25(7) : 070602, 2013.
- [60] B. M. Guy, M. Hermes, and W. C. K. Poon. A unified description of the rheology of hard-particle suspensions. *Physical Review Letters*, 115(8) :088304, 2015.
- [61] H. Hafid, G. Ovarlez, F. Toussaint, P. Jezequel, and N. Roussel. Effect of particle morphological parameters on sand grains packing properties and rheology of model mortars. *Cement and Concrete Research*, 80 :44–51, 2016.

- [62] C. Hanotin, S. Kiesgen de Richter, P. Marchal, L. J. Michot, and C. Baravian. Vibration-induced Liquefaction of Granular Suspensions. *Physical Review Letters*, 108(19) :198301, 2012.
- [63] C. Hanotin, P. Marchal, L. J. Michot, C. Baravian, and S. Kiesgen de Richter. Dynamics of vibrated granular suspensions probed by mechanical spectroscopy and diffusing wave spectroscopy measurements. *Soft Matter*, 9(39) :9352, 2013.
- [64] C. Hanotin, S. Kiesgen de Richter, L. J. Michot, and P. Marchal. Viscoelasticity of vibrated granular suspensions. *Journal of Rheology*, 59(1) :253–273, 2015.
- [65] J. A. Hersey. Ordered mixing : a new concept in powder mixing practice. *Powder Technology*, 11(1) :41–44, 1975.
- [66] D. J. M. Hodgson, M. Hermes, E. Blanco, and W. C. K. Poon. Granulation and suspension rheology : a unified treatment. *arXiv :1907.10980 [cond-mat]*, 2019.
- [67] R. Hoffman. Discontinuous and dilatant viscosity behavior in concentrated suspensions. i. observation of a flow instability. *Transactions of the Society of Rheology*, 16(1) :155–173, 1972.
- [68] H. Janssen. Investigations of pressure of grain in silo. *Vereins Eutscher Ingenieure Zeitschrift*, 39 :1045–1049, 1895.
- [69] S. Jarny, N. Roussel, S. Rodts, F. Bertrand, R. Le Roy, and P. Coussot. Rheological behavior of cement pastes from mri velocimetry. *Cement and concrete research*, 35(10) : 1873–1881, 2005.
- [70] V. C. Kelessidis, V. Hatzistamou, and R. Maglione. Wall slip phenomenon assessment of yield stress pseudoplastic fluids in couette geometry. *Applied Rheology*, 20(5), 2010.
- [71] S. Kiesgen de Richter, C. Hanotin, P. Marchal, S. Leclerc, F. Demeurie, and N. Louvet. Vibration-induced compaction of granular suspensions. *The European Physical Journal E*, 38(7) :74, 2015.
- [72] J. B. Knight, C. G. Fandrich, C. N. Lau, H. M. Jaeger, and S. R. Nagel. Density relaxation in a vibrated granular material. *Phys. Rev. E*, 51 :3957–3963, May 1995. doi : 10.1103/PhysRevE.51.3957. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.51.3957>.
- [73] J. A. Koch, D. I. Castaneda, R. H. Ewoldt, and D. A. Lange. Vibration of fresh concrete understood through the paradigm of granular physics. *Cement and Concrete Research*, 115 :31–42, 2019.

- 
- [74] J. A. Koch, D. I. Castaneda, R. H. Ewoldt, and D. A. Lange. Vibration of fresh concrete understood through the paradigm of granular physics. *Cement and Concrete Research*, 115 :31–42, Jan. 2019. ISSN 0008-8846. doi : 10.1016/j.cemconres.2018.09.005. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0008884617312437>.
- [75] I. M. Krieger and T. J. Dougherty. A mechanism for non-newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Transactions of the Society of Rheology*, 3(1) :137–152, 1959.
- [76] R. J. Larsen, J.-W. Kim, C. F. Zukoski, and D. A. Weitz. Elasticity of dilatant particle suspensions during flow. *Physical Review E*, 81(1) :011502, 2010.
- [77] J. Laurens. *Compréhension des interactions silice-polymère et du rôle de l'interface grâce à l'utilisation de solvants*. PhD thesis, Université de Lyon, 2020.
- [78] J. Laurens, J. Jolly, G. Ovarlez, H. Fay, T. Chaussée, and P. Sotta. Competitive adsorption between a polymer and solvents onto silica. *Langmuir*, 36(26) :7669–7680, 2020.
- [79] Y. S. Lee, E. D. Wetzel, and N. J. Wagner. The ballistic impact characteristics of kevlar® woven fabrics impregnated with a colloidal shear thickening fluid. *Journal of materials science*, 38(13) :2825–2833, 2003.
- [80] A. Lemaître, J.-N. Roux, and F. Chevoir. What do dry granular flows tell us about dense non-Brownian suspension rheology? *Rheologica Acta*, 48(8) :925–942, 2009.
- [81] R. Lespiat, S. Cohen-Addad, and R. Höhler. Jamming and Flow of Random-Close-Packed Spherical Bubbles : An Analogy with Granular Materials. *Physical Review Letters*, 106(14) :148302, 2011.
- [82] M. Lexis and N. Willenbacher. Yield stress and elasticity of aqueous foams from protein and surfactant solutions—the role of continuous phase viscosity and interfacial properties. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 459 :177–185, 2014.
- [83] N. Y. Lin, B. M. Guy, M. Hermes, C. Ness, J. Sun, W. C. Poon, and I. Cohen. Hydrodynamic and contact contributions to continuous shear thickening in colloidal suspensions. *Physical review letters*, 115(22) :228304, 2015.
- [84] N. Y. Lin, C. Ness, M. E. Cates, J. Sun, and I. Cohen. Tunable shear thickening in suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(39) :10774–10778, 2016.
- [85] N. Y. Lin, C. Ness, M. E. Cates, J. Sun, and I. Cohen. Tunable shear thickening in suspensions. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(39) :10774–10778, Sept. 2016. ISSN 0027-8424, 1091-6490. doi : 10.1073/pnas.1608348113. URL <http://www.pnas.org/lookup/doi/10.1073/pnas.1608348113>.



- [86] A. J. Liu and S. R. Nagel. Granular and jammed materials. *Soft Matter*, 6(13) :2869, 2010.
- [87] L. Lobry, E. Lemaire, F. Blanc, S. Gallier, and F. Peters. Shear thinning in non-brownian suspensions explained by variable friction between particles. *Journal of Fluid Mechanics*, 860 :682–710, 2019.
- [88] D. Lootens, H. Van Damme, and P. Hébraud. Giant stress fluctuations at the jamming transition. *Physical review letters*, 90(17) :178301, 2003.
- [89] B. J. Maranzano and N. J. Wagner. The effects of particle size on reversible shear thickening of concentrated colloidal dispersions. *The Journal of Chemical Physics*, 114(23) : 10514–10527, June 2001. ISSN 0021-9606, 1089-7690. doi : 10.1063/1.1373687. URL <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.1373687>.
- [90] P. Marchal, N. Smirani, and L. Choplin. Rheology of dense-phase vibrated powders and molecular analogies. *Journal of Rheology*, 53(1) :1–29, 2009.
- [91] R. Mari, R. Seto, J. F. Morris, and M. M. Denn. Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 58(6) :1693–1724, 2014.
- [92] R. Mari, R. Seto, J. F. Morris, and M. M. Denn. Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-Brownian suspensions. *Journal of Rheology*, 58(6) :1693–1724, Sept. 2014. ISSN 0148-6055. doi : 10.1122/1.4890747. URL <https://sor.scitation.org/doi/full/10.1122/1.4890747>. Publisher : The Society of Rheology.
- [93] R. Mari, R. Seto, J. F. Morris, and M. M. Denn. Discontinuous shear thickening in brownian suspensions by dynamic simulation. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 112(50) :15326–15330, 2015.
- [94] S. H. Maron and P. E. Pierce. Application of ree-yring generalized flow theory to suspensions of spherical particles. *Journal of colloid science*, 11(1) :80–95, 1956.
- [95] R. K. McGEARY. Mechanical Packing of Spherical Particles. *Journal of the American Ceramic Society*, 44(10) :513–522, 1961. ISSN 1551-2916. doi : 10.1111/j.1151-2916.1961.tb13716.x. URL <https://ceramics.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/j.1151-2916.1961.tb13716.x>. \_eprint : <https://ceramics.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1111/j.1151-2916.1961.tb13716.x>.
- [96] J. F. Morris. Shear Thickening of Concentrated Suspensions : Recent Developments and Relation to Other Phenomena. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 52(1) :121–144, 2020.
- [97] C. Ness, R. Mari, and M. E. Cates. Shaken and stirred : Random organization reduces viscosity and dissipation in granular suspensions. *Science advances*, 4(3) :eaar3296, 2018.

- 
- [98] C. Ness, R. Mari, and M. E. Cates. Shaken and stirred : Random organization reduces viscosity and dissipation in granular suspensions. *Science Advances*, 4(3) :eaa3296, Mar. 2018. ISSN 2375-2548. doi : 10.1126/sciadv.aar3296. URL <http://advances.sciencemag.org/lookup/doi/10.1126/sciadv.aar3296>.
- [99] D. Newitt. A contribution to the theory and practice of granulation. *Tran Inst Chem Eng*, 36 :422–442, 1958.
- [100] G. Ovarlez. *Statique et rhéologie d'un milieu granulaire confiné*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2002.
- [101] G. Ovarlez. Rheometry of Visco-Plastic Fluids. In G. Ovarlez and S. Hormozi, editors, *Lectures on Visco-Plastic Fluid Mechanics*, volume 583, pages 127–163. Springer International Publishing, Cham, 2019. ISBN 978-3-319-89437-9 978-3-319-89438-6. doi : 10.1007/978-3-319-89438-6\_4. URL [http://link.springer.com/10.1007/978-3-319-89438-6\\_4](http://link.springer.com/10.1007/978-3-319-89438-6_4). Series Title : CISM International Centre for Mechanical Sciences.
- [102] G. Ovarlez, F. Bertrand, and S. Rodts. Local determination of the constitutive law of a dense suspension of noncolloidal particles through magnetic resonance imaging. *Journal of rheology*, 50(3) :259–292, 2006.
- [103] G. Ovarlez, Q. Barral, and P. Coussot. Three-dimensional jamming and flows of soft glassy materials. *Nature materials*, 9(2) :115–119, 2010.
- [104] G. Ovarlez, F. Mahaut, F. Bertrand, and X. Chateau. Flows and heterogeneities with a vane tool : Magnetic resonance imaging measurements. *Journal of rheology*, 55(2) : 197–223, 2011.
- [105] G. Ovarlez, F. Mahaut, F. Bertrand, and X. Chateau. Flows and heterogeneities with a vane tool : Magnetic resonance imaging measurements. *Journal of Rheology*, 55(2) : 197–223, Mar. 2011. ISSN 0148-6055, 1520-8516. doi : 10.1122/1.3526349. URL <http://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.3526349>.
- [106] G. Ovarlez, F. Bertrand, P. Coussot, and X. Chateau. Shear-induced sedimentation in yield stress fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 177 :19–28, 2012.
- [107] L. Papadopoulos, M. A. Porter, K. E. Daniels, and D. S. Bassett. Network analysis of particles and grains. *Journal of Complex Networks*, 6(4) :485–565, 2018.
- [108] F. Peters, G. Ghigliotti, S. Gallier, F. Blanc, E. Lemaire, and L. Lobry. Rheology of non-Brownian suspensions of rough frictional particles under shear reversal : A numerical study. *Journal of Rheology*, 60(4) :715–732, July 2016. ISSN 0148-6055, 1520-8516. doi : 10.1122/1.4954250. URL <http://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.4954250>.

- [109] P.-E. Peyneau and J.-N. Roux. Frictionless bead packs have macroscopic friction, but no dilatancy. *Physical Review E*, 78(1) :011307, 2008.
- [110] Philippe, P. and Bideau, D. Compaction dynamics of a granular medium under vertical tapping. *Europhys. Lett.*, 60(5) :677–683, 2002. doi : 10.1209/epl/i2002-00362-7. URL <https://doi.org/10.1209/epl/i2002-00362-7>.
- [111] B. Saint-Michel, S. Manneville, S. Meeker, G. Ovarlez, and H. Bodiguel. X-ray radiography of viscous resuspension. *Physics of Fluids*, 31(10) :103301, Oct. 2019. ISSN 1070-6631. doi : 10.1063/1.5103271. URL <https://aip.scitation.org/doi/abs/10.1063/1.5103271>. Publisher : American Institute of Physics.
- [112] B. Saint-Michel, S. Manneville, S. Meeker, G. Ovarlez, and H. Bodiguel. X-ray radiography of viscous resuspension. *Physics of Fluids*, 31(10) :103301, 2019.
- [113] P. Schall and M. van Hecke. Shear bands in matter with granularity. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 42, 2010.
- [114] M. Scheel, R. Seemann, M. Brinkmann, M. Di Michiel, A. Sheppard, B. Breidenbach, and S. Herminghaus. Morphological clues to wet granular pile stability. *Nature Materials*, 7(3) :189–193, Mar. 2008. ISSN 1476-4660. doi : 10.1038/nmat2117. URL <https://doi.org/10.1038/nmat2117>.
- [115] A. Schofield and P. Wroth. *Critical state soil mechanics*. McGraw-hill, 1968.
- [116] R. Seto, R. Mari, J. F. Morris, and M. M. Denn. Discontinuous Shear Thickening of Frictional Hard-Sphere Suspensions. *Physical Review Letters*, 111(21) :218301, Nov. 2013. ISSN 0031-9007, 1079-7114. doi : 10.1103/PhysRevLett.111.218301. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.111.218301>.
- [117] L. E. Silbert. Jamming of frictional spheres and random loose packing. *Soft Matter*, 6(13) :2918, 2010. ISSN 1744-683X, 1744-6848. doi : 10.1039/c001973a. URL <http://xlink.rsc.org/?DOI=c001973a>.
- [118] A. Singh, R. Mari, M. M. Denn, and J. F. Morris. A constitutive model for simple shear of dense frictional suspensions. *Journal of Rheology*, 62(2) :457–468, 2018.
- [119] A. Singh, R. Mari, M. M. Denn, and J. F. Morris. A constitutive model for simple shear of dense frictional suspensions. *Journal of Rheology*, 62(2) :457–468, Jan. 2018. ISSN 0148-6055. doi : 10.1122/1.4999237. URL <https://sor.scitation.org/doi/10.1122/1.4999237>. Publisher : The Society of Rheology.
- [120] F. Toussaint, C. Roy, and P.-H. Jézéquel. Reducing shear thickening of cement-based suspensions. *Rheologica acta*, 48(8) :883–895, 2009.

- 
- [121] F. Toussaint, C. Roy, and P.-H. Jézéquel. Reducing shear thickening of cement-based suspensions. *Rheologica Acta*, 48(8) :883–895, Oct. 2009. ISSN 1435-1528. doi : 10.1007/s00397-009-0362-z. URL <https://doi.org/10.1007/s00397-009-0362-z>.
- [122] J. Vermant, P. Moldenaers, J. Mewis, M. Ellis, and R. Garritano. Orthogonal superposition measurements using a rheometer equipped with a force rebalanced transducer. *Review of scientific instruments*, 68(11) :4090–4096, 1997.
- [123] C. Vervaet and J. P. Remon. Continuous granulation in the pharmaceutical industry. *Chemical Engineering Science*, 60(14) :3949–3957, July 2005. ISSN 0009-2509. doi : 10.1016/j.ces.2005.02.028. URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0009250905001284>.
- [124] T.-S. Vu, G. Ovarlez, and X. Chateau. Macroscopic behavior of bidisperse suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology*, 54(4) :815–833, 2010.
- [125] M. Wyart and M. Cates. Discontinuous Shear Thickening without Inertia in Dense Non-Brownian Suspensions. *Physical Review Letters*, 112(9) :098302, 2014.
- [126] L. A. A. Yahia, T. M. Piepke, R. Barrett, A. Ozel, and R. Ocone. Development of a virtual couette rheometer for aerated granular material. *AIChE Journal*, 66(6) :e16945, 2020.
- [127] I. E. Zarraga, D. A. Hill, and D. T. Leighton Jr. The characterization of the total stress of concentrated suspensions of noncolloidal spheres in newtonian fluids. *Journal of Rheology*, 44(2) :185–220, 2000.

## Rhéologie des suspensions de silice concentrées

**Résumé :** L'écoulement de suspensions peut être bloqué lorsque les particules en suspension sont densément tassées. Dans ce manuscrit, nous étudions des suspensions de particules de silice rugueuses industrielles dans un fluide newtonien. Le comportement rhéologique avec et sans vibrations est étudié à une fraction volumique supérieure à leur fraction volumique de blocage notée  $\phi_m$ . En l'absence de vibrations, les suspensions se comportent comme un solide : elles ne s'écoulent qu'au-dessus d'une contrainte seuil. Les particules sont confinées par la tension de surface et le seuil de contrainte est d'origine frictionnelle. Lorsque des vibrations sont appliquées, la contrainte seuil disparaît pour donner lieu à un comportement pseudo-newtonien de type liquide à faible taux de cisaillement. Lorsque le taux de cisaillement augmente, on observe un rhéoépaississement des suspensions vibrées, conduisant finalement à du blocage par cisaillement. Nous montrons que la transition de rhéoépaississement peut être ajustée en modifiant l'énergie de vibration injectée dans le système. Nous proposons enfin une image physique basée sur la compétition entre l'ouverture de contact par vibration et la formation de contact par cisaillement pour rendre compte de ces comportements. Dans le cadre du modèle de Wyart et Cates, les vibrations peuvent être considérées comme introduisant une force répulsive de type thermique, produisant une contrainte critique proportionnelle à la contrainte de vibration introduite par Hanotin et al.

**Mots-clés :** matériau granulaire, granulation, suspensions concentrées

---

## Rheology of concentrated silica suspensions

**Abstract :** Flows of suspensions can be blocked when the suspended particles are densely packed. Here, we study suspensions of industrial rough silica particles in a Newtonian fluid. The rheological behavior with and without vibrations is studied at a volume fraction above their jamming volume fraction. In the absence of vibrations, they have a solidlike behavior : they flow only above a yield stress. Particles are confined by the liquid interface, and the yield stress is of the frictional origin. When vibrations are applied, the yield stress vanishes to give rise to a liquidlike pseudo-Newtonian behavior at a low shear rate. As the shear rate is increased, we observe a shear thickening of the vibrated suspensions, eventually leading to shear-jamming. We show that this shear thickening can be tuned by changing the vibration energy injected into the system. We finally, propose a physical picture based on the competition between contact opening by vibration and contact formation by shear to account for these behaviors. In the framework of the Wyart and Cates model, vibrations can be seen as introducing a thermal-like repulsive force, yielding a critical stress proportional to the vibration stress introduced by Hanotin et al.

**Keywords :** granular material, granulation, concentrated suspensions

---

**Unité de recherche**

UMR 5258 Université, 33000 Bordeaux, France.

